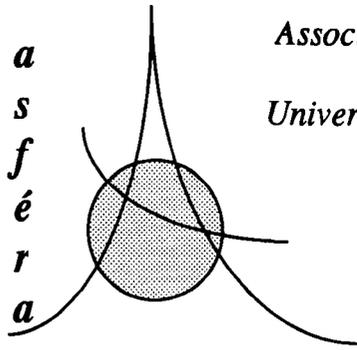


a  
s  
f  
é  
r  
a



*Association Française d'Etudes et de Recherches sur les Aérosols*  
*LPATC - UFR Science et Technologie.*  
*Université Paris XII, Avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil.*  
*Tél: 45 17 13 62 - Fax: 45 17 13 61.*

**ACTES DES 11èmes JOURNEES  
d'ETUDES SUR LES AEROSOLS  
PARIS, 5 - 6 Décembre 1995**

# 11èmes JOURNEES D'ETUDES SUR LES AEROSOLS

5 - 6 Décembre 1995

PARIS

## -- SOMMAIRE --

### INTRODUCTION

- |  | PAGES  |
|--|--------|
| - <i>Introduction des 11èmes Journées. Professeur A. RENOUX, Président de l'ASFERA.</i>  | 1 - 3  |
| - <b>Conférence Plénière</b> par le Professeur R. MOREAU, Université Paris XII.<br>Les bases de l'aérobiologie. Survie et adhésion des microorganismes dans l'environnement.<br>Le débusquement enzymatique. | 4 - 13 |

### LES AEROSOLS DANS L'ENVIRONNEMENT

- |  |         |
|--|---------|
| - Etude comparative de l'aérosol atmosphérique dans l'enceinte du métropolitain parisien.<br>C. LE GUERN (1), M. ATTOUI (1), A. RENOUX (1), C. PARFAIT (2), F. PETIT-COVIAUX (3).<br><i>(1) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Faculté des Sciences, Avenue du Général de Gaulle, 94010 CRETEIL Cedex. (2) RATP - Département Environnement et Sécurité - D2E/EQA - 124, rue du Mont Cenis 75018 PARIS. (3) Laboratoire d'Hygiène de la ville de Paris, 11, rue Georges Eastman 75013 PARIS.</i>   | 14 - 19 |
| - Evolution dynamique de la distribution en taille des particules atmosphériques ultrafines à la station cotière de Porspoder.<br>G. TYMEN, O. LE BIHAN, C. DROAL.<br><i>Laboratoire de Physique des Aérosols et de Radioactivité Atmosphérique, Université de Bretagne Occidentale, U.F.R. des Sciences et des Techniques, 6 Avenue Victor Le Gorgeu B.P. 809, 29285 BREST Cedex, France.</i>   | 20 - 25 |
| - Comportement du Radon et de ses descendants dans la cave d'une habitation: comparaison modèle - expérience.<br>A. M. GOURONNEC (1), F. GOUTELARD (1), N. MONTASSIER (1), D. BOULAUD (1), A. RENOUX (2), G. TYMEN (3).<br><i>(1) Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, Département de Protection de l'Environnement et des Installations, CEA/Saclay, Bât. 389, 91191 GIF SUR YVETTE Cedex. (2) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Faculté des Sciences, Avenue du Général de Gaulle, 94010 CRETEIL Cedex, France. (3) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Radioactivité Atmosphérique, Université de Bretagne Occidentale, U.F.R. des Sciences et des Techniques, 6 Avenue Victor Le Gorgeu B.P. 809, 29285 BREST Cedex, France.</i> | 26 - 31 |
| - Distribution en taille des composés majeurs de l'aérosol atmosphérique à la station cotière de Porspoder.<br>O. LE BIHAN, B. CALVEZ, G. TYMEN.<br><i>Laboratoire de Physique des Aérosols et de Radioactivité Atmosphérique, Université de Bretagne Occidentale, U.F.R. des Sciences et des Techniques, 6 Avenue Victor Le Gorgeu B.P. 809, 29285 BREST Cedex, France.</i>   | 32 - 37 |

## MAITRISE DE LA CONTAMINATION PARTICULAIRE

- Efficacité de protection des produits et des personnels utilisant les postes de sécurité microbiologique à recyclage partiel. 38 - 45  
M. ATTOUI (2), N. CHANTREL (1), J.C. TEXTE (1), M. MONTAMAT (1), A. RENOUX (2).  
*(1) Laboratoire national d'Essais, 1 rue Gaston Boissier, 75724 Paris Cedex 15. (2) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Avenue du Général de Gaulle 94010 CRETEIL Cedex.*
- Un appareil pour la mesure de la propreté des surfaces: l'A.M.P.S. 46 - 49  
A. CHARAMATHIEU (1), B. MESBAH (2), A. RENOUX (2), M.B. ATTOUI (2).  
*(1) Eco Prisme, 5 Avenue du Général de Gaulle, 92200 Bagneux. (2) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Avenue du Général de Gaulle 94010 CRETEIL Cedex.*
- Distribution en taille des particules inertes et viables dans des bâtiments d'élevage porcin. 50 - 55  
C. DROAL (1), G. TYMEN(1), A. GUELLIL (2), D. BOULAUD (3).*(1) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Radioactivité Atmosphérique, Université de Bretagne Occidentale, U.F.R. des Sciences et des Techniques, 6 Avenue Victor Le Gorgeu B.P. 809, 29285 BREST Cedex, France. (2) LDA 22, rue du Sabot, PB 54, 22440 PLOUFRAGAN. (3) Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, Département de Protection de l'Environnement et des Installations, CEA/Saclay, Bât. 389, 91191 GIF SUR YVETTE Cedex, France.*

## MECANIQUE DES AEROSOLS

- Diffusion des descendants libres du Radon dans un tube cylindrique en écoulement laminaire. 56 - 61  
J. MALET (1), N. MONTASSIER (1), D. BOULAUD (1), A. RENOUX (2).  
*(1) Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, Département de Protection de l'Environnement et des Installations, service d'Etudes et des Recherches en Aérocontamination et en Confinement. CEA/Saclay, Bât. 389, 91191 GIF SUR YVETTE Cedex, France. (2) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Avenue du Général de Gaulle 94010 CRETEIL Cedex.*
- Mesure intégrée et distribution en taille de la fraction non attachée du radon 222 par l'utilisation d'un détecteur de traces alpha dans un canal annulaire. 62 - 67  
D. KEROUANTON (1), G. TYMEN (1), D. BOULAUD (2).  
*(1) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Radioactivité Atmosphérique, Université de Bretagne Occidentale, U.F.R. des Sciences et des Techniques, 6 Avenue Victor Le Gorgeu B.P. 809, 29285 BREST Cedex, France. (2) Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, Département de Protection de l'Environnement et des Installations, service d'Etudes et des Recherche en Aérocontamination et en Confinement. CEA/Saclay, Bât. 389, 91191 GIF SUR YVETTE Cedex, France.*
- Efficacité des filtres à basse pression. Comparaison théorie - expérience. 68 - 73  
M.B. ATTOUI.  
*Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Avenue du Général de Gaulle 94010 CRETEIL Cedex.*
- Confinement dynamique par rideau d'air appliqué à l'industrie agroalimentaire. 74 - 85  
V.M. MOCHO (1), J.C. LABORDE (1), M. POURPRIX (1), A. RENOUX (2).  
*(1) Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, Département de Protection de l'Environnement et des Installations, CEA/Saclay, Bât. 389, 91191 GIF SUR YVETTE. (2) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Avenue du Général de Gaulle 94010 CRETEIL Cedex.*

- Efficacité d'échantillonnage d'un capteur à fente annulaire. 86 -93  
 O. WITSCHGER (1,2), J.F. FABRIES (1), P. GORNER (1), A. RENOUX (2).  
 (1) INRS, Laboratoire de Métrologie de la Pollution par les Aérosols., B.P. 2754501 VANDOEUVRE Cedex, (2)  
 Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Avenue du Général  
 de Gaulle, 94010 CRETEIL Cedex.

- Conférence Plénière par le Professeur A. RENOUX. 94 - 103  
 La radioactivité atmosphérique naturelle, son histoire, ses découvertes. naturelle, son histoire, ses  
 découvertes.  
 Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Avenue du  
 Général de Gaulle 94010 CRETEIL Cedex.

## OPTIQUE DES AEROSOLS ET DES PARTICULES

- Détection de particules à coeur par anémométrie phase Doppler laser. 104 - 111  
 D. BLONDEL, F. ONOFRI, G. GREHAN, A. GARO, G. GOUESBET.  
 Laboratoire d'Energétique des Systèmes et Procédés, INSA de Rouen, URA. CNRS.230, CORIA B.P. 08, 76131,  
 Mont-Saint-Aignan Cedex, France.
- Réfractométrie d'Arc-en-ciel: sensibilité aux gradients d'indice et applications au diagnostic 112 - 119  
 de particules en non-homogènes.  
 J.P. PAGES, G. GREHAN, F. ONOFRI, A. GARO, G. GOUESBET.  
 Laboratoire d'Energétique des Systèmes et Procédés, INSA de Rouen, URA. CNRS.230, CORIA B.P. 08, 76131,  
 Mont-Saint-Aignan Cedex, France.
- Etude d'un dispositif de comptage en continu des aérosols fluorescents. 120 - 129  
 A. SEIGNEUR (1), C. PREVOST (2), J. VENDEL (2).  
 (1) Laboratoire d'Etudes du Confinement, Epuration et ventilation, CE/SACLAY Bâtiment 389, 91191 GIF SUR  
 YVETTE Cedex, France. (2) Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, Département de Protection de  
 l'Environnement des Installations, CEA/Saclay, Bât. 389, 91191 GIF SUR YVETTE Cedex, France.
- Détermination de l'orientation et de la concentration de fibres dans un nuage. 130 - 139  
 F. LE MEUR (1), D. WYSOCZANSKI (2), J.N. LE TOULOUZAN (1), T. GIRAZOLE (1), G. GREHAN (1),  
 G. GOUESBET (1)  
 (1) Laboratoire d'Energétique des Systèmes et Procédés, INSA de Rouen, URA. CNRS.230, CORIA B.P. 08,  
 76131, Mont-Saint-Aignan Cedex, France. (2) Institut of Electrical Metrology, Technical University of Wroclaw, ul.  
 B.Prusa 53/5550317 Wroclaw, Poland.
- Détermination de la taille de particules submicroniques par analyse de la polarisation d'un  
 rayonnement diffusé. 140 - 149  
 P. HERVE, L. AZIZI.  
 Laboratoire d'Energétique et d'Economie d'Energie, Université Paris X, 1 Chemin Desvallières 92410 Ville d'Avray.

## METROLOGIE DES AEROSOLS

- Sur la Physique, la Chimie et la Toxicologie des aérosols atmosphériques fortement dispersés. 150 - 155  
 K.R. SPURNY.  
 Aerosol Chemist, Eichenweg 6, 57392 Schmallenberg, Germany.

- Généralisation de l'analyse multiélémentaire par fluorescence X des filtres en fibres par la méthode de transmission (AFNOR X) 156 - 163  
J.P. QUISEFIT, J.B. CREPIN, P. De CHATEAUBOURG.  
*Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA), Universités Paris VII et Paris XII, URA CNRS 1404, avenue du Général de Gaulle 94010 Créteil Cedex.*

- Détermination des distributions dimensionnelles des aérosols à partir de deux algorithmes d'inversion non linéaire appliqués à plusieurs dispositifs d'échantillonnage. 164 - 169  
C. DROAL, G. TYMEN. *Laboratoire de Physique des Aérosols et de Radioactivité Atmosphérique, Université de Bretagne Occidentale, U.F.R. des Sciences et des Techniques, 6 Avenue Victor Le Gorgeu B.P. 809, 29285 BREST Cedex, France.*

## L'AEROSOL DE GOUTTELETTES

- Eclatement d'une goutte sur une surface rugueuse. 170 - 175  
K. RANGE, F. FEUILLEBOIS;  
*Ecole Supérieure de Physique et Chimie Industrielles, 10, rue Vauquelin, 75005 Paris.*
- Interaction entre particules de différentes tailles lors de l'agglomération acoustique d'un brouillard. 176 - 181  
Ph. CAPERAN, J. SOMMERS, K. RICHTER.  
*Commission Européenne, Centre Commun de Recherche, Institut Européen des Transuraniens, Postfach 2340, D-76125 Karlsruhe Allemagne.*
- Etude expérimentale de la phase liquide dispersée dans un écoulement diphasique entuyère convergente - divergente. 182 - 187  
K. JURSKI (1), E. GEHIN (1), M. DEGERATU (2), G. PIAR (1).  
(1) *LETIEF, CNRS, URA 508 IUT Université Paris XII, Avenue du Général de Gaulle 94010 CRETEIL, France.*  
(2) *Université Technique de la Construction, Bucarest, Roumanie.*
- Production d'aérosols en pression et en température. 188 - 194  
D. DUCRET (1), D. ROBLLOT (2), J. VENDEL (1).  
(1) *Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, Département de Protection de l'Environnement et des Installations, CEA/Saclay, Bât. 389, 91191 GIF SUR YVETTE Cedex.* (2) *JMB, Travail Temporaire, 75008 Paris.*
- Etude de l'atomisation d'un jet: vers une prédiction de la taille des gouttes. 196 - 205  
J. GODELLE, G. FOUGEREUX, C. LETELLIER, J.N. LETOULOZAN, G. GOUESBET, G. GREHAN.  
*Laboratoire d'Energétique des Systèmes et Procédés, INSA de Rouen, URA. CNRS 230, CORIA B.P. 08, 76131, Mont-Saint-Aignan Cedex, France.*

## A S F E R A

### Association Française d'Etudes et de Recherche sur les Aérosols

Le COFERA est mort, vive l'ASFERA...

Devant la mauvaise volonté mise par le GAMS à organiser ces journées, nous avons décidé de nous séparer de lui. Ainsi est née l'ASFERA, Association Française d'Etudes et de Recherche sur les Aérosols. Il nous a fallu parer au plus pressé, puisque, en octobre encore, le Président du GAMS m'assurait qu'il s'occupait personnellement de la bonne marche de notre congrès. Nous avons dû en quelques semaines, repartir pratiquement de zéro. Nous avons pu trouver un amphithéâtre libre au CNAM et, grâce à un énorme travail accompli par Michel ATTOUI être prêts pour les 5 et 6 décembre.

Mais rien ne devait nous être épargné, puisque la chienlit envahissait Paris. Malgré des conditions de transport épouvantables, 25 des 27 communications prévues ont été présentées, et les discussions ont été fructueuses, sous la direction de Présidents de Séance efficaces. On trouvera donc les textes des différentes présentations dans cet ouvrage.

Je rappellerai ici le succès de notre "European Aerosol Conference" à BLOIS du 30 Mai au 2 Juin 1994, qui a réuni près de 300 participants venus de 29 pays différents (plus 12 exposants). La représentation française a été riche et brillante, et les résumés ont fait l'objet du n°26. S. 1 du Journal of Aerosol Science. Seulement, malgré les bénéfiques conséquents dégagés par cette manifestation, le GAMS, A CE JOUR, n'a toujours pas réglé les dettes contractées vis-à-vis du GAeF (Allemagne) et du Journal of Aerosol Science.

Or le COFERA est maintenant Membre à part entière de l'IARA (International Aerosol Research Assembly), et Membre Fondateur de l'EAA (European Aerosol Assembly). Le remboursement de nos dettes est, bien entendu, un gage de notre crédibilité sur le plan international. Je fais tout mon possible pour que le GAMS honore enfin ses engagements, mais sans trop d'illusions. Il n'est donc pas impossible que l'ASFERA doive éponger les dettes du GAMS - COFERA.

Du 28 Août au 2 Septembre 1994, la "Fourth International Aerosol Conference" s'est tenue à l'UCLA - Los Angeles. J'ai été très heureux d'y constater une bonne présence française, concrétisée par une quinzaine de communications. Le Dr. Denis BOULAUD et moi-même avons représenté le COFERA lors de la réunion du bureau directeur de l'IARA le 1<sup>er</sup> septembre 1994.

Puis, du 18 au 22 septembre 1995, s'est tenue à HELSINKI l'European Aerosol Conference faisant suite à celle de BLOIS. Là encore, honnête participation française avec une quinzaine de communications. Le Dr. D. BOULAUD et moi-même avons représenté le COFERA au bureau directeur de l'IARA, et D. BOULAUD a participé au bureau directeur de l'EAA.

Je tiens à remercier la Revue Pollution Atmosphérique qui, une fois de plus, nous a apporté une aide très appréciable en publiant le programme de nos journées dans son numéro 147 de Juillet - Septembre 1995. Nous ferons paraître les résumés en anglais des actes de ces onzièmes journées dans le Journal of Aerosol Science.

Nous allons maintenant préparer les 12<sup>èmes</sup> journées. J'ai besoin de l'aide de tous, pour des communications, bien sûr, mais aussi pour nous faire connaître et amener à l'ASFERA de plus en plus de monde. La Science des Aérosols Française commence à devenir importante et produit des travaux de qualité. J'espère que beaucoup d'Industriels viendront nous rejoindre et présenter leurs travaux. Nous essaierons également d'attirer d'avantage de Biologistes, de Médecins, de Pharmaciens.

J'espère également une bonne présence française à l'European Aerosol Conference 1996 qui se tiendra à DELFT en Hollande du 9 au 12 septembre 1996.

Pour ma part, grâce à l'aide de tous ceux qui m'entourent et qui m'aident, je suis certain que l'ASFERA ne peut que se développer et prospérer.

André RENOUX  
Président de l'ASFERA

Congrès Français d'Etudes et de Recherches sur les Aérosols. Paris, 5-6 décembre 1995.

## Les bases de l'aérobiologie

par

Richard Moreau\*

Le professeur André Renoux m'a demandé d'ouvrir ce Congrès par un exposé sur les origines de l'aérobiologie. Je l'en remercie vivement. Ce thème convient particulièrement en cette fin de l'année mondiale consacrée à Louis Pasteur par l'UNESCO. En effet, il est difficile de ne pas évoquer ce savant au moment de parler de biologie de l'atmosphère, car il fut le pionnier de la science dont vous êtes les représentants.

### La science avant Pasteur

La création de l'aérobiologie est la conséquence directe des travaux de Pasteur sur les générations dites spontanées (ou hétérogénie). Toute l'Antiquité crut à cette doctrine selon laquelle la vie, surtout dans ses formes simples, apparaîtrait d'elle-même à partir d'éléments présents dans le milieu. Selon la thèse aristotélicienne qui avait encore cours au XVII<sup>ème</sup> siècle, la reproduction sexuée était la règle pour les animaux supérieurs. Par contre, elle n'intervenait pas obligatoirement chez les organismes inférieurs où elle pouvait s'accomplir de manière spontanée. Il existait donc des plantes et des animaux qui naissaient d'autre chose que de leurs semblables et qui sortaient de la vase, des excréments, des matières organiques en putréfaction, etc... C'était pour Aristote une irrégularité de la nature, d'où le nom de "génération irrégulière" donnée à ce type de génération par opposition à la "génération régulière" sexuée. Le philosophe grec décrivit la reproduction sexuée de nombreux groupes et la génération spontanée d'autres: plantes, insectes, poissons (de vase), etc... Dans la *Bible*, au *Livre des Juges*, Samson voit sortir un essaim d'abeilles de la carcasse d'un lion. Dans les *Géorgiques*, Virgile précise comment obtenir un essaim d'abeilles à partir des chairs putréfiées d'un jeune taureau. On peut citer aussi Lucrèce, Saint Augustin, etc... Au XVII<sup>ème</sup> siècle, cette doctrine était toujours si vivace que le physiologiste Jean-Baptiste Van Helmont prétendit que les odeurs des marais engendraient les grenouilles et que des souris naissaient d'une chemise sale enfermée en vase clos avec des grains de blé. Néanmoins, nos prédécesseurs ne pouvaient remonter au delà du premier individu de chaque espèce, ce qui posait *ipso facto* le problème de son apparition jusqu'à ce que les évolutionnistes déclarent que seule l'émergence des premiers vivants était à expliquer. La question à résoudre était donc celle de la "génération primordiale". En 1668, en faisant connaître par des expériences d'une simplicité extrême, la nature des larves qui viennent *ab ovo* dans la viande, Francesco Redi (1626-1698) ruina le crédit que l'on donnait à la génération spontanée des insectes et fit apparaître à leur sujet la conception de continuité vitale, toute vie provenant nécessairement d'une autre vie. Pour le prouver, il exposa à l'air de la viande protégée ou non par une gaze fine. Dans un cas, les mouches n'y ont pas accès, ne peuvent pas y pondre leurs oeufs et, même si la viande pourrit, aucun asticot n'apparaît. Dans l'autre, bien entendu, les deux phénomènes se produisent simultanément. Donc la viande même putréfiée ne donne ni vers, ni mouches par génération spontanée. Ce tournant fut fondamental. Néanmoins, deux théories coexistèrent longtemps, l'une correspondant toujours à la production d'êtres vivants à partir de la matière brute, l'autre à leur apparition aux dépens d'une matière anciennement vivante. Entre les deux, toutes les variations existèrent et l'origine sans parents des plantes et des animaux resta chose si peu surprenante que l'on admit jusqu'au XIX<sup>ème</sup> siècle que certaines espèces pouvaient utiliser le mode normal de reproduction ou venir au jour par génération spontanée. Entre temps, grâce au microscope, Antonie Van Leeuwenhoek avait découvert à la fin du XVII<sup>ème</sup> siècle que la vie se révélait même au niveau infra-visuel. Il décrivit des microorganismes, appelés alors animalcules, observés dans des eaux de mares, de pluie ou des infusions diverses, et figura des cocci, des bacilles, un vibrion, de la Levure de bière... Au début du XVIII<sup>ème</sup> siècle, Louis Joblot fit des observations du même ordre et inventa l'adjectif "microscopique".

Traiter de la génération spontanée ne revenait donc plus guère qu'à discuter de l'origine des "animalcules" puisque celle des espèces végétales et animales s'éclaircissait. Or, tout en étant inconnue, leur nature paraissait si différente des autres que reparut à leur égard l'hypothèse de l'hétérogénie. Les insuffisances techniques de l'époque suffirent à expliquer que les naturalistes durent attendre le XIX<sup>ème</sup> siècle pour y répondre: songeons que la qualité des microscopes ne s'améliora qu'après 1830. On se demandait en particulier s'ils provenaient d'êtres dont, en tout lieu et à tout moment, les semences préexistaient dans tous les milieux possibles: atmosphère, liquides divers, matières que l'on faisait infuser? Pour y répondre, Buffon remit alors à l'honneur la théorie des générations

---

\* Professeur de Microbiologie appliquée, Correspondant national de l'Académie d'Agriculture de France, UFR de Sciences, Université de Paris XII, avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil Cedex, France.

spontanées avec sa théorie des molécules organiques, admettant le spontanisme pour bon nombre d'animaux visibles et à plus forte raison pour les "microscopiques", comme on appela aussi les animalcules auxquels, disait-il, leur forme inconstante et leur absence de mouvements propres interdisaient d'accorder "l'animalité". Les êtres microscopiques étaient considérés comme de simples "*parties organiques mouvantes*." Buffon fit des observations au microscope, mais comme le résultat en fut médiocre, il demanda à un prêtre d'origine irlandaise installé en Belgique, John Tuberville Needham, de les poursuivre. Needham prétendait avoir vu naître de petites anguilles (d'où le surnom "*de jésuite anguillard*" que lui donna Voltaire) à partir de la farine de Blé ergoté. Cela venait appuyer la théorie de Buffon qui ne put être que séduit. Concernant les animalcules, certains naturalistes admettaient au début du XVIIIème siècle qu'ils pouvaient être engendrés par des oeufs transportés par les airs ou pondus par des parents ailés. Mais comme les uns et les autres étaient invisibles même au microscope, pour Needham ils n'existaient point et, d'après lui, seule l'hétérogénie pouvait expliquer leur apparition dans des liquides organiques. Pour soutenir ce point de vue, il imagina des expériences du type de celle-ci: il enfermait du jus chaud de viande de mouton dans des fioles qu'il bouchait ou croyait boucher- avec soin. Puis, afin de tuer les organismes éventuellement présents dans le jus ou l'air du flacon, il tenait ses récipients dans des cendres chaudes pendant trente minutes. Après plusieurs jours de conservation à la température ordinaire de l'été et malgré ce traitement, le liquide se remplissait d'êtres microscopiques. Persuadé que le chauffage avait tué tous les organismes préexistants alors qu'en fait il avait été très insuffisant, Needham expliqua la présence des nouvelles populations par l'effet de la génération spontanée. Plus exactement, il avança qu'une "*force végétatrice*" de nature inconnue permettait à certaines substances contenues dans les infusions ou les bouillons de passer à l'état d'animalcules. Sa conclusion était erronée, mais son expérience fut reprise jusque vers 1870.

A partir de 1765, Lazzaro Spallanzani refit les expérimentations de Needham en y apportant beaucoup plus de soin, obtint des résultats opposés et montra que son compétiteur n'avait pas chauffé, ni scellé correctement ses flacons: de l'air, donc des poussières passaient. Il conclut que la naissance des animalcules dans les liquides d'expérience était due à la présence de leurs germes dans l'infusion avant ébullition ou bien qu'ils y avaient été véhiculés par l'air extérieur, d'où cette phrase: "*Je ne vois pas qu'il soit possible d'attribuer la naissance des animalcules à autre chose qu'à de petits oeufs, ou à des semences, ou à des corpuscules préorganisés, que je veux appeler et que j'appellerai désormais du nom générique de germes*." Ce nom leur resta. Buffon ne fut pas *fair play* et l'on tourna Spallanzani en ridicule dans les salons parisiens. Un siècle plus tard, Pasteur donna une éclatante confirmation des travaux du second. Cependant, Spallanzani qui butinait d'un sujet à l'autre ne s'attacha pas aux recherches précédentes et ne réalisa pas les expériences que son ami suisse Charles Bonnet lui suggéra depuis Genève et que Pasteur, puis Félix-Archimède Pouchet, le compétiteur de celui-ci dans la querelle des générations dites spontanées, exécutèrent un siècle plus tard: "*Je voudrais purger d'air quelques-unes de ces bouteilles, lui écrivit Ch. Bonnet le 23 mai 1772 (...) les sceller hermétiquement, les porter ensuite sur le sommet d'une haute montagne, rompre le sceau hermétique sur ces hauteurs, pour laisser rentrer l'air dans les vases et faire ainsi dans ces vases et à cette grande hauteur, les mêmes expériences que vous avez tentées si heureusement dans les plaines de Lombardie. Il serait très intéressant de savoir ce qui se passerait alors dans les infusions et dans les diverses matières qui produisent des moisissures*." Cela n'intéressa probablement pas Spallanzani: selon l'expression de Pasteur, les esprits de son époque et notamment le sien n'y étaient pas préparés. Cependant, signe qui ne trompe pas et coïncidence curieuse, la même année 1810 vit la publication du livre de Nicolas Appert. L'industrie naissante était passée aux applications en la personne de ce dernier qui créa la méthode "d'appertisation" des denrées périssables, c'est-à-dire de la conserverie dont les produits, écrivit Pasteur plus tard, n'étaient que des ballons de Spallanzani "*appliqués à l'économie domestique*."

## L'état des connaissances en aérobiologie en 1860 et les expériences de Pasteur

L'opinion de Buffon pesa longtemps sur la science. Malgré tout, les connaissances sur l'origine et l'activité de ce que nous savons être les microbes progressaient. En premier lieu, poursuivant l'oeuvre de Leeuwenhoek, Ehrenberg trouva nombre de microorganismes dans l'eau, la poussière, les infusions, l'air, etc... et publia en 1838 en trois langues (allemand, français et latin) un remarquable ouvrage illustré dans lequel, outre de nombreux Infusoires, il décrivit plusieurs genres bactériens: *Monas*, *Vibrio*, *Bacterium*, *Spirochaeta* et *Spirillum* dont on s'apercevait ainsi qu'ils existaient dans notre entourage. Il fut aussi le premier à démontrer l'existence de propagules fongiques dans l'atmosphère de diverses parties du monde, des Alpes à l'Altaï et à l'Himalaya. A la même époque, entre 1836 et 1837, Cagniard de Latour découvrit la nature végétale des agents de la fermentation alcoolique, observa la multiplication par bourgeonnement de la Levure de bière et indiqua clairement que la transformation du sucre en éthanol était la conséquence de l'activité vitale de ces germes dont Persoon avait présagé la nature vivante quelques années plus tôt. On observa enfin que la fermentation n'avait pas lieu lorsque l'on empêchait l'introduction de cellules vivantes dans les milieux liquides.

A la même époque, Gaultier de Claubry inaugura en France l'ère des recherches vraiment scientifiques sur les organismes de l'air. Afin d'éliminer toute trace de matière organique, il envoyait dans un tube de platine chauffé au rouge de l'eau qui était vaporisée et dont il condensait la vapeur dans un flacon rempli d'air non stérile.

Quelques jours plus tard, l'eau se remplissait d'animalcules. La contre-épreuve consistait à soumettre l'air du flacon "à une température rouge": aucune vie ne se manifestait. Gaultier de Claubry conclut que "*l'atmosphère transport(ait) des sporules et des germes susceptibles de se développer au contact de l'eau*", ce qui "*n'excluait pas le transport de ces substances (sic) par les sources et les cours d'eau*." Ensuite, première tentative pour cataloguer les germes de l'atmosphère, il voulut vérifier si les germes étaient de même nature partout. Pour cela, il fit passer dans de l'eau stérile "*de l'air puisé à la campagne, à l'intérieur des rues, des habitations, des salles de malades, d'écuries, d'étables, de voiries*" et observa "*que les animaux et végétaux développés diff(éraient) dans ces divers cas*". On peut donc dire que Gaultier de Claubry fut le vrai précurseur de l'aérobiologie.

Simultanément, en Allemagne, F.Schulze en 1836, Th.Schwann en 1837 démontrèrent que l'on ne devait pas attribuer "*à l'oxygène, ou tout au moins à l'oxygène seul contenu dans l'air atmosphérique*", mais bien aux "*germes des moisissures et aux infusoires qu'il renferme*," l'origine des décompositions dont les solutions organiques sont le siège et que des infusions pouvaient demeurer stériles même lorsqu'elles recevaient de l'air renfermant sa proportion normale d'oxygène. Ce point était important car, depuis Needham, les tenants de l'hétérogénéité voulaient que ce fût l'oxygène qui, par une altération de la matière azotée, donnât lieu à la génération spontanée de "globules", c'est-à-dire aux Levures dont ils constataient l'apparition dans les moûts de fermentation alcoolique. Par ailleurs on objecta à propos de la méthode de conservation des aliments d'Appert, notamment Gay-Lussac en 1810, que l'air en était absent ou qu'il pouvait être chimiquement altéré par suite de la température élevée à laquelle il avait été soumis. Les expériences de Schwann et de Schultze (1837) répondirent partiellement à la question. Ces savants alimentèrent des infusions animales ou végétales avec de l'air qu'ils avaient fait passer respectivement au travers d'un serpent inerte au rouge ou sur de l'acide sulfurique et de la potasse. Dans les deux cas, l'air (refroidi dans le premier) laissait intact le jus de viande qui avait été porté à ébullition. Pasteur tira la conclusion en 1861: "*C'était là un grand progrès, parce que cela donnait gain de cause à Spallanzani contre Needham. Cela répondait à toutes les craintes de ce dernier sur l'altération possible de l'air dans les expériences de Spallanzani; cela détruisait enfin l'assertion de Gay-Lussac sur le rôle de l'oxygène dans les procédés de conserves d'Appert et dans la fermentation alcoolique*." En 1854, H.Schroeder et Th.von Dusch substituèrent au serpent chauffé ou aux tubes laveurs un long tube rempli de coton: la filtration de l'air se montra capable aussi d'empêcher la croissance microbienne dans les bouillons de viande, mais des expériences analogues conduites sur du lait bouilli échouèrent. Schroeder, qui manqua ainsi la découverte, effleurée par Spallanzani, des endospores bactériennes.

Pour répondre aux tenants des générations dites spontanées (son principal adversaire était Félix-Archimède Pouchet) et comme l'avait fait avant lui Gaultier de Claubry, Pasteur s'attacha à son tour à démontrer l'existence de germes viables dans l'atmosphère. Pour cela, il fit passer de l'air prélevé en continu dans la rue grâce à l'aspiration d'une trompe à eau, à travers un tube garni de "coton soluble", autrement dit de fulmi-coton. Le volume et le débit de l'air entraîné étaient mesurés en engageant l'extrémité inférieure du système dans un flacon jaugé de dix litres rempli d'eau: on mesurait le temps que mettait ce flacon pour se remplir d'air. Pasteur solubilisait ensuite le coton-poudre dans l'éther éthylique et l'on examinait le résidu au microscope. Il conclut ses observations par ces lignes: "*Il y a constamment dans l'air commun, un nombre variable de corpuscules dont la forme et la structure annoncent qu'ils sont organisés. Leurs dimensions s'élèvent depuis les plus petits diamètres jusqu'à 1/100 et davantage de millimètre. Les uns sont parfaitement sphériques, les autres ovoïdes; leurs contours sont plus ou moins nettement accusés. Beaucoup sont tout à fait translucides, mais il y en a aussi d'opaques avec granulations à l'intérieur. Ceux qui sont translucides, à contours nets, ressemblent tellement aux spores des moisissures les plus communes que le plus habile micrographe ne pourrait y voir de différence...*" Comme ses prédécesseurs, Pasteur avait donc constaté la présence, "*en suspension dans l'air, de corpuscules organisés, qui, par leur forme, leur volume et leur structure apparente, ne sauraient être distingués des germes des organismes inférieurs, et leur nombre en est grand sans avoir rien d'exagéré*." Mais, pour lui, "*la question vraiment intéressante*" était: "*Y-a-t-il parmi eux des germes féconds?*" Pour répondre, il fallait disposer d'une méthodologie aussi rigoureuse que possible qui n'existait pas. Là résidait le problème principal car on ne disposait pas d'autre méthode de stérilisation que celle d'Appert. Dans la mesure où l'on peut en juger, seul Gaultier de Claubry conduisit probablement ses travaux avec une relative rigueur.

Pasteur fut tenté de suivre au microscope le développement des "*très petits infusoires, bacteriums et monades*", méthode qui lui réussissait dans ses recherches sur les fermentations. Il y renonça finalement pour une question de matériel et surtout en raison des difficultés techniques. A la place, il reprit les expériences de Schwann et celles de Gaultier de Claubry. Le tube effilé du ballon d'expérience, qui contenait une eau de Levure sucrée légèrement acide au tournesol, communiquait avec un tube de platine chauffé au rouge. Pasteur faisait ensuite bouillir ce milieu de culture pendant quelques minutes, puis le laissait refroidir, ce qui provoquait une rentrée d'air, lequel passait dans le tube chauffé au rouge (les germes présents étaient détruits), puis dans un tube refroidi par un courant d'eau. L'air était donc froid en pénétrant dans le ballon que l'on scellait ensuite. Après incubation, aucune culture n'apparaissait et ce, de façon indéfinie. Le témoin était constitué par un ballon laissé ouvert à l'air libre; en un jour ou deux, le liquide qu'il contenait se remplissait de bactéries et sa surface se couvrait de Champignons filamenteux. Pasteur intercala aussi, entre le tuyau de platine et un ballon d'eau de

Levure sucrée provenant de l'expérience précédente, resté fermé et inaltéré après un ou deux mois, un autre petit tube qui contenait "des bourres de coton" qui avaient servi à filtrer de l'air ambiant à la manière dont H.Schroeder et Th.von Dusch avaient pratiqué en 1854. En les plongeant ensuite dans le liquide du ballon, il obtenait une croissance microbienne; donc des germes en suspension dans l'air avaient été arrêtés par le coton. La technique microbiologique a conservé le souvenir de ces "bourres de coton", avec le bouchage des tubes de culture au coton cardé. L'air chauffé ou filtré se montrait donc incapable de provoquer le développement de bactéries et de Champignons dans des liquides portées à 100°C. Les solutions organiques chauffées ne donnaient donc naissance à des microorganismes lorsqu'on leur fournissait de l'air naturel débarrassé de ses germes. Flourens l'exprima péremptoirement. L'expérience des flacons à col de cygne confirma ce qui précède avec un succès à peu près constant. Pasteur plaçait dans un ballon de verre une solution organique du type précédent, puis il étirait à la lampe le col du ballon de manière à lui donner diverses courbures: "*Je porte ensuite le liquide à ébullition pendant quelques minutes jusqu'à ce que la vapeur d'eau sorte abondamment par l'extrémité du col effilé restée ouverte, sans autre précaution. Je laisse alors refroidir le ballon. Chose singulière (...), le liquide de ce ballon restera indéfiniment sans altération (...), c'est une conserve d'Appert excellente.*" Le contenu du flacon ne se modifiait donc pas bien que la solution fût en relation directe avec l'atmosphère car les poussières étaient retenues par la courbure du tube en S. La contre-épreuve consistait à couper le col à la verticale du ballon: le liquide se troublait alors rapidement par suite de l'arrivée de poussières extérieures. Il en était de même lorsqu'on amenait dans le col de cygne une goutte du liquide, laquelle se peuplait de germes alors que le liquide du ballon restait inaltéré.

### La création de l'aérobiologie et ses conséquences

Les contemporains de Pasteur, comme lui-même, soulignèrent sagement les limites de ses travaux: Pasteur avait montré que la génération spontanée des microbes n'existait pas dans des conditions expérimentales données, mais il ne prouva pas qu'elle était impossible: "*Dans les sujets de cet ordre, on ne peut pas prouver par la négative,*" dit-il lui-même au début de sa conférence à la Société chimique de Paris, le 19 mai 1861. Les conséquences immédiates de ses travaux furent techniques comme l'écrivit Miquel en 1883: "*Les expériences de M.Pasteur (...) démontrent une seule chose, la difficulté de réaliser expérimentalement la genèse spontanée qu'on avait eu le tort de considérer comme un fait facile à mettre en évidence. Les expériences de M.Pasteur ont rendu un immense service à la Science, en dévoilant les causes d'erreurs multiples qui attendent les savants adonnés aux études biogéniques; les hétérogénistes de bonne foi l'en devraient remercier sincèrement.*" Elles se traduisirent en premier lieu par la création de l'aérobiologie à partir de 1859-1860 environ Pasteur donna l'exemple en allant prélever de l'air dans les caves de l'Observatoire de Paris, puis dans la région d'Arbois et enfin au Montanvers, près de Chamonix, à 2000 mètres d'altitude. A cette occasion, il réalisa l'expérience que Ch.Bonnet avait suggérée en 1771, mais que Spallanzani n'exécuta pas. La technique de Pasteur, copiée sur celui-ci, était simple. Il plaçait environ 100 ml d'eau de Levure glucosée dans des ballons de 250 ml, dont il effilait les cols, faisait bouillir pendant quelques minutes et fermait pendant l'ébullition. Il fallait pour cela une dextérité peu commune, ce qui fit écrire à Miquel que la méthode fit beaucoup de victimes dans la science. Arrivé au lieu prévu, Pasteur ouvrait successivement vingt ballons en brisant les pointes. En raison du vide des flacons, "*l'air s'y précipitait avec violence, entraînant avec lui toutes les poussières qu'il tient en suspension.*" Puis, il refermait à la flamme et mettait à incuber entre 25°C et 30°C environ. Il obtint huit flacons positifs à côté d'Arbois (Jura), cinq sur une petite sommité du Jura à 850 m d'altitude, un seul sur la Mer de Glace. Auparavant, une expérimentation à l'Observatoire de Paris avait donné onze ballons positifs dans la cour et un seul sur dix dans la cave. Comme Gaultier de Claubry, Pasteur montrait donc que le contenu microbien viable de l'air, loin d'être constant, variait avec les lieux et les saisons, leur nombre étant petit à la campagne ou dans les forêts, et insignifiant en montagne, surtout à haute altitude.

Jugeant sa technique insuffisante (difficultés pour fermer les ballons et pour connaître le volume d'air introduit lors de la rupture de la pointe, encombrement des laboratoires par des ballons volumineux et nombreux, etc...), Pasteur chercha à l'améliorer, puis il s'arrêta de travailler dans la voie nouvelle dont il avait posé les principes. Cependant, l'élan donné amena des chercheurs de toute l'Europe à déterminer la nature des germes atmosphériques. De nouvelles méthodes de prélèvement furent mises au point en utilisant l'aspiration de l'air (aéroscope de Pouchet) ou l'action du vent dont le premier modèle fut construit par l'anglais Maddox (Londres), le suivant par Cunningham à Calcutta, puis par Miquel au Parc de Montsouris, à Paris. Ces appareils étaient très mobiles sur un axe. Une sorte d'anémomètre destiné à estimer approximativement les volumes d'air étudiés furent adjoints à ces aérosopes. Le plus souvent, les poussières atmosphériques prélevées étaient piégées par des lames enduites de glycérine. Les techniques n'ont pas fondamentalement changé depuis. On fit très rapidement des catalogues de bactéries, champignons et pollens atmosphériques et l'on étudia l'effet des facteurs abiotiques tels que la température et l'humidité sur la numération des microorganismes atmosphériques. L'augmentation des propagules, conidies et hyphes pendant les périodes humides fut observée dès 1880, de même que la diminution des germes après les pluies, les effets du vent sur les sols et sur les surfaces aquatiques polluées avec production d'aérosols, la composition microbienne des atmosphères confinées. En France, Lemaire fit des travaux multiples

sur l'air de casernes, de salles de malades, d'amphithéâtres de dissection; Schoenauer, puis Miquel développèrent l'aérobiologie à l'Observatoire de Montsouris; en 1877, G. Tissandier fit paraître son livre sur "*Les poussières de l'air*" et Miquel le sien sur "*Les organismes vivants de l'atmosphère*" (1883) avec de très belles planches de spores fongiques; en Suisse, Yung étudia l'air de son pays et les poussières récoltées sur la neige en montagne. Citons encore Silvestri, en Italie (Catania), Salisbury, aux Etats-Unis.

Dans la même période, en Angleterre, un physicien, J. Tyndall (1820-1893) institua de nouvelles expériences pour combattre les résurgences de l'hétérogénéité. Il utilisait pour cela une caisse en bois avec une fenêtre en verre à l'avant, et une porte à l'arrière. Deux autres fenêtres étaient aménagées dans les parois latérales afin de permettre le passage d'un faisceau de lumière. Le fond était percé de trous dans lesquels on disposait des tubes à essai. Deux serpentins, selon un principe imaginé par Pasteur, permettaient une communication stérile entre l'atmosphère et l'air de la chambre. Une pipette mobile, se mouvant de haut en bas et serrée par un joint d'étoupe et de ouate visqueuse, permettait de remplir les tubes de l'extérieur. Pour les expériences, après avoir laissé l'appareil au repos pendant un certain temps, on remplissait les tubes avec la pipette lorsque l'on avait constaté que l'air était devenu optiquement vide, puis on les abaissait dans une saumure bouillante où ils étaient maintenus pendant cinq minutes. Avec ce système, Tyndall démontra que les liquides qui ne contenaient que des bactéries végétatives étaient facilement stérilisables à une température inférieure à celle de l'ébullition, tandis que la présence de germes résistants rendait la stérilisation beaucoup plus aléatoire. Les poussières en suspension d'une chambre close tombent graduellement au sol en laissant un air optiquement vide. Dès lors, Tyndall pensa qu'un liquide putrescible, porté à ébullition dans une portion d'espace privée de toute poussière, devait se conserver inaltéré de façon indéfinie après refroidissement. L'expérience vérifia ses vues: les liquides stérilisables sous pression normale ne s'altèrent pas, confirmation pure et simple des travaux de ses prédécesseurs. Répétées à une année d'intervalle, ces expériences d'abord concluantes fournirent ensuite des résultats contradictoires, notamment avec l'infusion de foin. Le physicien anglais sut reconnaître alors l'extraordinaire résistance de certaines cellules, point négligé par Pasteur, et inventa la technique de stérilisation par chauffage discontinu, dite méthode de tyndallisation. Ses observations permirent de distinguer deux phases chez certaines bactéries: l'une relativement thermolabile, détruite par cinq minutes d'ébullition, l'autre thermorésistante à un point incroyable. C'était la découverte des endospores bactériennes. Il est important de remarquer le rôle de "l'entrecroisement" des disciplines, la physique et la biologie, pour arriver à une découverte fondamentale.

Pasteur pressentit très tôt les développements médicaux possibles de ses recherches. L'évidence de la présence de microorganismes dans l'air amena le chirurgien britannique Joseph Lister, suivi en France par Alphonse Guérin, à introduire en chirurgie l'antisepsie, puis l'asepsie chirurgicales avec comme résultats toutes les conséquences que l'on pouvait prévoir sur le succès et la progression des techniques chirurgicales et médicales. L'aérobiologie était mûre et la microbiologie, l'épidémiologie et la médecine allaient pouvoir faire les progrès que l'on sait.

## Bibliographie

On trouvera les références des auteurs cités *in*: R. Moreau (1992) Les expériences de Pasteur sur les générations spontanées. Le point de vue d'un microbiologiste. 1ère partie: la fin d'un mythe. *C.R. Acad. Sci. Paris, Série générale, La Vie des Sciences*, 9, 3, 331-360.- 2ème partie: les conséquences. *Id.*, 9, 4, 287-321.

## Résumé

L'aérobiologie est la conséquence des travaux de Louis Pasteur sur les générations dites spontanées et pour une part de ceux de Spallanzani, qui fut son précurseur. Pasteur fut le premier à effectuer des mesures de densités microbiennes et à décrire les microorganismes en suspension dans l'atmosphère à partir de 1860 environ, donnant une impulsion immédiate et mondiale aux recherches de ce type. L'antisepsie, l'asepsie et de grands progrès en médecine découlèrent de ses travaux.

## Summary

Aerobiology is a consequence of Pasteur's works on spontaneous generation, and partly of Spallanzani's works, who was his precursor. Pasteur was the first to measure atmospheric microbial densities and to describe micro-organisms suspension in atmosphere from about 1860, giving an immediate and world-wide impulse to this type of research. Antisepsis, asepsis and medical progress were consequences of his work.

## Survie et adhésion des microorganismes dans l'environnement. Le débusquement enzymatique

par

Richard Moreau \*

Les travaux de Pasteur entraînent l'apparition de disciplines nouvelles grâce à qui l'épidémiologie et la médecine firent de grandes avancées. Néanmoins, tout ne fut pas gagné car ces progrès furent suivis de déboires, l'hospitalisme par exemple, qui est dû à la rémanence de germes résistants aux antibiotiques dans les locaux et qui est lié à la charge microbienne des poussières atmosphériques, à leur dépôt, à leur adhérence et à leur survie sur les surfaces et sur les objets. Nous allons examiner ces problèmes d'après R. Moreau (1993) et J. Vial et R. Moreau (1993), où l'on trouvera une bibliographie suffisante sur ces questions.

### La survie des microorganismes

Le point essentiel est la viabilité des microorganismes car c'est d'elle que dépendent toutes les conséquences ultérieures, notamment du point de vue de la santé publique et bien entendu de leur numération. Lorsque des germes arrivent ou sont introduits dans un milieu quelconque, quelles sont donc ses chances de survie? Celle-ci dépend de facteurs constitutifs (les bactéries à Gram positif paraissent mieux survivre que celles à Gram négatif) et de leur valence écologique. De ce point de vue, le premier facteur est la température. Certains germes résistent mieux aux basses températures, mal à celles élevées et inversement. Le second facteur déterminant est l'humidité. Ainsi, l'assèchement des sols se traduit par une forte mortalité bactérienne, mais E. Van Oye a montré que des *Enterobacteriaceae* survivaient desséchées de quelques jours à des mois, selon les espèces sans perdre leur pouvoir pathogène, leurs propriétés biochimiques, ni leurs structures antigéniques. Dans des sables sahariens très secs, j'ai trouvé moi-même des pourcentages de bactéries non sporulées atteignant en moyenne 80 pour cent, alors que je m'attendais à n'observer que des bactéries sporulées très résistantes à la dessiccation. L'explication est que les bactéries possèdent une résistance très élevée à la sécheresse. Cela explique que les premières peuvent rester longtemps viables dans l'atmosphère. Néanmoins, cette viabilité sera d'autant plus élevée que l'humidité de l'atmosphère sera plus grande. Il en va de même pour les virus, ce qui explique en partie que les attaques par le virus grippal interviennent plutôt en automne et en hiver. Virus et bactéries ont alors une inactivation (perte de leur capacité à infecter les cellules) pour les premiers ou une mortalité beaucoup plus faibles parce que l'atmosphère est plus humide et les températures plus fraîches. Enfin, les bactéries sont généralement sensibles aux pH bas, mais ceux-ci affectant plus la disponibilité des nutriments que la viabilité des germes. La pression d'oxygène intervient bien entendu, mais les micropopulations aérobies créent des microhabitats anoxiques qui facilitent le développement ultérieur de bactéries anaérobies. Enfin les germes possèdent souvent des stratégies de rechange: *E. coli* aérobie-anaérobie facultatif tolère l'absence d'oxygène grâce à ses cytochromes terminaux qui diffèrent par leur affinité pour l'O<sub>2</sub> et leur efficacité à conserver l'énergie; certains *Nitrobacter*, genre pourtant connu pour sa sensibilité au manque d'O<sub>2</sub>, peuvent se développer en anaérobiose, mais alors ils réduisent les nitrates. L'inactivation des virus procède d'une dissociation de leurs composants suivie de la dégradation du génome. Elle est en relation directe avec l'augmentation de la température, qui intervient elle-même sur d'autres facteurs comme le taux d'oxygène: plus celui-ci est élevé, plus l'inactivation est rapide, mais pas toujours. La sensibilité des virus varie avec les espèces: on a montré par exemple que des entérovirus à ARN pouvaient disparaître d'effluents avant des réovirus eux-aussi à ARN et des adénovirus à ADN, alors qu'habituellement, les ARN viraux sont dégradés rapidement en milieu humide. Certains virus sont donc plus fragiles que d'autres, celui non conventionnel de l'encéphalite spongiforme bovine étant particulièrement résistant. Enfin, l'inactivation des virus est corrélable avec leur degré d'adsorption (leurs acides nucléiques sont protégés contre les nucléases), laquelle dépend du pH, de la teneur du milieu en cations et en matière organique qui est protectrice, de l'englobement par des glycolyx, etc. Enfin, elle est liée à la dessiccation au point que l'on ne trouve pas de virus viables dans les milieux secs.

La survie des germes dans l'environnement dépend aussi de facteurs intrinsèques qui influencent la croissance des germes et sur la compétition. En conditions oligotrophes, cas de la plupart des milieux naturels,

---

\* Professeur de Microbiologie appliquée, Correspondant national de l'Académie d'Agriculture de France, UFR de Sciences, Université de Paris XII, avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil Cedex, France.

elle dépend des conditions de vie des bactéries avant l'état de jeûne et de leurs réserves. D'autres adaptations existent comme la transformation de la paroi cellulaire (substitution d'acide teichuronique à l'acide teichoïque) qui procure aux bactéries une meilleure affinité pour certains nutriments ( $Mg^{2+}$ , phosphates), la production d'exoenzymes (*Bacillus licheniformis* synthétise une protéase si le milieu est pauvre en azote, une phosphatase alcaline et une ribonucléase s'il est limité en phosphates) ou de substances extracellulaires chélatrices d'éléments-traces (sidéochromes pour  $Fe^{3+}$ ), etc. Les endospores assurent une rémanence longue aux bactéries qui en possèdent, mais le taux de survie de ces formes de reproduction change avec les espèces (*B. megaterium*: 15 pour cent; *Bacillus subtilis*: 80 pour cent). De plus, il dépend de la composition du milieu. Etc.

Les facteurs abiotiques et biotiques, les effets toxiques ne réduisent pas forcément les risques pathogènes. Par contre, leur conjonction crée des modifications dans les micropopulations en intervenant sur la croissance des bactéries et sur la compétition. La croissance est fonction des aliments et des facteurs d'environnement. La "demi-vie" des populations bactériennes est de 1 à 20 jours. Puis, après une décroissance exponentielle due à l'épuisement des aliments ou à l'excès de métabolites toxiques, 2 à 4 pour cent des cellules continuent à croître aux dépens de cellules mortes. Dans l'équation qui exprime le taux de croissance des bactéries, intervient une constante  $K_s$  analogue à celle de Michaelis-Menten, égale à la concentration du substrat qui permet une croissance équivalente à la moitié du taux de croissance maximum ( $\mu_{max}$ ). Ses valeurs pour *E. coli* sont de 0,18 et de 0,03  $\mu g$  par litre, c'est-à-dire extrêmement peu, pour le glucose et le tryptophane, et s'expliquent par l'affinité élevée de nombreuses perméases. Elles permettent des survies longues même si le milieu est très pauvre. En fonction de leur  $K_s$ , les bactéries ont deux stratégies: s'adapter aux conditions oligotrophes (*K-strategists* à  $K_s$  bas) au prix d'une croissance lente, ou avoir une descendance abondante comme les endospores capables après germination d'une croissance rapide à un taux de croissance maximum quand se présentent assez d'aliments ( $\mu_{max}$ -strategists, copiotrophes). Le caractère oxydatif des souches est un facteur sélectif supplémentaire car les glucides sont consommés plus vite que par voie fermentative. Lent aux basses concentrations de nutriments (parfois inhibiteurs) et aux faibles températures, le temps de doublement des bactéries augmente avec la nature et la concentration des premiers jusqu'à une température optimum: *in situ*, il va de quelques minutes à des dizaines ou centaines d'heures selon les espèces et détermine le succès des compétitions. En milieu pauvre, à des températures de  $+7/8^{\circ}C$  à  $+15^{\circ}C$ , l'avantage est aux espèces oligotrophes psychrophiles autochtones; si la charge organique et la température augmentent, la situation s'inverse. Enfin, le phénomène de syntrophie est souvent responsable du maintien d'auxotrophes qui obtiennent des nutriments de l'activité métabolique d'autres espèces. On a montré ainsi que la survie de *Legionella pneumophila* pouvait résulter d'une succession simple: des *Flavobacterium*, *Pseudomonas*, *Acinetobacter*, consommateurs primaires, procurant des nutriments complexes à la Légionelle, consommateur secondaire qui, *in vitro*, croit en satellite autour d'elles. On connaît des phénomènes identiques entre *Legionella* et Cyanobactéries et l'on a même décrit des croissances intracellulaires de *Legionella* dans des amibes. La faible ration d'entretien, la possibilité d'échanges nutritionnels et l'adhésion expliquent la longue rémanence et le développement de ces bactéries dans des milieux pauvres comme l'eau de condensation des conditionneurs d'air.

## L'adhésion des bactéries

Bien que les microorganismes disposent de nombreuses possibilités de résistance aux facteurs extérieurs, ils sont condamnés à disparaître dans la nature s'ils ne disposent pas de certaines conditions structurales, d'une aptitude spécifique à sporuler ou s'ils ne sont pas pris en charge par des supports inertes ou vivants, c'est-à-dire s'ils n'y adhèrent pas. En effet, quels que soient les milieux et la nature des supports rencontrés, l'adhésion des microorganismes est un phénomène naturel et déterminant pour leur survie. Au préalable, il doivent s'être rapprochés suffisamment des surfaces à la suite de déplacements actifs dans le cas des microorganismes mobiles, ou passifs à la suite pour ceux-ci de mouvements des masses d'air et d'eau ou à différents phénomènes physiques comme la sédimentation, les mouvements browniens, les turbulences du milieu, etc... Deux phénomènes interviennent ensuite et successivement, l'adhésion et l'adhérence.

L'adhésion dite primaire est le résultat de la compétition entre les forces d'attraction physico-chimiques et les forces de répulsion électro-statiques: charges de surface des germes et des particules, forces de Van der Waals, forces d'inertie et centrifuge et forces de Coulomb, liaisons hydrogène qui créent parfois des interactions fortes (pour les virus notamment). En ce qui concerne les microorganismes, un point essentiel est leur charge de surface qui est déterminée par la nature des constituants pariétaux cellulaires externes, dont les terminaisons spécifiques impliquent des phénomènes de reconnaissance par affinités ou par répulsion physico-chimique. Les macro-molécules de surface possèdent en effet de nombreuses fonctions en bout de chaînes:  $HPO_3^-$ ,  $HCO_2^-$ ,  $HSO_3^-$  dont certaines sont dissociées en milieu aqueux. Par exemple, chez les bactéries à Gram positif, les acides teichoïques de la paroi voient leur électronégativité gouvernée par des groupes ester-phosphate et ester-alanine tandis que chez les bactéries à Gram négatif dont la paroi plus fine et plus complexe est composée de lipoprotéines, de protéines capsulaires et d'enzymes, c'est le degré d'ionisation des groupes carboxyles et aminés qui confère aux protéines leur caractère amphotère, oriente la positivité, la négativité ou l'absence de charge des

cellules. *In vitro*, la charge nette de celles-ci est négative aux pH supérieurs à leur point isoélectrique (pI), mais la négativité diminue sous ce pI ou lorsque la valence ou la concentration des cations augmente, même s'ils sont monovalents, en application de la loi de Schultz-Hardy. Dans des solutions peu concentrées de chlorures (10 à 20 ppm ou mg L<sup>-1</sup>) par exemple, le pI des bactéries passe d'un pH de 2,5-3,5 pour des solutions de cations mono- ou divalents, à 5,0 pour des solutions de même force ionique de LaCl<sub>3</sub> ou CrCl<sub>3</sub>, à 7,0 pour des solutions de FeCl<sub>3</sub> ou AlCl<sub>3</sub>, ce qui correspond probablement ici au pH des hydroxydes polymérisés de Fe et d'Al fixés par biosorption sur les cellules. Les virus ont aussi une affinité élevée pour les oxydes de fer. Les métaux lourds interviennent par suite d'interactions électrostatiques avec d'autres cations avec les exopolymères chargés négativement et les pigments bactériens ou par formation de liaisons covalentes. Les germes sont alors fixés fortement. Le pI des virus étant généralement inférieur à 5 (mais les poliovirus ou certains phages ont deux pI: entre 3,0 et 9,0 selon les espèces), seules les surfaces les plus acides les retiennent et toute élévation du pH se traduit par leur élution. Toutefois, des virus chargés négativement sont susceptibles de se fixer sur les sites négatifs par suite d'un phénomène de protonation de leurs capsomères protéiques avec les cations. Les organites des bactéries jouent aussi un rôle important dans la fixation électrostatique. En effet, en raison de leur faible diamètre (3 à 40 nm), de leur longueur (plusieurs µm), de leur hydrophobicité et de la charge positive de leurs extrémités qui modifie la charge nette des cellules, les pili communs ou fimbriae et les pili sexuels, caractéristiques des bactéries à Gram négatif, franchissent physiquement la couche de Stern et même la barrière d'énergie due à la répulsion électrostatique. Ils sont probablement à l'origine de l'adhésion initiale des cellules dans ce cas. Les fibres caudales des bactériophages jouent un rôle identique. Enfin, bien que les flagelles soient beaucoup moins nombreux que les pili, on signale des cas de fixation de bactéries par leur flagelle polaire (*Pseudomonas fluorescens*). L'adhésion dépend aussi de la variabilité spécifique et clonale des microbes. Un bel exemple est celui d'*Aeromonas salmonicida*, agent d'une furonculose des Poissons, dont les souches virulentes sont chargées négativement et les avirulentes positivement. Dans du sable dont les grains ont été rendus positifs par fixation d'un complexe acides humiques/acides aminés, les cellules avirulentes d'*Aeromonas salmonicida* sont repoussées tandis que les virulentes, à charge négative, adhèrent aux grains par échange avec les acides humiques qui sont libérés. Les secondes survivent plus longtemps car, auxotrophes pour les acides aminés, elles trouvent leur nourriture à la surface des grains. On conçoit sans peine les conséquences épidémiologiques d'un tel phénomène. La variabilité microbienne et la nature des adsorbants jouent donc tous deux un rôle important dans l'adhésion comme d'ailleurs dans l'adhérence dont il est question un peu plus bas. Beaucoup de matériaux: constituants des sols, géotextiles, moquettes, etc... ayant un comportement amphotère en milieu aqueux, on voit que l'adhésion électrostatique des microbes est un phénomène individuel pour l'adsorbant comme pour l'adsorbé. Lorsque les potentiels électro-cinétiques des particules en présence sont réduits ou modifiés, les forces de Van der Waals suffisent à contrebalancer la répulsion électrostatique résiduelle. L'attraction massive s'ajoute à la gravité ou aux forces d'inertie et centrifuge lorsqu'elles amènent un microbe à proximité d'une surface, et aux forces de Coulomb qui contribuent à maintenir les particules en place. Enfin, les liaisons hydrogène créent des interactions fortes avec les précédentes. L'adhésion qui suit est alors rapide (une dizaine de secondes).

L'étape qui suit est en bonne partie irréversible. L'adhésion électro-statique correspond au minimum primaire d'énergie pour lequel la distance séparant les microorganismes des surfaces est inférieure à un nanomètre. L'adhérence, processus qui constitue souvent la première phase de la colonisation des microhabitats vierges dans la nature, intervient alors par suite de la production de substances organiques appelées glycocalyx ou adhésines, qui sont synthétisées par les bactéries et par les champignons. Chez les bactéries, ces substances, souvent proches des structures pariétales, sont très diverses: polysaccharides extracellulaires produits notamment dans la couche muqueuse quand elle existe, protéines membranaires, enzymes, acides lipoteichoïques, protéines à activité lectine, capsules, ADN des cellules mortes. Leur intervention dans la structuration des sols comme ciments et dans la rétention des microbes est attestée par la microscopie électronique ou le traitement par des hydrolases qui libère massivement les cellules et détruit la structure. Une fois la barrière d'énergie franchie, les adhésines s'adsorbent sur les surfaces par simple interaction électrostatique: les pH acides et les cations di- ou trivalents ont la même influence que plus haut sur les polysaccharides anioniques; par contre, les glycocalyx neutres sont adsorbés massivement. Les liaisons hydrogène et ioniques et les forces de Van der Waals interviennent aussi. Lorsqu'il s'agit d'argiles, celles-ci sont floculées et voient augmenter leur cohésion. Le gel organominéral formé englobe les germes en amas qui peuvent atteindre plusieurs dizaines de micromètres. Cellules isolées, colonies entières et virus se trouvent alors masqués et échappent à la prédation et aux recherches, ce qui a motivé la création de la méthode du débusquement enzymatique. De plus, les adhésines ont un effet antitoxique en chélatant les métaux lourds et protègent les germes contre la dessiccation et les chocs osmotiques. Enfin, le réseau qu'elles constituent joue un rôle important dans la transmission des nutriments aux germes, ce qui favorise généralement leur croissance et leur procure souvent un avantage sélectif dû à la meilleure mise à disposition des nutriments et à l'allongement de la phase exponentielle de croissance qui en résultent. On notera aussi que la formation de fibres glycocalytiques dans les milieux oligotrophes doit probablement être considérée comme une stratégie de survie des microorganismes dans les milieux pauvres, cas général dans l'environnement.

## Le débusquement enzymatique

Infections nosocomiales, allergies, etc... sont devenues la rançon trop fréquente de progrès trop tôt considérés comme définitifs et de techniques. Elles sont dues généralement à l'implantation de germes pathogènes ou opportunistes et à leur survie selon les mécanismes que je viens de résumer rapidement. Il est donc très important de pouvoir contrôler aussi exactement que possible la charge microbienne des milieux que l'on étudie. Or, les techniques de contrôle sont généralement insuffisantes et les textes ne représentent souvent qu'un état des progrès de la science qui est évolutive tandis que les règlements ne le sont pas. Les contrôles microbiens sont basés en effet sur des principes qui, sur le fond, n'ont pas évolué significativement depuis le début du siècle. Des techniques récentes comme celle des membranes filtrantes ont apporté des commodités nouvelles sans améliorer la sensibilité des méthodes, bien au contraire. Toutes donnent des résultats par défaut en raison de l'adhésion des microorganismes aux supports. Et ne parlons pas des méthodes ultra-simplifiées, comme celle de contact, qui ne peuvent donner qu'un image très approchée de la réalité. Lorsqu'une bactérie adhère électrostatiquement à une surface, elle reste facilement détachable sous des influences physiques (forte agitation, sonication), souvent traumatisantes pour les cellules d'ailleurs, ou chimiques (des solutions faiblement concentrées de cations monovalents, sels d'ammonium notamment, et même l'eau du robinet suffisent à désorber les microbes) qui constituent les méthodes habituelles de préparation des échantillons. Par contre, l'adhérence biochimique est généralement définitive et péjore fortement les numérations microbiennes. C'est pour y remédier que J.Brisou (1980), puis J.Brisou et R.Moreau (1988) et enfin par M.F.Thorel et R.Moreau (1991, 1992) ont proposé le traitement des échantillons avant analyse par des hydrolases, sujet sur lequel je travaille presque exclusivement depuis une dizaine d'années. Cette démarche nouvelle consiste à libérer les microbes fixés biochimiquement. Les hydrolases agissent sur les adhésines, parfois aussi sur les structures cellulaires de surface, sur les supports eux-mêmes ainsi que sur les magmas polysaccharidiques principalement, organisés par les germes lors de la colonisation des interfaces, et rompent les liens qui les unissent à leurs supports naturels. La méthode consiste à traiter l'échantillon à analyser avec une solution tamponnée d'une enzyme déterminée dans des conditions aussi proches que possible de sa zone optimale d'activité et respectueuses de la viabilité des microorganismes. On travaille donc généralement à un pH aussi proche que possible de la neutralité, à des températures comprises habituellement entre 25 et 37°C. et en milieu isotonique, et l'on ensemence dans les milieux habituels en tenant compte de ce que la densité microbienne est devenue souvent plus élevée que dans l'échantillon primitif à cause de la libération des cellules collées. Après traitement, on observe en général une augmentation du nombre et/ou de la variété des microorganismes par rapport au témoin. Cette technique n'est pratiquement pas traumatisante pour les cellules, ce qui est loin d'être le cas de tous les autres moyens de décollement ou de mise en suspension des cellules bactériennes (agitation, sonication), comme le montrent le tableau I extrait d'un rapport de stage de maîtrise (E.Robine) exécuté en 1994 sous ma direction. Des essais sur deux espèces de Mycobactéries (*M.chelonae* et *M.aquae*, sérotype 4) ont été aussi démonstratifs: on n'a observé aucun effet notable des enzymes sur la viabilité de ces germes (M.F.Thorel et R.Moreau, 1992), sinon très faible sur la seconde après un nombre d'heures de contact qui excède fortement le temps de contact nécessaire puisque l'on retient en général 30 minutes. Cette durée suffisante évite les croissances parasites (pour les bactéries courantes) dues à la libération de molécules facilement métabolisables. Je précise que la technique implique la détermination préalable des enzymes efficaces puisque la composition des adhésines varie avec les espèces microbiennes. Néanmoins, les enzymes couramment utilisées sont les protéases (trypsine), amylases, amyloglucosidases et hyaluronidases, les premières donnant généralement les meilleurs résultats. Ceux-ci varient avec les espèces, les supports, les températures d'incubation (tableaux II, III et IV). Mais ce sont les manifestations habituelles de la variation bactérienne dans les milieux complexes. En conditions de laboratoire, la méthode est facilement standardisable.

## Résumé-conclusion

La survie des microorganismes dans l'environnement est un phénomène peu prévisible, dominé en grande partie par leur adhésion sur des supports, ce qui les fait échapper aux numérations. Les normes de salubrité et les méthodes de dénombrement des germes doivent donc être remises en question. Le débusquement enzymatique, tel qu'il est développé actuellement, paraît donner l'idée la plus approchée possible de l'importance des micropopulations dans un milieu donné.

## Summary

Survival of microorganisms depends on their status (free or fixed) and on the abiotic and biotic factors. Indeed, estimation of the bacteria is hazardous. Salubrity norms and germs counts methods must be put back into the melting-pot. Enzymatic treatment as it is developed today seems to give the closest idea of the importance of micropopulations in a given environment.

## Bibliographie

- Brisou J. (1980) Débusquement enzymatique des bactéries fixées sur les sédiments marins. *C. R. Acad. Sci.*, **290**, D, pp. 1421-1424.
- Brisou J. et Moreau R. (1988) Stratégie d'étude microbiologique des eaux et des sédiments souterrains. *4e Coll. Hydrol. en Pays Calcaire. Ann. Scient. Univ. Besançon, Géol.*, Mém. H.S., **6**, pp. 41-48.
- Moreau R. (1993) Mécanismes de rétention et de déplacement des microorganismes dans les sols. *C.R. Ac. Agric. France*, **79**, n°6, pp. 39-46.
- Moreau R. et Vial J. (1993) Conséquences sanitaires du devenir des microorganismes dans les sols. *C.R. Ac. Agric. France*, **79**, n°6, pp. 47-54.
- Thorel M.F., Moreau R., Charvin M. et Ebiou D. (1991) Débusquement enzymatique des Mycobactéries dans les milieux naturels. *C. R. Soc. Biol.*, **185**, pp. 331-337.
- Thorel M.F et Moreau R. (1992) Mycobacteria of subalpine soils. *Int. Coll. on the Integration of traditional and modern methods in the control of leprosy and in the study of mycobacterial taxonomy*. 13th Conf. de l'International Working Group of Mycobacterial Taxonomy (IWGMT) Anvers, déc. 1992 (poster).

## Tableaux

	Numération initiale	Mortalité après agitation	Mortalité avec enzymes	Mortalité avec agitation et enzymes
Nombre de bactéries x 10 <sup>4</sup>	160	68	160	128
% de mortalité	0%	58%	0%	20%

**Tableau I-** Mortalité dans une suspension d'Entérocoque après agitation et après traitement enzymatique (cf. texte). Les enzymes jouent vraisemblablement un rôle protecteur dans le dernier cas.

Echantillons	Témoins	Cellulase	Hyaluronidase
Terre 1	0	<i>Mycobacterium chelonae</i> et diverses Mycobactéries non chromogènes	<i>M. chelonae</i>
Terre 2	0	Baar	Baar
Terre 3	0	0	Baar
Terre 4	<i>M. chelonae</i>	<i>M. chelonae</i>	Baar
Humus forestier	<i>M. fortuitum</i> (complexe)	Baar	Baar
Tourbe	<i>M. terrae</i> (complexe) et diverses Mycobactéries scotochromogènes	<i>M. chelonae</i>	Diverses Mycobacteries non chromogènes

**Tableau II-** Isollements de Mycobactéries à partir de milieux divers. Baar: Mycobactéries acido-alcool- résistantes non déterminées. (D'après M.F.Thorel et coll., 1992)

Enzymes utilisées	Montmorillonite	Kaolin	Polyvinylpyrrolidone
α-amylase	0	10	30
β-amylase	22	5	5
amyloglucosidase	6	0	0
fructosidase	0	3	4
β-glucuronidase	5	1	0
hyaluronidase	0	67	13

**Tableau III-** Débusquement d'une souche de *Staphylococcus aureus* fixée à 100% sur trois types de supports différents (nombre de colonies comptées sur milieu de Muller-Hinton). D'après J.Brisou et R.Moreau, 1988.

Températures d'isolement	20°C	30°C	37°C
Nombre de souches isolées	110	28	0

**Tableau IV-** Isolement de Mycobactéries de l'environnement. Rôle de la température (d'après M.F. Thorel et R.Moreau, 1992). Le nombre d'isollements est fonction du comportement des bactéries par rapport à la température.

## ÉTUDE COMPARATIVE DE L'AÉROSOL ATMOSPHÉRIQUE DANS L'ENCEINTE DU MÉTRO PARISIEN

**C. Le Guern <sup>1,2</sup> - M. Attoui <sup>1</sup> - A. Renoux <sup>1</sup> - C. Parfait <sup>2</sup> - F. Petit-Coviaux <sup>3</sup>**

<sup>1</sup> -Laboratoire de physique des aérosols et de transfert des contaminations - U.P XII

<sup>2</sup> -Régie Autonome des Transports Parisiens

<sup>3</sup> -Laboratoire d'Hygiène de la Ville de Paris

### INTRODUCTION

Dans le cadre de la surveillance de la pollution atmosphérique urbaine, la connaissance des polluants particuliers est essentielle. Les particules fines en suspension constituent un facteur de risque sanitaire important, à court et à long terme, comme l'ont montré récemment les études de Mr. Zmirou <sup>(1)</sup> et du groupe ERPURS <sup>(2)</sup>, fondées sur l'examen des publications mondiales postérieures à 1980.

Notre étude menée dans l'enceinte du métropolitain est l'objet d'un partenariat entre la RATP et le LHVP. Elle a pour objectif de dégager une méthode de mesure de l'empoussièrement, simple et en continu. Les niveaux observés permettront d'infléchir les réglementations en cours.

### MÉTROLOGIE

Les paramètres pris en compte sont : l'empoussièrement global par trois techniques différentes (gravimétrie, réflectométrie et microbalance à quartz oscillant) et la granulométrie des particules. Les méthodes que nous utilisons sont :

- La technique des fumées noires (FN), imposée par la norme Afnor NF X43005 qui prend en compte les fines particules ( $\varnothing < 5 \mu\text{m}$ ) et principalement les imbrûlés. Le principe de la mesure repose sur la lecture par réflectométrie de la noirceur du dépôt de particules filtrées,
- La technique piézo-électrique de la mesure de la masse totale des aérosols qui permet à l'aide du TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) de mesurer en temps réel la concentration en masse des particules de  $\varnothing < 10 \mu\text{m}$ ,
- La technique par mesure optique des aérosols qui apprécie la répartition granulométrique de la concentration en nombre ou en masse des particules en temps réel. Son fonctionnement est basé sur le principe de la diffusion de la lumière, dont la source est une diode laser (GRIMM),

- La technique de prélèvement avec classement par taille des aérosols basée sur l'impaction inertielle des particules collectées en 9 plages granulométriques (Impacteur en cascade de type Andersen)
- La technique piézo-électrique avec fractionnement granulométrique des aérosols basée sur l'impaction inertielle des particules collectées en 6 plages de diamètre (Impacteur en cascade à quartz). Elle permet de donner la concentration des particules en temps réel.
- La technique par mesure optique (transmission) de la concentration massique totale en masse (MIE).

Caractéristiques des appareillages :

TYPE	PRINCIPE	CANAUX DE MESURE	DÉBIT	RÉSULTAT
ANDERSEN*	Impacteur en cascade	< 0.4-0.7-1.1-2.1-3.3-4.2-7-5.8-9-10 $\mu$ m	28 l / min.	$\mu$ g / m <sup>3</sup>
QCM*	Impacteur à quartz	< 0.4-0.8-1.6-3.2-6.4-12.5 $\mu$ m	0.4 l / min.	$\mu$ g / m <sup>3</sup>
GRIMM	Diffusion lumière	> 0.8 - 1-2-3.5-5-7.5-10-15 $\mu$ m	1.2 l / min.	Particule / litre $\mu$ g / m <sup>3</sup>
TEOM	Balance à quartz	< 10 $\mu$ m	16 l / min.	$\mu$ g / m <sup>3</sup>
MIE	Diffusion de la lumière		2 l / min.	$\mu$ g / m <sup>3</sup>
FN ext	Réfectométrie	< 5 $\mu$ m		$\mu$ g / m <sup>3</sup>

\* Mesure ponctuel

## CAMPAGNE DE MESURES

Les différents prélèvements sont effectués sur le quai d'une station du métro de Paris et à l'extérieur de la station (proche de la circulation automobile) par la technique des fumées noires.

Cette campagne de mesures s'est déroulée durant deux semaines, elle se présente comme suit. Les échantillonnages se font à 1.50 mètre du sol durant la période de trafic des rames (de 6 à 1 heure du matin). Parallèlement à ces mesures de pollution particulières, les paramètres de confort (température, hygrométrie, taux de dioxyde de carbone) sont mesurés. Les résultats des mesures sont saisis par des moyens informatiques pendant la durée de la campagne de mesure.

## RÉSULTATS DE MESURES

Nos résultats de mesures se présentent comme suit :

- soit en concentration massique journalière moyenne,

Les résultats représentent la masse totale de poussière prélevée de diamètre inférieur à 10  $\mu\text{m}$  de tous les appareils sauf le QCM.

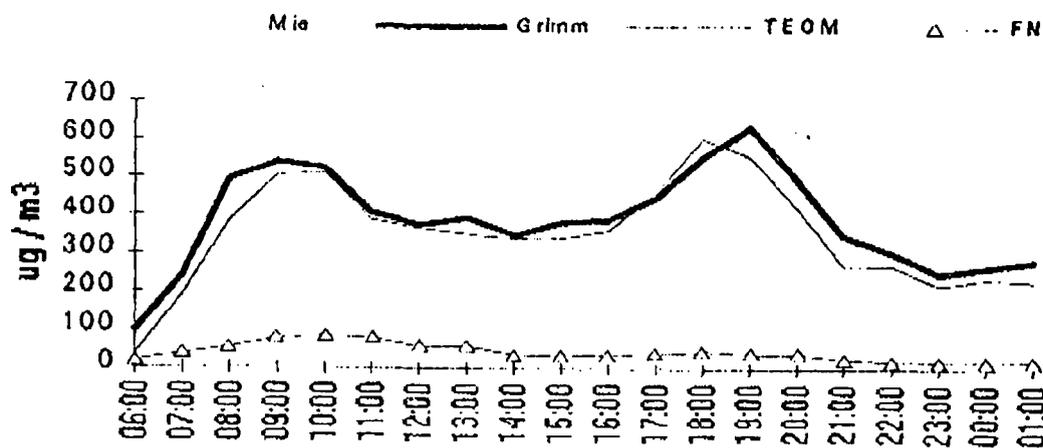
Tableau I: concentration moyenne pendant la durée du trafic

	TEOM	GRIMM	ANDERSEN	f'N ext	MIE
$\mu\text{g} / \text{m}^3$	366	271	367	42	59

- soit sous forme de profil journalier,

ce profil donne la concentration massique des particules par tranches horaires.

Figure I : Évolution de la concentration particulaire au cours d'une journée



- soit en répartition granulométrique.

Notre travail consiste à faire correspondre les plages granulométriques des différents canaux de nos appareils de mesures.

Le QCM ayant une concentration limite de saturation relativement basse, nous ne pouvons prélever que sur des temps courts (inférieurs à 2 heures). Le Grimm donne une concentration en nombre ou une concentration massique grâce à un facteur de correction obtenu par pesée d'un filtre sur lequel sont recueillies les particules prélevées.

La relation permettant de transformer une concentration numérique en concentration massique est :

$$\text{Conc. pondérale} = 1/6 \cdot \pi \cdot D^3 \cdot \rho \cdot \text{Conc numérique}$$

$\rho$  est la masse volumique des particules correspondant au facteur de correction.

Figure I : Répartition granulométrique de la concentration particulaire au cours d'une journée.

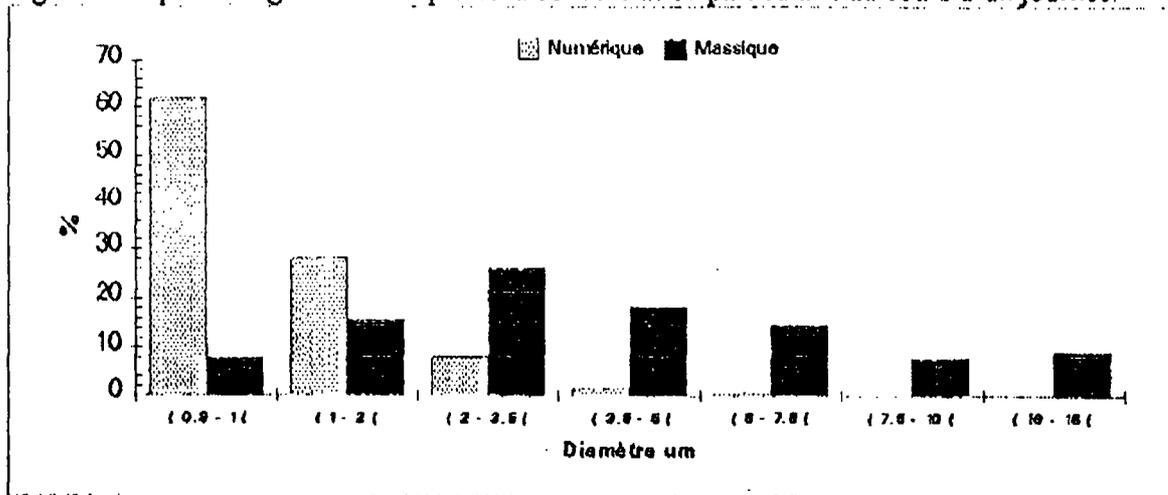


Figure II : Répartition granulométrique Andersen / Grimm - Moyenne journalière

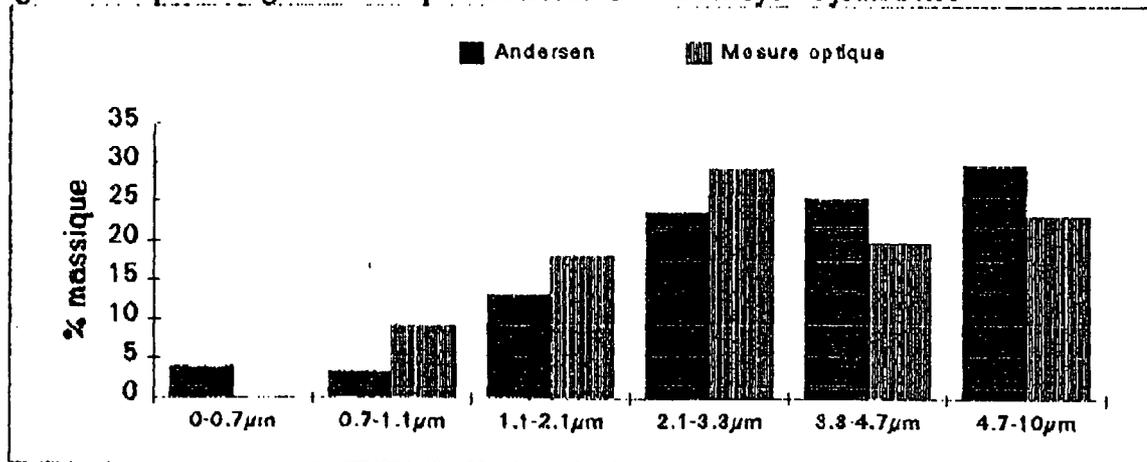
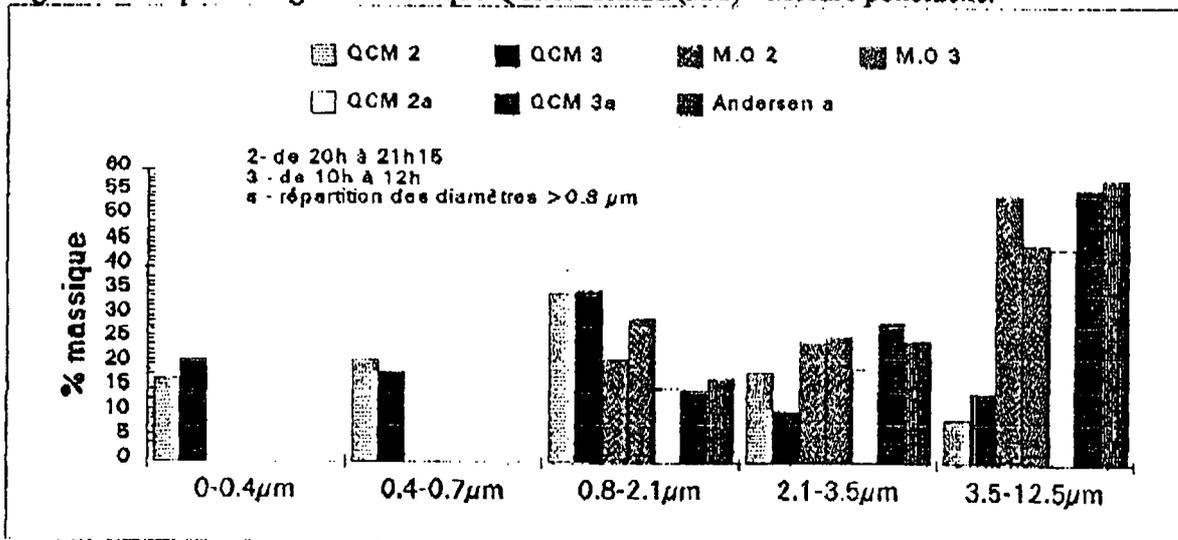


Figure III : Répartition granulométrique QCM / Grimm (M.O) - Mesure ponctuelle.



## CONCLUSIONS

Le TEOM et l'andersen donnent sensiblement les mêmes résultats en concentration moyenne journalière. La réponse différente du Grimm s'explique par la difficulté de la détermination du facteur de correction. Les résultats obtenus par le MIE présentent une très grande disparité par rapport à l'ensemble des techniques de mesure. Cela pourrait provenir d'un dysfonctionnement de cet appareil.

Nous constatons une bonne concordance du point de vue granulométrique avec le Grimm, le QCM et l'andersen pour des diamètres supérieurs à  $0.8 \mu\text{m}$ .

La différence des résultats observés entre l'andersen et le QCM, en prenant en compte tous les coupures granulométriques, s'explique par les temps de prélèvements qui sont différents. En effet, l'andersen lisse la variation de la concentration en fonction du temps tandis que le QCM nous donne des valeurs instantanées.

Cette étude a permis de mettre en évidence la complémentarité des appareils TEOM, Grimm ou QCM. Le premier permet d'apprécier la concentration pondérale sur des temps très courts (quelques minutes), les seconds fournissent la répartition granulométrique en masse ou en nombre (Grimm) également sur des bases de temps très courtes.

### Références bibliographiques

<sup>1</sup>.-ZMIROU, D., DECHENAUX, J. 1991. *L'effet conjoint de plusieurs polluants atmosphériques : une méta-analyse*, Rev. Epidém. Santé Publ., 39 : 101-110.

<sup>2</sup>.-ORS Ile de France- ERPURS 1994. *Impact de la pollution atmosphérique urbaine sur la santé en Ile de France 1987-1992*. Publication ORS, Paris.

EVOLUTION DYNAMIQUE DE LA DISTRIBUTION EN TAILLE  
DES PARTICULES ATMOSPHERIQUES ULTRAFINES  
A LA STATION COTIERE DE PORSPODER

G.TYMEN ,O. LE BIHAN, et C.DROAL

Laboratoire de Physique des Aérosols et de Radioactivité Atmosphérique, Université de Bretagne  
 Occidentale (UBO), 6, avenue Le Gorgeu, BP 809, 29200 Brest, France.  
 mail : tymen@univ-brest.fr

**DYNAMICS OF FINE PARTICLE SIZE DISTRIBUTIONS DURING GAS-TO-PARTICLE PROCESSES AT  
 PORSPODER COASTAL STATION**

Airborne particle size is a dynamic parameter which change over time resulting from various processes occurring on different time scales. During the BMCAPE CEC program, a significant number of fine particles size distributions were obtained during four intensive campaigns carried out in 1993 and 1994 at the Porspoder Atlantic coastal station. Using a diffusion battery connected to a condensation particle counter to sample particles, size spectra were determined through the EVE deconvolution algorithm over the 0.004  $\mu\text{m}$  to 0.5  $\mu\text{m}$  diameter range. Time series show occasional enhancements in both condensation nuclei concentrations and nanometric particle number concentration relevant to gas-to-particle phenomena. This paper reports data and discussion of the results obtained, with respect to other available parameters including air mass origin.

### I - Introduction

Les sciences atmosphériques nécessitent de plus en plus de disposer de données fiables concernant les constituants fondamentaux de l'atmosphère (gaz ou particules) ainsi que leurs variations géographiques et temporelles, dans le but de mieux comprendre leur impact sur le climat ou la pollution atmosphérique, sur les cycles biochimiques, etc...

Le programme européen BMCAPE "*Background Maritime Contribution to Atmospheric Pollution in Europe*" a été élaboré dans cette perspective. Il s'agit d'étudier un certain nombre de propriétés chimiques et micro-physiques des constituants des masses d'air à dominante maritime lors de leur passage de l'Océan Atlantique au continent européen grâce à un réseau de 6 stations côtières. Quatre des stations concernées (Mace Head en Irlande, Aveiro au Portugal, Porspoder près de Brest, South Uist en Ecosse) sont de première importance dans cette étude tandis que celle de Seaby en Suède et de Lista en Norvège, sont bien positionnées pour étudier les masses d'air plus nordiques et artiques en provenance de l'Europe septentrionale.

Parmi les paramètres fondamentaux à considérer, les particules submicroniques sont reconnues comme de première importance dans les processus physico-chimiques de l'air. Il est bien connu que les processus de conversion gaz-particules agissent comme source de particules fines. Les gaz en trace continuellement injectés dans l'atmosphère à partir des sources naturelles ou anthropogènes peuvent être soumis à des réactions photochimiques complexes conduisant à la formation des particules. Il s'agit principalement de gaz de faible volatilité tels que  $\text{SO}_2$ , DMS,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NH}_3$ ...

Nous présentons ici les principaux résultats acquis sur le sujet pendant les quatre campagnes intensives réalisées durant l'hiver 1993-1994 (Novembre - Décembre et Février - Mars) ainsi qu'en été 1994 (Mai - Juin et Juillet - Août).

### II. Description du site

La station de Porspoder est localisée sur la côte Ouest de la Bretagne. Les directions de vent les plus fréquemment observées sont, par ordre d'importance décroissante : SW, W, N, NE, S. Le container-laboratoire renfermant l'instrumentation est installé à environ 100-200 m de la mer et à 20 m au-dessus de la surface de celle-ci.

Selon la classification décidée dans le cadre du programme BMCAPE, la distribution des masses d'air gagnant le site de Porspoder, caractérisées par les rétrotrajectoires ont été considérées selon la nomenclature suivante (notation anglo-saxonne) :

- *Atlantic Maritime (M)* principalement de direction Ouest.

- *tropical Maritime* (tM) correspondant d'air maritime tropical.
- *polar Maritime* (pM) correspondant à des trajectoires marines pures d'origine polaire.
- *pure Continental* (C) correspondant à des masses d'air provenant des directions E, SE.
- *polar Continental* (pC) correspondant à des trajectoires polaires transitant au dessus des pays de l'Europe du Nording
- *tropical Continental* (tC) correspondant à des intrusions de masses d'air tropical traversant l'Espagne ou les pays méditerranéens.

Si l'un des régimes précédents est perturbé par un changement de direction des masses d'air à l'intérieur d'une séquence d'échantillonnage, la lettre "m" est utilisée devant le sigle considéré (ex : mM pour modified Atlantic Maritime).

La station de Porspoder est incontestablement sous dominance maritime puisque 71% à 92% des rétrotrajectoires enregistrées pendant les campagnes intensives du programme ont été classées dans les catégories M, mM, pM, mpM, et mtM. L'influence marine pure dépend des saisons : 73-76% des événements ont lieu en hiver contre 24-32% en été. L'influence continentale pure est observée dans moins de 10% des cas et l'influence continentale représente moins de 30%.

Dans l'ensemble les situations mixtes (mM, mtM, mpM, ou mC) sont en petit nombre en hiver (au dessous de 30%), mais atteignent 65% en été. Cependant il n'a pas été aisé de classer les échantillons d'une semaine dans l'une ou l'autre des catégories car il est rare de conserver une situation météorologique stable sur une telle durée surtout en période estivale. Aussi avons nous adopté le critère selon lequel une situation est considérée comme représentative d'une catégorie lorsqu'elle représente plus de 70% du temps d'échantillonnage.

### III. Etude générale des particules (concentration-répartition en taille)

#### III. 1. Instrumentation et méthode analytique

Pour l'étude des fines particules, nous utilisons une batterie de diffusion TSI 3040 en série avec un compteur de particules de condensation TSI 3022A.

Les distributions en tailles de particules sont reconstruites à partir des données de concentration mesurées après chaque étage de la batterie de diffusion grâce à l'utilisation d'algorithmes d'inversion non-linéaire comme Twomey et plus récemment EVE (Extreme Value Estimation) (Droal, 1995; Aalto *et Coll*, 1990).

Par ailleurs la distribution des aérosols de tailles plus élevées a aussi été déterminée grâce à un compteur optique ROYCO 5200 PACIFIC SCIENTIFIC qui permet de classer les particules en 6 classes de tailles entre 100 nm et 2000 nm. Un système de dilution au 100ème est adapté en amont du compteur afin d'empêcher la saturation de ce dernier. Quelques paramètres météorologiques (direction du vent, vitesse du vent, température, humidité relative, pression et ensoleillement) ont été également disponibles sur le site et fournis par le Laboratoire Inter-universitaire des Systèmes Atmosphériques de l'Université de Paris XII. D'autre part nous avons à notre disposition des rétrotrajectoires à 4 jours fourni par le NILU (Norwegian Institute for Air Research), chaque jour à 0 h, 6 h, 12 h et 18 h.

#### III. 2. Résultats

##### III. 2. 1. Concentration en nombre

A partir de l'analyse des données en terme de variation temporelle et concentration en particules nous avons obtenu des enregistrements typiques de ce paramètre en fonction de l'origine des masses d'air. Par exemple la figure 2 correspond à une situation purement marine définie par sa rétrotrajectoire où le nombre de particules varie de 150/cm<sup>3</sup> à 3 000/cm<sup>3</sup>. La majorité des valeurs sont inférieures à 1 000/cm<sup>3</sup> (concentration moyenne de - 1 624/cm<sup>3</sup>). Ce bas niveau de noyaux de condensation a aussi été mesuré dans d'autres conditions d'air propre comme l'illustre la figure 1, qui décrit une situation maritime polaire (rarement observée sur le site de Porspoder) rencontrés durant l'hiver, où les concentrations varient de 100 à 800/cm<sup>3</sup> (moyenne 349/cm<sup>3</sup>).

Cependant des concentrations en particules plus élevées ont été enregistrées en routine lors de situations marines modifiées et de situations continentales comme le montre la figure 3. Les données de cette série temporelle sont généralement comprises entre  $3\ 000/\text{cm}^3$  et  $20\ 000/\text{cm}^3$  correspondant à une masse d'air arrivant de l'océan Atlantique puis devenant continentale après avoir gagné la côte de Bretagne. En été les concentrations particulières durant les périodes purement marines apparaissent être 2 à 3 fois plus élevées qu'en hiver, ce qui peut s'expliquer par la plus grande fréquence des radiations solaires pendant la période printemps été.

Globalement nous avons observé un fort pourcentage de rétrotrajectoires marines (plus de 70 % durant ces 4 campagnes intensives. Toutefois lorsque les masses d'air marines sont modifiées par une contribution locale ou dans le cas d'advection d'air continentale, une augmentation de la concentration en particules est généralement enregistrée, variant de  $5\ 000/\text{cm}^3$  à  $10\ 000/\text{cm}^3$  en moyenne.

### **III. 2.2. Distribution dimensionnelle des particules**

Une quantité significative de distributions en tailles a été obtenue pendant les 4 campagnes intensives.

La figure 5 illustre une composition d'exemples typiques de distributions dimensionnelles (toutes moyennées sur plusieurs heures) reconstruites à partir de l'algorithme EVE et correspondant à des événements purement maritimes durant la campagne hivernale. Les données obtenues à partir du compteur optique ROYCO 5200 Pacific Scientific ont été également reportées dans la gamme de taille 0,1-2  $\mu\text{m}$ .

De ces distributions il apparaît que la distribution en dimensions des particules peut être caractérisée par une composante dominante dans le mode "aitken", centrée à l'intérieur du domaine de diamètres 20-50 nm et quelquefois un second mode aux environs de 200 nm dans le mode "accumulation".

En outre, nous observons quasi systématiquement une remontée du nombre de particules au-dessous de 10 nm avec toutefois plus ou moins d'amplitude. Ceci n'est pas physiquement évident à interpréter et pourrait être le résultat d'artefact dans la reconstruction de la distribution en dimensions à partir de l'inversion des données. Ce point sera évoqué plus loin. D'un autre côté, une production continue de particules ultrafines à partir des processus de conversion gaz-particules, avec plus ou moins d'intensité, ne peut pas non plus être écartée. Ceci a déjà été mis en évidence en air océanique propre (Haaf and Jaenicke, 1980 ; Covert et al., 1992 ; Hoppel et al., 1994).

D'autres distributions typiques ont aussi été obtenus à différents époques dans des conditions d'intrusion d'air polaire. La position et le profil du mode illustré précédemment ne change pas beaucoup mais dans certains cas décroît faiblement en amplitude.

Une illustration typique de l'évolution en fonction du temps de la distribution en taille des particules durant un phénomène de conversion d'air-particule est montrée à la figure 5. Durant cet événement, la concentration en particules est de l'ordre de  $2\ 000/\text{cm}^3$  au début de l'après-midi puis augmente d'un facteur supérieur à 10 pour atteindre environ  $40\ 000/\text{cm}^3$  au bout d'une période de 5 heures. On peut constater en particulier un effet dynamique significatif de l'évolution de la quantité de fines particules en dessous de 10 nm sur une période de plusieurs heures. Par ailleurs on note également que les distributions successives sont faiblement modifiées dans le mode accumulation. Ceci est en accord avec les résultats d'une simulation numérique sur l'oxydation en phase gazeuse de  $\text{SO}_2$  à  $\text{H}_2\text{SO}_4$  (Hoppel et al., 1994) qui ne prévoit pas de changements significatifs dans ce domaine de dimensions. La rétrotrajectoire correspondant à cet épisode montre que les masses d'air ont une origine continentale modifiée. La formation significative de particules ultrafines dans le domaine de dimensions nanométriques peut alors s'expliquer par une augmentation de l'intensité de radiations solaires dans le milieu de l'après-midi et la présence suspectée de gaz précurseurs dans l'air atmosphérique. Ce point est corroboré par les fortes concentrations en PAN mesurées simultanément à Porspoder par le LISA (de 160 ppt à 480 ppt entre 5 heures am et 3 heures pm) alors que la valeur moyenne océanique est de l'ordre de 35 ppt pour 1993 (Colin, 1995), avec une corrélation intéressante entre le nombre de particules et les concentrations en PAN.

Au vu des distributions dimensionnelles qui viennent d'être rapportées, une question se pose sur le degré de précision du spectre dimensionnel reconstruit dans le domaine de dimension nanométrique à partir de

La méthode de déconvolution EVE indique toujours la présence plus ou moins conséquente de particules au-dessous de 10 nm, même en situation d'advection d'air propre. Cependant, dans cette gamme de dimension, l'écart entre la solution maximale et minimale données par EVE, est souvent large, impliquant une grande incertitude sur le résultat. Toutefois la distribution observée n'est pas incompatible avec les mesures obtenues à partir de la batterie de diffusion couplée au compteur de particules. Un fait majeur à prendre en compte est que premièrement, le compteur TSI 3022A est capable de détecter la présence de particules fines avec une efficacité de 50 % à 7 nm et deuxièmement le diamètre de coupure de la première grille de la batterie de diffusion 3040 est de 5 nm. Par ailleurs durant la campagne d'intercomparaison effectuée à la station de Mace head en septembre 1993, plusieurs compteurs de particules ont fonctionné simultanément. Les résultats décrits par Jennings (1995) montrent un bon accord d'ensemble entre la majorité de ces compteurs et particulièrement entre le modèle 3022A et le modèle, plus sensible, 3025A dont le diamètre à 50 % d'efficacité est de 3 nm. Dans le cas présent, pour pratiquement toutes les données, nous observons une différence entre le comptage des particules en amont et en aval de la première grille de la batterie de diffusion, ce qui tend à conforter la présence systématique de très fines particules au dessous de 10 nm.

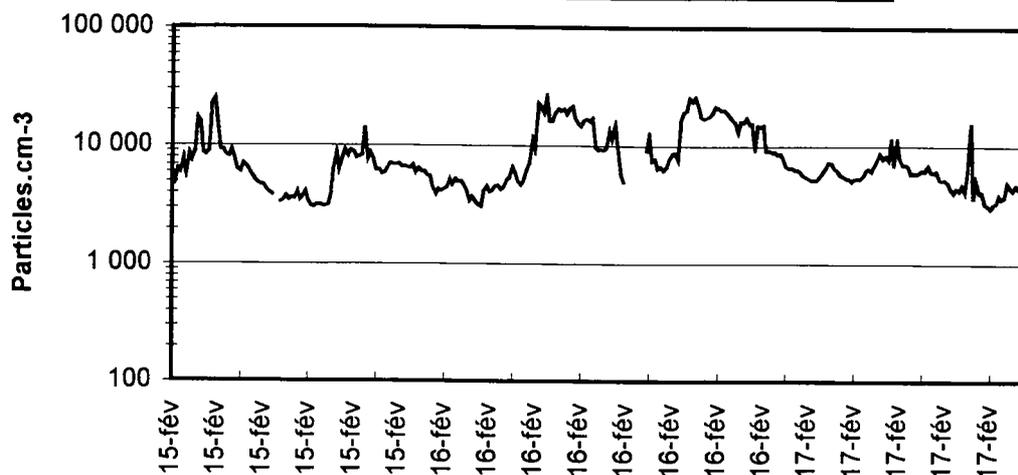
#### **IV. Conclusion :**

Ces observations tendent à valider l'existence quasi permanente de particules ultra-fines de diamètre inférieur à 10 nm avec une plus ou moins grande intensité. Néanmoins la distribution résultante reste incertaine dans cette gamme de taille particulièrement pour les faibles concentrations de particules. A partir des considérations précédentes il est évident que les méthodes utilisées devraient être améliorées pour une meilleure compréhension des phénomènes de production de particules en liaison avec la photo-oxydation des gaz précurseurs.

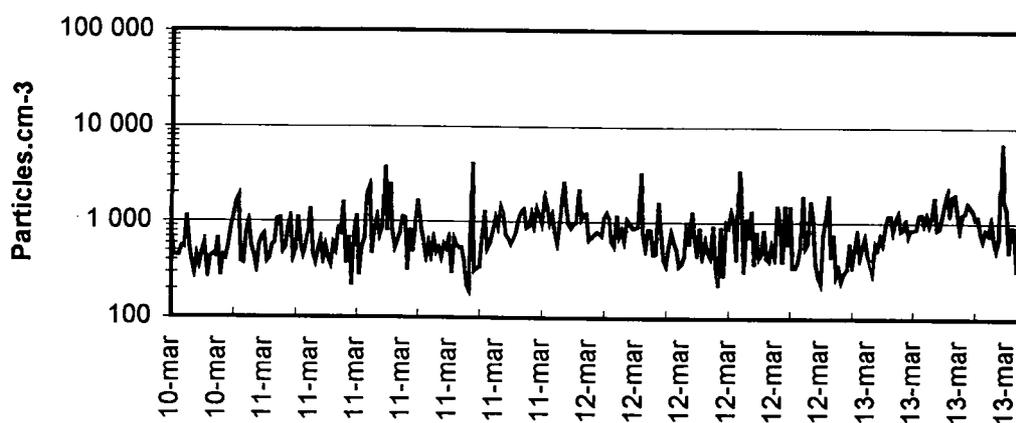
#### **REFERENCES**

- Aalto P., Tapper U., Paatero P. and Raunemaa T.(1990) Deconvolution of particle size distributions by means of Extreme Value Estimation Method, *J. Aerosol Science*, 21, S1, S159-S162.
- Colin P. (1995) communication personnelle.
- Covert D.S., Kapustin V.N., Quinn P.K., Bates T.S.(1992) New particle Formation in the Marine Boundary Layer, *Journal of Geophysical Research*, 97, n° D18, 20,581-20,589.
- Droal C., (1995) Aérosols et microorganismes- Techniques de prélèvements et d'analyses des spectres dimensionnels- applications au milieu de l'élevage porcin. Thèse, Université de Brest.
- Haaf W. Jaenicke R.(1980) Results of improved size distribution measurements in the Aitken range of atmospheric aerosols, *J. Aerosol Science*, 11, 321-330.
- Hopel W.A., Frick G.M., Fitzgerald J.W.,(1994) Marine boundary layer measurements of new particle formation and the effects nonprecipitating clouds have on aerosol size distribution, *Journal of Geophysical research*, 99, n° D7, 14,443-14,459.
- Jennings G. (1995) Background maritime contribution to atmospheric pollution in Europe, Final report .
- Tymen G., Le Bihan O., Droal C. (1995) Dynamic of fine particle size distribution during gas-to-particle processes at Porspoder coastal station. A paraitre dans *Atmospheric Environment*.

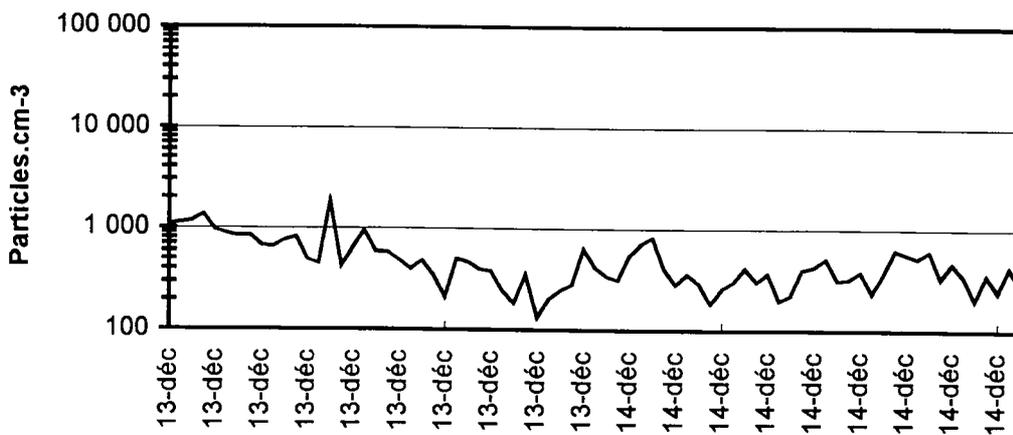
**Figure n°3 - Alternance de régimes marins modifiés et régimes continentaux modifiés (Février 1994).**



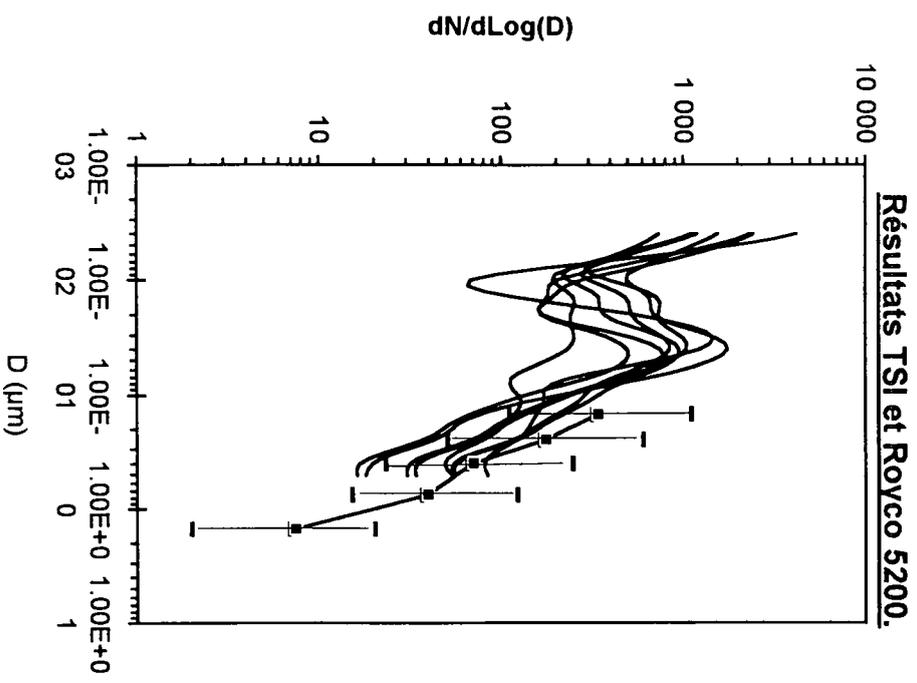
**Figure n°1 - Régime purement marin (Mars 1994).**



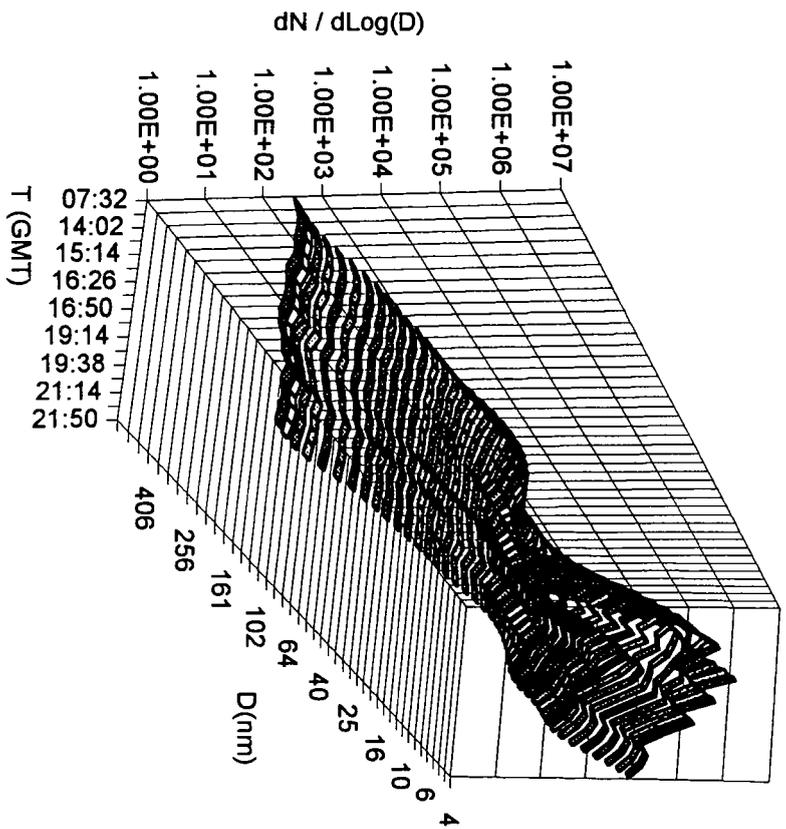
**Figure n°2 - Régime marin polaire (Décembre 1993).**



**Figure n°4 - Régime purement marin hivernal**  
**Exemples de distribution en taille**



**Figure n°5 - Phénomène de conversion gaz-  
 particules**  
**Evolution dans le temps de la distribution en  
 taille**



# Comportement du radon et de ses descendants dans la cave d'une habitation : comparaison modèle - expérience

A.M. GOURONNEC<sup>1</sup>, F. GOUTELARD<sup>1</sup>, N. MONTASSIER<sup>1</sup>, D. BOULAUD<sup>1</sup>, A. RENOUX<sup>2</sup>, G. TYMEN<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, Département de Protection de l'Environnement et des Installations, CEA-SACLAY, 91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex, France.

<sup>2</sup> Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Faculté des Sciences de Créteil Avenue du Général De Gaulle, 94010 CRETEIL Cedex, France.

<sup>3</sup> Laboratoire de Physique des Aérosols et de Radioactivité Atmosphérique, Université de Bretagne Occidentale, U.F.R. des Sciences et des Techniques, 6, Avenue Victor Le Gorgeu, BP 809, 29285 BREST Cedex, France.

**MOTS CLES :** radon 222, descendants du radon 222, habitation, modélisation

**RESUME :** Le modèle PRADDO ou « Physique du Radon et de ses Descendants dans des atmosphères Domestiques », a été développé sur la base du modèle de Jacobi (1972) et de celui de Porstendörfer (1978), afin de décrire le comportement du radon et de ses descendants dans un système à une ou plusieurs enceintes. Dans le cadre de sa validation, une comparaison théorie-expérience a été réalisée dans le cas d'un système à enceinte unique. Quelques éléments de la modélisation d'un tel système (room-model classique) sont rappelés. La campagne de mesure réalisée dans une cave en terre battue est ensuite présentée. Celle-ci a été menée dans le but de rassembler toutes les données mesurables nécessaires à la comparaison théorie-expérience et aussi de façon à observer dans quelle mesure les hypothèses théoriques sont vérifiées dans le cas réel étudié. La comparaison calcul-mesure n'a pas pu être effectuée pour les données relatives aux descendants du radon libres, présents en trop faible concentration dans l'air. La comparaison des autres données montre globalement un bon accord.

**SUMMARY :** PRADDO model (« physics of radon and its daughters in residential atmospheres ») has been developed on the basis of Jacobi's model (1972) and of Porstendörfer's one (1978) in order to describe the behavior of radon and its daughters in a system of one or more enclosure. As part of its validation, a theory-experiment comparison has been realised in the case of a single enclosure system. Elements of modelling of such a system (classical room model) are given. Then, the measurements made in a basement with earth floor are presented. The measurements campaign has been carried out with the aim of getting every data necessary to the theory-experiment comparison. Authors wanted to observe to what extent the theoretical assumptions were respected or not in the real case studied. Theory-experiment comparison could not be made for data relative to free radon decay products because of their too low concentration. Comparison of others data showed a globally good agreement.

## NOMENCLATURE

### Lettres latines

$A_i$	: activité de l'élément $i$ , en $\text{Bq.m}^{-3}$ ( $i = 0, 1, 2, \text{ ou } 3$ ).
$A_i(t)$	: activité de l'élément $i$ au temps $t$ , en $\text{Bq.m}^{-3}$ .
$A_{i,z}$	: activité de l'élément $i$ dans l'état $z$ , en $\text{Bq.m}^{-3}$ . ( $z = f$ pour les descendants du radon libres et $z = a$ pour ceux attachés)
$A_{i,z,ex}$	: activité de l'élément $i$ dans l'état $z$ (libre ou attaché) à l'extérieur, en $\text{Bq.m}^{-3}$ .
$A_0$	: activité du radon, en $\text{Bq.m}^{-3}$ .
ES	: paramètre associé à l'émission du radon par le sol et par les matériaux de construction, en $\text{Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ou $\text{Bq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ .
F	: facteur d'équilibre, sans dimension.
$f_E$	: fraction libre de l'EAP, sans dimension.
$i$	: index représentant les valeurs 0 pour le $^{222}\text{Rn}$ , 1 pour le $^{218}\text{Po}$ , 2 pour le $^{214}\text{Pb}$ , 3 pour $^{214}\text{Bi}$ .
EAP	: concentration de l'Energie Alpha Potentielle due aux descendants du radon, en $\text{J.m}^{-3}$ ou $\text{MeV.m}^{-3}$ .
$P_i$	: probabilité de recul de l'élément $i$ au moment de sa désintégration, sans dimension.
S	: surface de l'enceinte étudiée, en $\text{m}^2$ .
t	: temps, en s ou h.
V	: volume de l'enceinte étudiée, en $\text{m}^3$ .
x	: symbole représentant les mécanismes d'évolution.

### Lettres grecques

$\lambda_a$	: taux ou fréquence d'attachement, en $\text{s}^{-1}$ ou $\text{h}^{-1}$ .
$\lambda_{df}$ and $\lambda_{da}$	: taux ou fréquence de dépôt des descendants du radon libres ou attachés, respectivement, en $\text{s}^{-1}$ ou $\text{h}^{-1}$ .
$\lambda_i$	: constante de décroissance radioactive de l'élément $i$ , en $\text{s}^{-1}$ ou $\text{h}^{-1}$ .
$\lambda_v$	: taux ou fréquence de ventilation, en $\text{s}^{-1}$ ou $\text{h}^{-1}$ .
$\lambda_x$	: paramètre associé au mécanisme $x$ , en $\text{s}^{-1}$ ou $\text{h}^{-1}$ .

## INTRODUCTION

Le modèle PRADDO ou « Physique du Radon et de ses Descendants dans des atmosphères Domestiques », écrit sur la base du modèle de Jacobi (1972) et de celui de Porstendörfer (1978), vise à décrire le comportement du radon et de ses descendants dans un système à une ou plusieurs enceintes. Il permet de

prédire les concentrations des descendants du radon dans l'air et donc d'alimenter les modèles dosimétriques pulmonaires. Dans le cadre de sa validation, il est apparu que peu de comparaisons théorie-expérience ont été réalisées pour valider le « room model » (description d'un système à une seule enceinte), les quelques confrontations calcul-mesure réalisées visant généralement à ajuster des paramètres d'entrée non mesurés du modèle. C'est pourquoi, dans le cadre de la validation de PRADDO, nous avons choisi de nous focaliser, dans un premier temps, sur la comparaison calcul-mesure de données décrivant *une* enceinte d'habitation riche en radon et en ses descendants. Notre objectif est d'observer dans quelle mesure le modèle, et les hypothèses qui lui sont inhérentes, permet ou non de décrire un système réel, dans le cas où les hypothèses théoriques ne sont probablement pas strictement vérifiées.

### ELEMENTS DE LA MODELISATION

Le contenu du modèle à une seule enceinte, largement décrit par ailleurs (Jacobi, 1972; Porstendörfer, 1978; Gouronnec, 1995) est synthétisé dans le tableau 1. Soulignons simplement que le développement des équations indiquées suppose que les mécanismes d'évolution des descendants du radon (décroissances radioactives, ventilation, attachement sur les particules de l'air, recul après fixation, dépôt sur les parois) sont indépendants, que l'enceinte décrite est homogène (concentrations et paramètres constants en tout point du volume) et enfin que le système est en régime permanent. Dans la comparaison qui va suivre, nous acceptons la première hypothèse, mais nous souhaitons vérifier si le système est homogène ou pas, s'il est loin du régime permanent, et finalement si les équations posées permettent ou pas de décrire un cas réel.

### CAMPAGNE DE MESURES SUR SITE

En vue de notre comparaison modèle-cas réel, plusieurs campagnes de mesure ont été effectuées dans la cave en terre battue d'une habitation, identifiée lors d'une précédente campagne comme ayant une forte concentration en radon (Robé, 1992). Dans ce qui suit, nous présentons les résultats de mesures réalisées du 21 au 25 Février 94. Les mesures indiquées dans le tableau 2 permettent de fournir toutes les données mesurables nécessaires à notre comparaison théorie-expérience. Notons que les constantes de décroissances radioactives ainsi que les probabilités de recul sont indépendantes du système étudié et ne font donc pas l'objet de mesures. De plus, aucune méthode de mesure ne permet actuellement de déterminer les paramètres de dépôt, directement lié à l'enceinte considérée. Par conséquent, les valeurs que nous utiliserons dans la suite pour ces paramètres seront issues de la littérature et seront donc empreintes de fortes incertitudes (Gouronnec, 1995). Pour les autres paramètres, les mesures sont effectuées suivant un protocole précis visant à éviter toute perturbation du système par les expérimentateurs, à vérifier si le système est homogène (plusieurs points de mesures A, B et C), à observer quelle est l'évolution naturelle du système dans le temps, à mesurer toutes les données nécessaires à notre comparaison théorie-expérience à une même date (indispensable pour une description exacte de l'enceinte à un instant donné si le système s'avère non permanent), et bien-sûr à s'affranchir de l'erreur expérimentale.

Les figures 1 et 2 montrent les concentrations en radon et en particules dans l'enceinte étudiée en fonction du temps. Dans les deux cas, les concentrations sont en moyenne plutôt élevées et leurs variations nous montrent que le système varie continûment dans le temps suite à des événements parfaitement identifiés (Gouronnec, 1995). La granulométrie de l'aérosol ambiant, relativement stable au cours de la campagne, montre un mode principal centré sur 0,2  $\mu\text{m}$ . Les taux de ventilation obtenus se situent entre 0,28 et 0,46  $\text{h}^{-1}$ . Ces caractéristiques ont pour conséquences que le facteur d'équilibre F est élevé (entre 0,5 et 0,7 généralement) tout comme l'est l'EAP totale (entre 6 et 30  $\mu\text{J}\cdot\text{m}^{-3}$ ), laquelle est presque exclusivement présente sous forme attachée (voir figure 3). Les résultats mettent bien en évidence que les variations des activités des descendants du radon, des EAP totales, attachées ou libres ou de F sont corrélées avec les variations des concentrations en radon ou en particules. Ces grandeurs varient donc elles-même continûment dans le temps. Enfin, les résultats montrent que le système est homogène.

### COMPARAISON THEORIE-MESURE

Les données d'entrée du modèle sont déterminées d'après les valeurs mesurées sur le site (activité radon, concentration et granulométrie de l'aérosol ambiant, taux de ventilation) ou d'après la littérature (les périodes radioactives utilisées dans nos calculs valent 3,8235 j pour le  $^{222}\text{Rn}$ , 3,04 mn pour le  $^{218}\text{Po}$ , 26,89 mn pour le  $^{214}\text{Pb}$ , 19,71 mn pour  $^{214}\text{Bi}$  (Martz et al., 1989; Martz et al. 1991). Les activités des descendants du radon sont ensuite calculées ainsi que les EAP totale, attachée ou libre, le facteur d'équilibre F ou la fraction

libre de l'EAP. Ce sont ces grandeurs que nous comparons avec leurs équivalentes mesurées sur le site. Ces comparaisons, dont un exemple est donné sur la figure 4, montrent que, sauf pour les descendants du radon libres, les valeurs calculées sont proches de celles mesurées compte-tenu de l'incertitude globale (expérimentale et théorique) et que le modèle reflète correctement les conséquences des variations des concentrations du radon ou des particules ambiantes. En ce qui concerne les descendants du radon présents sous forme libre, leurs concentrations étaient trop faibles pour permettre des comparaisons pertinentes.

**TABLEAU 1.** Equations utilisées dans le room model, et hypothèses correspondantes

EQUATIONS (1.a, 1.b, 1.c)	
(1.a)	$A_o = \frac{\frac{E S}{V} + \lambda_v A_{o,ex}}{(\lambda_v + \lambda_o)}$
(1.b)	$A_{i,l} = \frac{\lambda_v A_{i,l,ex} + \lambda_i A_{i-1,l} + \lambda_i A_{i-1,a} p_{i-1}}{(\lambda_i + \lambda_v + \lambda_{dl} + \lambda_a)}$
(1.c)	$A_{i,a} = \frac{\lambda_v A_{i,a,ex} + \lambda_i A_{i-1,a} \lambda_a A_{i,l} - \lambda_i A_{i-1,a} p_{i-1}}{(\lambda_v + \lambda_i + \lambda_{da})}$
HYPOTHESES	CONSEQUENCES, COMMENTAIRES
• processus indépendants	$\frac{dA_i}{dt} = \sum_x \left( \frac{dA_i}{dt} \right)_x$
• homogénéité	$A_i(x,y,z,t) = A_i(t) \quad \lambda_x(x,y,z,t) = \lambda_x(t)$
• régime permanent	$A_i(t) = A_i \quad \lambda_x(t) = \lambda_x$
• coefficient de diffusion unique pour tous les descendants du radon libres	$\lambda_a(Po) = \lambda_a(Pb) = \lambda_a(Bi) \\ = \lambda_a \text{ (mode libre à un seul diamètre)}$
• dépôt égal pour tous les descendants du radon libres et pour tous ceux attachés	$\lambda_{df}(Po) = \lambda_{df}(Pb) = \lambda_{df}(Bi) \\ \lambda_{da}(Po) = \lambda_{da}(Pb) = \lambda_{da}(Bi)$
• dépôt égal sur toutes les surfaces	
• probabilités de recul nulles excepté pour le $^{218}Po$	$p_i = 0 \text{ excepté for } i = 1 \\ p_1 = 0,83$

### CONCLUSION

Dans le cas réel que nous avons étudié, la cave en terre battue d'une habitation de quatre étages, le modèle à une enceinte (« room model ») a permis d'une part de caractériser des situations différentes (en terme d'activités des descendants du radon, d'EAP et de facteur d'équilibre) à cause de valeurs des données d'entrée

« concentrations du radon » ou « concentrations particulières » différentes. D'autre part, il a permis de décrire correctement la réalité avec des écarts toujours comptables avec les incertitudes rencontrées (expérimentales ou théoriques, (Gouronnet, 1995)). Ainsi, la dynamique du système étudié s'est avérée suffisamment lente pour que le modèle décrive de façon satisfaisante la réalité, bien qu'il suppose un régime permanent.

## REFERENCES

- Charreau, J., Ammerich, M., Drezet, L. (1990).* Conception et réalisation d'un banc d'étalonnage du radon 222 et de ses produits de filiation à vie courte dans l'air, EURATOM, Radiation Protection Programme, Progress report 1990-91, EUR 14927 DE/EN/FR.
- Diouri, M., Boulaud, D., Frambourt, C., Madelaine, G. (1988).* Nouveau spectromètre diffusionnel et inertiel (SDI2000), *J. Aerosol Sci.*, 19:19-25.
- Diouri, M. (1991).* Contribution à l'étude du comportement aérodynamique des aérosols. Mise au point d'un spectromètre diffusionnel et inertiel (SDI2000), Thèse de l'Université Paris XII 1987 ou rapport CEA-R-5412 1991.
- Gouronnet, A.M. (1995).* Modélisation et étude expérimentale du comportement du radon et de ses descendants dans une enceinte confinée. Application à une habitation, Thèse de l'Université Paris XII 1995 ou rapport CEA-R-5695.
- Jacobi, W. (1972).* Activity and potential alpha energy of <sup>222</sup>Rn and <sup>220</sup>Rn-daughters in different air atmospheres, *Health Phys.*, 22:441-450.
- Martz, D.E., Hanis, R.T., Langner, G.H. (1989).* The half-life of <sup>218</sup>Po, *Health Phys.*, 57:121-130.
- Martz, D.E., Langner, G.H., and Johnson, P.R. (1991).* Half-lives of <sup>214</sup>Pb et <sup>214</sup>Bi, *Health Phys.*, 61:511-518.
- Porstendorfer, J., Wicke, A., and Schraub, A. (1978).* The influence of exhalation, ventilation, and deposition processes upon the concentration of radon (<sup>222</sup>Rn) and thoron (<sup>220</sup>Rn) and their decay products in room air, *Health Phys.* 34:465-473.
- Rannou, A., Robé, M.C. (1992).* Le radon, les méthodes de mesure, rapport CEA/IPSNDPEI/92-01.
- Robé, M.C., Rannou, A., Le Bronec, J., Tymen, G. (1992).* Le radon dans les habitations: identification des sources et des voies de transfert, et caractérisation des aérosols radioactifs produits, *Mém. Expl. Cartes Géologiques et Minières de la Belgique*, 32:93-103.
- Thomas J.W. (1972).* Measurement of radon daughters in air, *Health Phys.* 23:783-789.

TABLEAU 2. Mesures réalisées

Quantité	Point	Méthode	Référence ou marque	Remarque
Humidité et température	A, B	sonde HUMICOR	CORECI	
Activité radon	C, B extérieur	chambre d'ionisation 1500cm <sup>3</sup> 0.12 m <sup>3</sup>	(Rannou and Robé, 1992)	⊙ ⊙
Concentration particulaire	C, B	CNC 3020 (« Condensation Nucleus Counter »)	TSI	⊙ 50 % d'efficacité à 0.014 μm
Granulométrie de l'aérosol ambiant	A, B	DMPS (« Differential Mobility Particle Sizer »)	TSI	pompe TL3V pour un prélèvement régulier
Absence de grosses particules (diamètre > 0.886 μm)	A, C	SDI 2000 (« Spectromètre Diffusionnel et Inertiel »), APS 33 (« Aerodynamic Particle Sizer »)	(Diouri, 1991; Diouri et al., 1988) TSI	
Taux de ventilation	cave	traceur gazeux (CO <sub>2</sub> , SF <sub>6</sub> )		
Activités des descendants du radon totaux ou attachés	A, B	comptages alpha après échantillonnage	(Thomas, 1972)	débit d'échantillonnage de 82 cm <sup>3</sup> .s <sup>-1</sup> obtenu avec un orifice calibré
Séparation des descendants libres et attachés	A, B	tubes de diffusion	(Charreau, 1990)	diamètre de coupure 50 : 7 nm

FIGURE 1 : activité volumique radon en fonction du temps

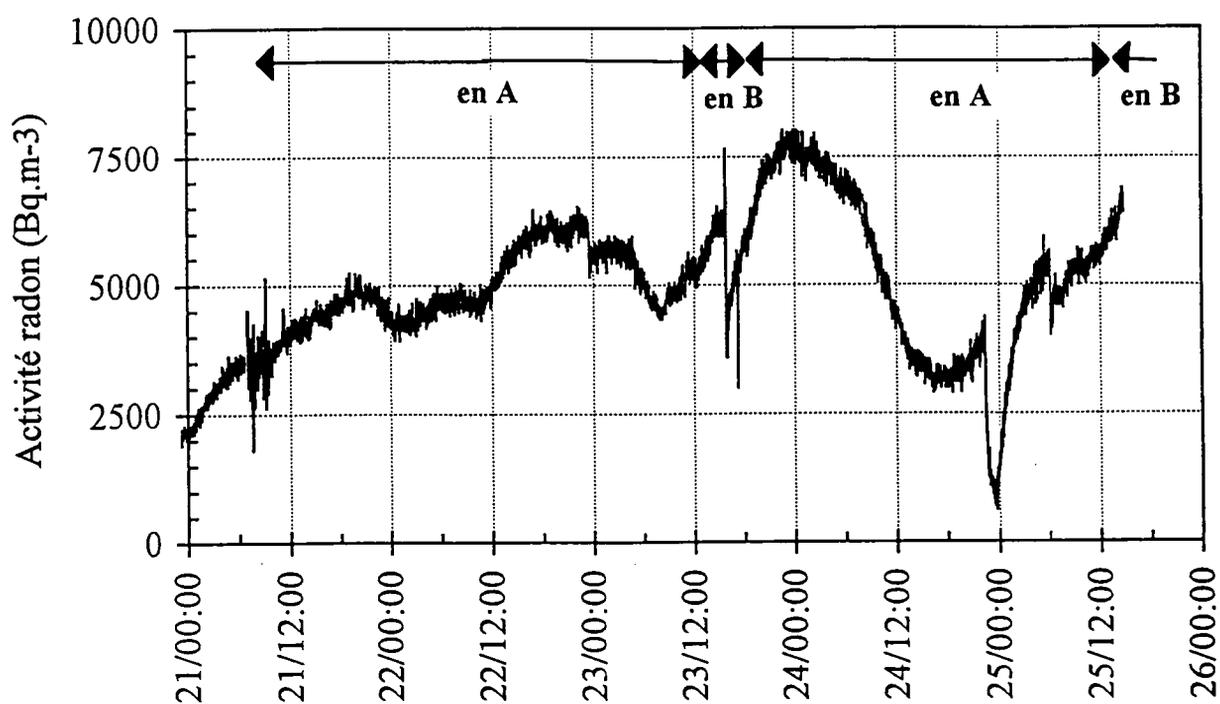
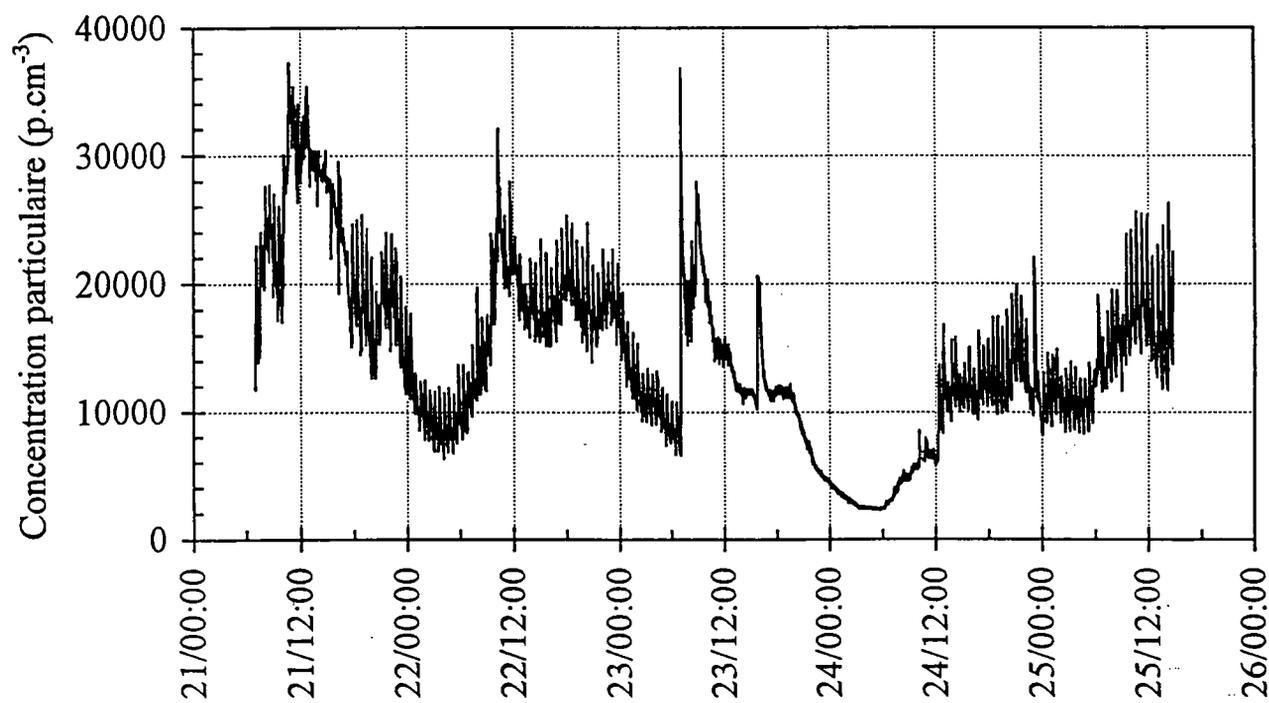
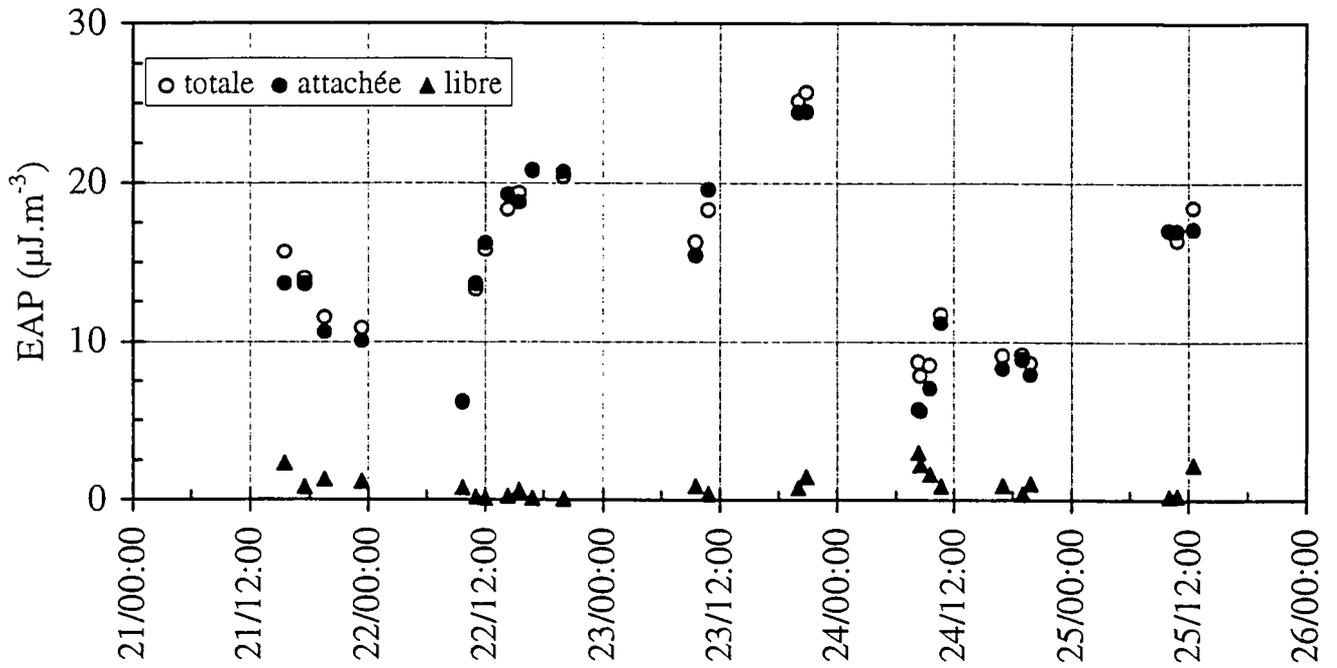


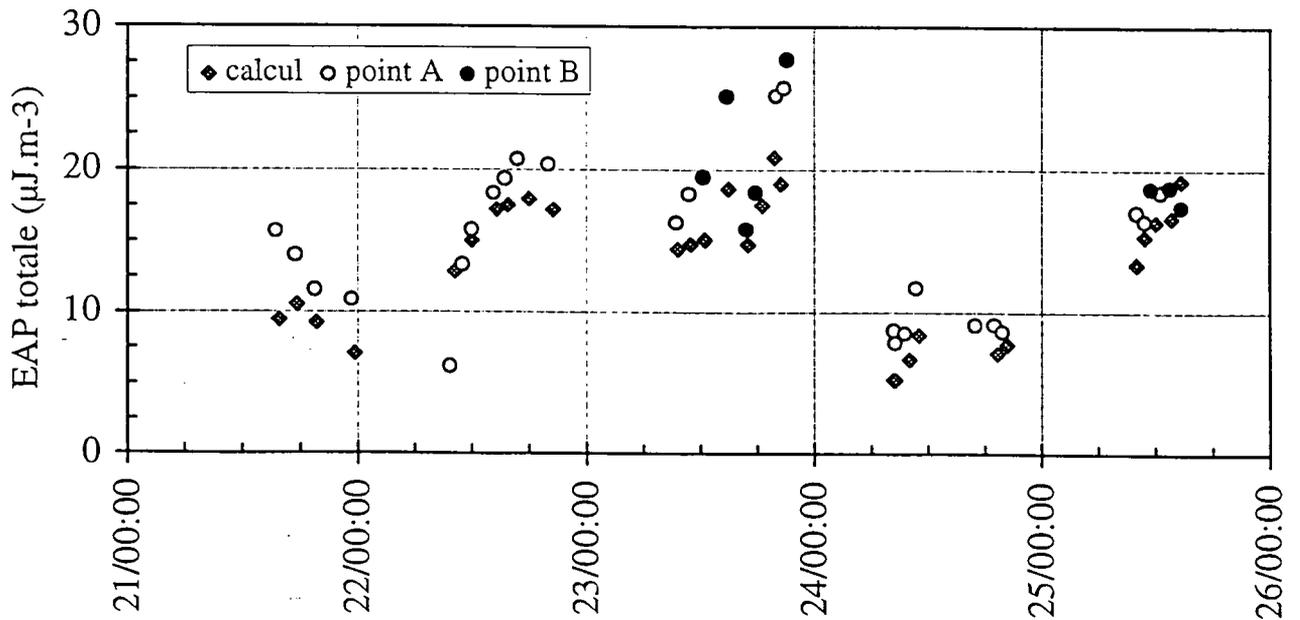
FIGURE 2 : concentration particulaire en fonction du temps



**FIGURE 3 : EAP mesurées totale, attachée et libre en fonction du temps**



**FIGURE 4 : EAP TOTALE CALCULEE ET MESUREE AUX POINTS A, B EN FONCTION DU TEMPS**



**DISTRIBUTION EN TAILLE DES COMPOSES MAJEURS  
DE L'AEROSOL ATMOSPHERIQUE  
A LA STATION COTIERE DE PORSPODER (FRANCE).**

**O.LE BIHAN, B.CALVEZ, G.TYMEN.**

Laboratoire de Physique des Aérosols et de Radioactivité Atmosphérique, Université de Bretagne Occidentale (UBO), 6 avenue Le Gorgeu, PB 809, 29285 Brest, France.

**ABSTRACT : AIRBORNE PARTICLE AND MAJOR SPECIES STUDY AT THE FRENCH WESTERN COAST  
(PORSPODER STATION)**

Continuous measurements of some microphysical and chemical parameters contained in atlantic air masses at Porspoder coastal station in Brittany were made. Time series measurements were conducted and focused on condensation particles, aerosol size distribution, and major species ( $\text{Cl}^-$ ,  $\text{So}_4^{--}$ ,  $\text{nssSo}_4^{--}$ ,  $\text{No}_3^-$ ,  $\text{Nh}_4^+$ , ...). This paper reports the main results obtained at the station from intensive campaigns performed in winter and summer 1993-1994 about major ions.

Major ions were collected weekly using a nine stage low pressure Berner impactor whereas analysis of the samples was carried out using ion chromatography. Data analysis was performed after classification of air masses into several categories based on the use of two to four day 3 dimensional trajectories arriving at the station every six hours.

## I - Introduction

La connaissance de la composition chimique de la matière en suspension dans la couche limite marine et la répartition dimensionnelle des espèces constituantes est essentielle pour comprendre le rôle joué par les aérosols dans le climat de la basse troposphère. Nous exposons ici les résultats obtenus lors du programme BMCAPE déjà évoqué dans Tymen et coll.(1995), en ce qui concerne la détermination chimique des aérosols et plus précisément les espèces majeures.

### I. Instrumentation et méthode analytique

#### *1.1 Echantillonnage*

La collection des particules s'effectue à l'aide d'un impacteur à basse pression de type BERNER LPI/30/0.06/2 muni de supports de collection en polyéthylène, dans le domaine de dimension 0.06-16  $\mu\text{m}$ .

La durée d'échantillonnage a été fixée à 7 jours avec mesure des ions majeurs par chromatographie ionique (Dionex DX 100).

#### *1.2. Distribution en taille*

Il est possible de présenter les résultats bruts sous la forme de spectres dimensionnels, avec en abscisse le diamètre moyen de l'étage, et en ordonnée la concentration en masse mesurée à cet étage divisée par l'écart en diamètre ( $\Delta M/\Delta \log D$ ).

Néanmoins cette représentation ne prend pas en compte les courbes d'efficacité de l'instrument (Willeke, Baron, 1993). Les méthodes d'inversion non-linéaires prennent en compte ces caractéristiques, et permettent d'obtenir des distributions dimensionnelles. Ainsi, nous avons utilisé les algorithmes d'inversion des données de Twomey et EVE (Droal, 1995), dont nous commentons les résultats par la suite.

## II. Résultats

### *II.1. Evaluation des données*

A titre d'illustration des méthodes d'inversion, la figure 1 représente un exemple de distribution (ion chlore pendant une période hivernale maritime pure) : on trouve : 1) une représentation « directe » en fonction du diamètre de coupure de chaque étage ( $\Delta M/\Delta \log D$ ); 2) la solution à partir de l'algorithme de

Twomey (dM/dlogD); 3) la solution à partir de l'algorithme EVE avec ses solutions minimales et maximales (dM/dlogD).

Les méthodes d'inversion restituent une forme bimodale dans le mode grosses particules, contrairement à la forme unimodale de la méthode directe.

## 11.2. Résultats de terrain

L'analyse porte sur les distributions dimensionnelles de  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NSSO}_4^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{Ca}^{++}$ ,  $\text{Mg}^{++}$ . Notre propos concerne uniquement les quatre premières espèces,  $\text{Na}^+$  étant pris comme référence marine (Warneck, 1988, Sievering, 1990).

Notre base de données se compose de 25 échantillons. Certains éléments ne sont pas intégrés dans les moyennes pour des raisons de contamination.

Le tableau 1 résume les principaux résultats obtenus à Porspoder. A titre de comparaison, nous avons également reporté quelques valeurs typiques de différents sites (Warneck, 1988).

Il est important de noter que chaque échantillon peut correspondre à une combinaison de masses d'air d'origines différentes observées dans l'intervalle d'échantillonnage d'une semaine, ce qui a pour effet de compliquer l'interprétation des données.

### Ions Chlores

$\text{Cl}^-$  et  $\text{Na}^+$  sont caractéristiques de l'influence marine et constituent les éléments principaux du mode « grosses particules ». Ils sont issus de la production d'aérosols par agitation de la surface de la mer sous l'effet du vent (Fitzgerald, 1991).

#### Résultats en masse totale :

Durant les campagnes intensives hivernales, réalisées à la station de Porspoder, la concentration moyenne totale en masse pour le chlore a été de  $7.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (tableau 1), mais avec une certaine variabilité (jusqu'à  $16.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en décembre 93 (tempête)).

Il est à remarquer la proximité entre lieu d'échantillonnage et surface de la mer : on peut supposer que cela favorise la captation de particules habituellement éliminées sur le site de production en raison de leur forte sensibilité au phénomène de sédimentation.

La moyenne de nos valeurs marines hivernale et estivale ( $5.23 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) est quelque peu supérieure à la valeur mesurée en centre Atlantique ( $4.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) (voir tableau 1), mais néanmoins tout à fait comparable.

L'épisode « régime hivernal continental modifié » est caractérisé par une valeur de  $4.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , non négligeable si on la compare avec les masses d'air marin : cela montre bien que la caractéristique « modifié » peut correspondre à une importante contribution marine (69 % durant cet épisode).

En comparaison, en été, les valeurs de chlore ont été basses :  $1.479 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (continental modifié) et  $2.84 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (maritime). Ceci est vraisemblablement dû à une production mécanique des particules, atténuée en raison de vents plus faibles en cette saison.

#### Distributions en taille :

La figure 2 représente les distributions moyennes pour des épisodes purement marin ou continental modifié, en hiver ou en été.

Elle indique que la distribution dimensionnelle massique de chlore est principalement répartie au-dessus de  $1 \mu\text{m}$ . Nos données font apparaître un profil général bimodal, le premier mode se situant vers  $2.5\text{-}3 \mu\text{m}$ , le second autour de  $15 \mu\text{m}$ . Les modes restent globalement centrés en diamètre sur les mêmes zones, malgré des conditions météorologiques très différentes. C'est plutôt l'amplitude qui différencie les différentes distributions.

La période hivernale correspond à des vitesses de vent plus élevées que la période estivale, ce qui entraîne une plus grande production d'aérosol marin, et explique les amplitudes supérieures des distributions en taille hivernales.

Comme il n'existe pas de source continentale de chlore, les différences entre les situations continentale modifiée et purement marine sont seulement une question d'exposition à l'air marin, en terme de durée et de quantités d'aérosols produits.

Une illustration de la variabilité des quantités collectées est donnée par la figure 3 (1ère campagne intensive, résultats non retenus pour la moyenne générale). Les résultats sont caractérisés par des masses totales de chlore allant de 6 à 16.7  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Nous retrouvons les caractéristiques déjà observées : bimodalité, variations en amplitude, stabilité en diamètre. De plus, Il y a une bonne corrélation entre l'intensité du second mode (au dessus de 10  $\mu\text{m}$ ) et la masse totale ; la corrélation est moindre pour le premier mode.

En effet, la production d'aérosol varie selon la vitesse du vent et le diamètre de la particule (De Leeuw, 1986). D'autre part, il est probable que les aérosols de faible taille soient collectés par vent modéré ; par contre, le transport de particules soumises à la sédimentation nécessite des vents plus importants. L'ensemble de ces facteurs expliquerait donc les différences entre les deux modes.

#### Sulfates non-salins :

Les concentrations en ions sulfates dépendent à la fois des émissions marines et continentales. D'une part, ils sont issus de la création d'aérosols par le vent, et donc de création d'un aérosol marin dans lequel on retrouve les composants de l'eau de mer, dont les sulfates; il s'agit du sulfate salin.

D'autre part, les ions sulfates résultent de l'oxydation de composés soufrés présents en phase gazeuse, notamment du DMS (diméthylsulfide) : leur origine est organique ; il s'agit d'une conversion gaz - particules. (Warneck, 1988; Fitzgerald, 1991). Enfin, le sulfate peut avoir une origine anthropique. Les deux dernières sources sont qualifiées de non - salines.

En conséquence, les sulfates non-salins sont caractéristiques de l'excès de sulfate mesuré dans les aérosols marins, en utilisant le Sodium comme référence.

De nombreuses études ont montré que les particules de diamètre inférieur à 0.5  $\mu\text{m}$  en milieu marin pur, sont composées très majoritairement de sulfate non-salin (Fitzgerald 1991).

Nous évaluons à 0.98  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  la masse totale de sulfate non-salin mesurée à Porspoder durant des épisodes purement marins. Cette valeur est en bon accord avec les données rapportées par Warnek (1988) et Fitzgerald (1991). Dans le cas d'une situation marine estivale, la masse totale de  $\text{NSS-SO}_4$  (1,38  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) est légèrement plus importante que son équivalent hivernal. Par contre, il est à noter que la contribution du sulfate non-salin passe de 46% (cas hivernal) à 73% (cas estival) ce qui indique une réelle augmentation en été de la contribution en sulfate non-salin, en parallèle à la baisse de l'apport salin. Cette observation est confortée par le fait que nous observons l'augmentation significative en période estivale des concentrations en particules, en relation avec une intensification des processus de conversion à partir des gaz (Tymen et coll., 1995).

Dans le cas d'un épisode continental modifié estival, la différence devient encore plus marquée, correspondant à un effet très significatif de production de particules fines, peut être du à une contribution locale ; 95% de la concentration en masse totale de sulfate se trouve sous la forme de sulfate non-salin.

Le sulfate total (concentration en masse) a une distribution en taille multimodale, comme le montre la figure 4. Le mode "grosses particules" est associé aux gouttes de film et de jet (modes situés à 2-3 et 13  $\mu\text{m}$ ), tandis que le mode submicronique est situé à des diamètres de 0.6 - 0.7  $\mu\text{m}$ .

La distribution du sulfate non-salin correspond essentiellement au mode submicronique du sulfate total : durant les épisodes continentaux, modifiés ou non, et quelle que soit la saison, les concentrations sont importantes, alors que dans le cas d'influences marines, les concentrations sont basses et le mode est centré sur un diamètre légèrement plus faible (0.6  $\mu\text{m}$  au lieu de 0.9  $\mu\text{m}$ ).

### III. Conclusion

A partir de la synthèse de nos mesures, nous pouvons donc confirmer le rôle de l'action du vent comme source majoritaire de la composante « grosses particules » de l'aérosol, sous la forme de sels marins ; l'action simultanée de la production continentale-anthropique et de la production marine par conversion gaz-particules, pour l'alimentation du mode submicronique.

Nous avons constaté une excellente cohérence entre nos résultats et les rétrotrajectoires correspondantes. L'utilisation de méthode d'inversion permet de prendre en compte les efficacités et les caractéristiques des instruments de mesure et d'affiner la restitution des spectres dimensionnels.

Ainsi, l'algorithme EVE indique une répartition bimodale du chlore dans le mode grosses particules, distinction qu'une représentation directe ne fait pas apparaître, et qui devrait correspondre à différents modes de production de l'aérosol par le vent.

L'implantation côtière de la station de mesure implique l'examen précis des rétrotrajectoires : les niveaux de fond en ammonium suggèrent une contribution continentale, si faible soit-elle. Aussi sommes-nous en train de reconsidérer les conditions d'échantillonnage ; nous allons dans les prochaines expériences réduire le temps de collecte, diminuant ainsi les risques de "mixité" des origines des masses d'air ; par ailleurs, nous pensons mettre en place une stratégie de mesure basée sur la stabilité du régime météorologique et donc sur la prévision météorologique.

Les résultats marins hivernaux présentent une très bonne reproductibilité, que se soit en masse totale ou en distribution en taille, ce qui nous a permis d'ores et déjà de caractériser le site du point de vue de la source mécanique marine, et anthropique. L'augmentation, à venir, de notre base de donnée estivale devrait nous permettre de compléter cet ensemble.

## REFERENCES

Droal C., (1995) Aérosols et microorganismes- Techniques de prélèvements et d'analyses des spectres dimensionnels- applications au milieu de l'élevage porcin. PhD University of Brest.

De Leeuw G. (1986) Vertical profiles of giant particles close above the sea surface. *Tellus*, **38B**, 51-61.

Fitzgerald J.W. (1991) Marine aerosol: a review. *Atmospheric Environment*, **25A**, 3/4, 533-545.

Le Bihan O., Tymen G., Cabon J.Y., (1995) Airborne particle and major species size distribution study at the French western coast (Porspoder station), à paraître dans *Atmospheric Environment*.

Sievering H., Ennis G. and Gorman E. (1990) Size distributions and statistical analysis of nitrate, excess sulfate, and chloride deficit in the marine boundary layer during GCE/CASE/WATOX. *Global Biochemical cycles*, **4**, 4, 395-405.

Tymen G., Le Bihan O., Droal C. (1995) Dynamic of fine particle size distribution during gas-to-particle processes at Porspoder coastal station. A paraître dans *Atmospheric Environment*.

Tymen G, Le Bihan O., Droal C. (1995) Evolution dynamique de la distribution en taille des particules atmosphériques ultrafines à la station côtière de Porspoder, 11èmes journées du COFERAe, Paris, 5-6 décembre 1995.

Warneck P. (1988) Chemistry of the natural atmosphere. International Geophysics series, vol 41, 757 pp., Academic, San Diego.

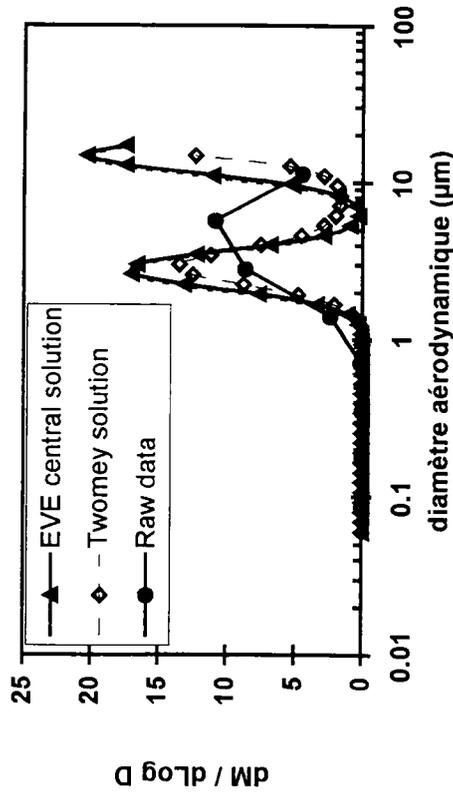
Willeke K., Baron P.A. (1993) Aerosol measurement, Principles Techniques and Applications. Van Nostrand Reinhold, New York.

**Espèces majeures :**  
**Concentration en masse (  $\mu\text{g} / \text{m}^3$  ) pour différents sites.**

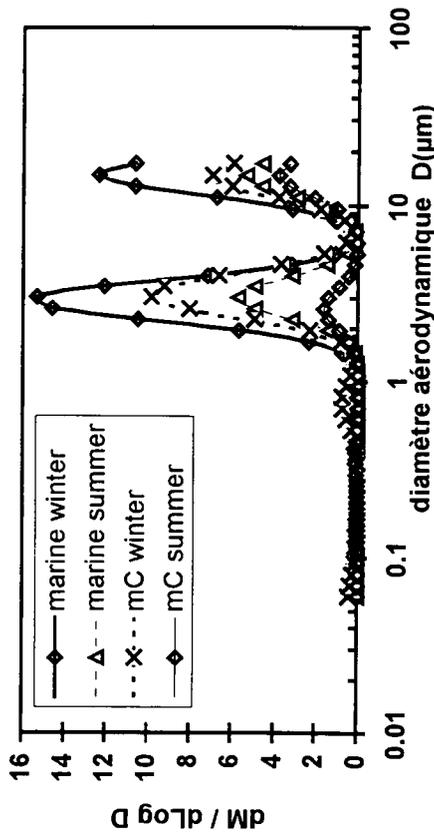
<u>Station de mesure de Porspoder :</u>										
	<i>Marin hiver</i>			<i>Marin été</i>			<i>continental modifié hiver</i>			
	Average	Max	Min	Moyenne	Max	Min	Moyenne	Max	Min	
Cl-	7.62	7.93	7.32	2.84	3.70	1.98	4.90	1.48	1.97	0.98
Na+	4.62	5.03	4.21	2.01	2.52	1.51	2.80	1.28	1.52	1.16
SO4--	2.14	2.28	2.01	1.89	2.234	1.55	4.40	4.67	5.92	2.89
nssSo4--	0.98	1.01	0.95	1.38	1.60	1.17	3.69	4.35	5.54	2.60
NH4+	0.31	0.48	0.14	0.38	0.43	0.32	2.20	1.83	2.33	1.24
NO3-	0.75	1.08	0.43	0.92	1.16	0.69	4.00	2.85	3.42	1.74
	46%			73%			84%	93%		

<u>Autres études (Warneck, 1988) :</u>									
	<i>Aérosol marin</i>			<i>Aérosol continental</i>			<i>Aérosol urbain</i>		
	<i>Centre Atlantique</i>			<i>Wank, Centre Europe</i>			<i>Tees-side West Covina</i>		
	Moyenne	Max	Min						
Cl-	4.63		0.11	0.14	0.08		3.18	0.73	
Na+	2.91		0.05	0.08	0.02		1.18	3.10	
SO4--	2.58		3.15	4.90	0.55		13.8	16.47	
NH4+	0.16		1.30	1.96	0.35		4.84	6.93	
NO3-	0.05		0.92	1.34	0.41		3.00	9.70	

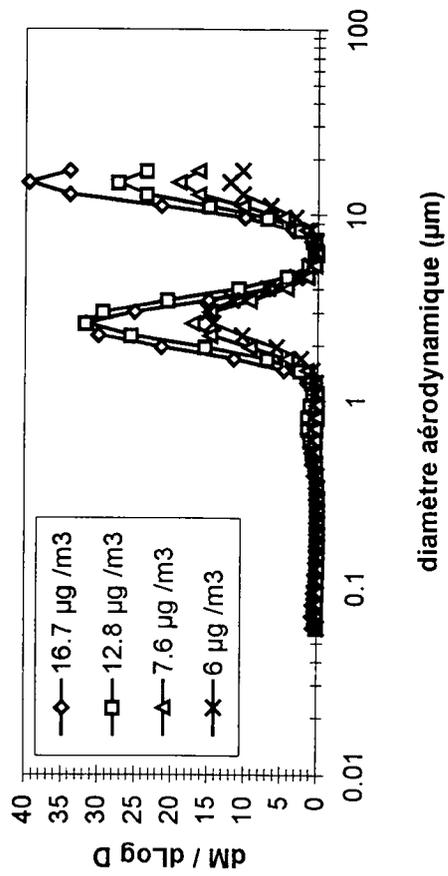
**Figure n°1 - Régime purement marin - distribution en taille du chlore ( $\mu\text{g} / \text{m}^3$ ).**



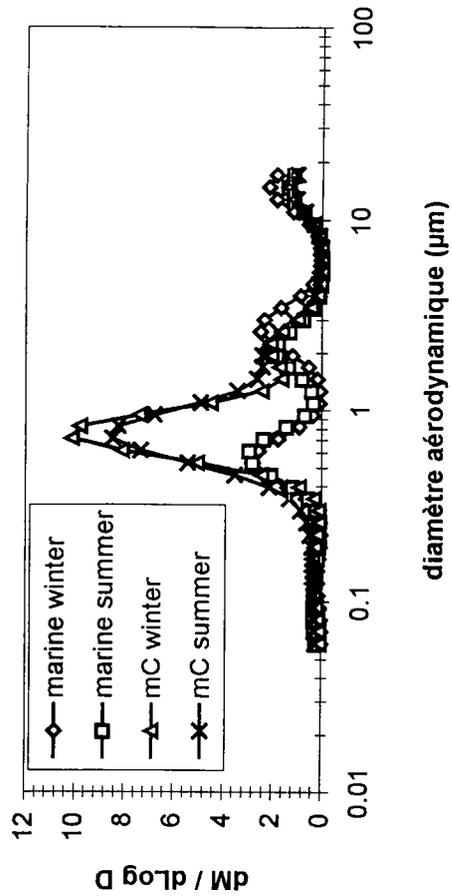
**Figure n°2 - Distribution en taille de l'ion chlore, pour les régimes principaux.**



**Figure n°3 - Influence du vent sur la distribution en taille de l'ion chlore.**



**Figure n°4 - Distribution en taille de l'ion sulfate, pour les régimes principaux.**



## **Efficacité de protection des produits et du personnel utilisant les PSM de type II à recyclage partiel**

N. Chantrel, J.C. Texte<sup>(1)</sup>, M. Attoui<sup>(2)</sup>, M. Montamat<sup>(1)</sup>, A. Renoux<sup>(2)</sup>

(1) Laboratoire National d'Essais I, rue Gaston Boissier, 75724 Paris cedex 15

(2) LPATC, Université de Paris XII, avenue du Général De Gaulle, 94010 Créteil

La manipulation bactériologique s'effectue dans des enceintes de confinement. Parmi celles-ci figurent les Postes de Sécurité Microbiologique (PSM) de type II (à recyclage partiel). On exige d'un tel poste trois qualités, qui sont : la protection du personnel, la protection du produit manipulé et celle de l'environnement.

La protection de l'environnement et du produit est assurée par la filtration à très haute efficacité de l'air, d'une part extrait, d'autre part recirculé vers la manipulation. Quant à la protection du personnel, elle est réalisée par un écoulement d'air entrant dans le PSM par l'ouverture de passage des bras, qui doit normalement s'opposer aérauliquement au flux d'air de recirculation parfois mal réglé. Les objectifs de protection du personnel et du produit sont antagonistes. En effet, la protection du personnel serait dégradée par un flux d'air de recirculation trop important et à l'inverse un flux trop faible dégraderait le produit. Un accord est donc à trouver entre le débit d'air entrant par l'ouverture du PSM et celui circulant verticalement dans le volume de travail.

Le Laboratoire National d'Essais a développé une méthode dite de la barrière de protection qui permet de situer géographiquement la zone de séparation entre l'écoulement entrant et l'écoulement vertical<sup>(1)</sup> en utilisant simplement l'aérosol atmosphérique.

### **METHODES**

La méthode de la barrière de protection consiste à explorer le volume de la veine de garde au niveau de l'ouverture de passage des bras avec un Compteur Optique de Particules.

Ce volume est testé sur trois plans verticaux: l'un au centre du PSM, les deux autres respectivement situés à dix centimètres des bords intérieurs latéraux du volume de travail. En chacun des plans, l'exploration se fait en trois altitudes: l'une au niveau du plan de travail, l'autre au milieu de l'ouverture frontale et la troisième au niveau du bord inférieur de la glace de protection.

En reportant sur un graphique, en abscisse, les coordonnées de la sonde par rapport à la glace de protection, et en ordonnée, la concentration en particules de dimension supérieure ou égale à  $0,3 \mu\text{m}$  par rapport à la concentration ambiante (rapport exprimé en pourcentage), on obtient des courbes dont le changement de pente indique la barrière de protection, c'est-à-dire la zone de mélange des flux d'air recirculé (air propre) et d'air entrant par l'ouverture (air ambiant).

Cette méthode est utilisée dans le cadre des essais pour la certification AFNOR des PSM<sup>(2)</sup>. En parallèle, la détermination de la protection du personnel décrite dans la norme et adaptée aux PSM de type II est également effectuée. Cette méthode, dite au mannequin, consiste à comparer des concentrations particulières à l'extérieur du PSM (au niveau du nez et du coude d'un mannequin figurant un manipulateur), avant, pendant et après la nébulisation d'un aérosol bactérien inerte à l'intérieur du poste. Un test statistique basé sur la loi de Poisson permet de déterminer si la protection du personnel est assurée.

Des tests sont également réalisés selon la méthode anglaise<sup>(3)</sup>, basée sur la génération d'un aérosol d'iodure de potassium à l'intérieur du poste et la captation éventuelle d'une partie de cet aérosol sur des membranes filtrantes à l'extérieur du poste.

La comparaison de ces méthodes nous conduit à des interrogations sur l'interprétation des résultats des différents facteurs de protection et notamment celui du personnel au niveau du bas de la vitre sur la barrière de protection. Ces mouvements d'air non perçus par les méthodes conventionnelles sont-ils dûs à la procédure, ou sont-ils réels?

Jusqu'à présent les essais se font avec un compteur optique de particules dont le débit d'aspiration est de  $28 \text{ l/mn}$  et dont la sonde est conique de diamètre frontal  $32 \text{ mm}$ , impliquant une vitesse frontale de l'ordre de  $0,6 \text{ m/s}$ . Dans ces conditions, les essais sont dits "traditionnels" et l'exploration de la veine de garde se fait avec un mouvement de la sonde de l'intérieur vers l'extérieur du poste, cette sonde positionnée tel que son axe soit perpendiculaire à la vitre et son ouverture vers le fond du poste.

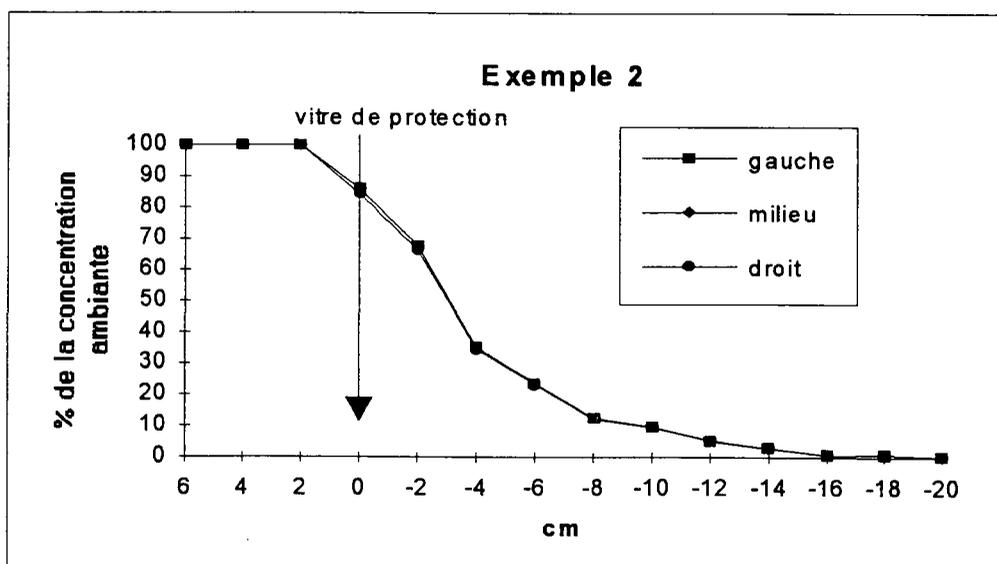
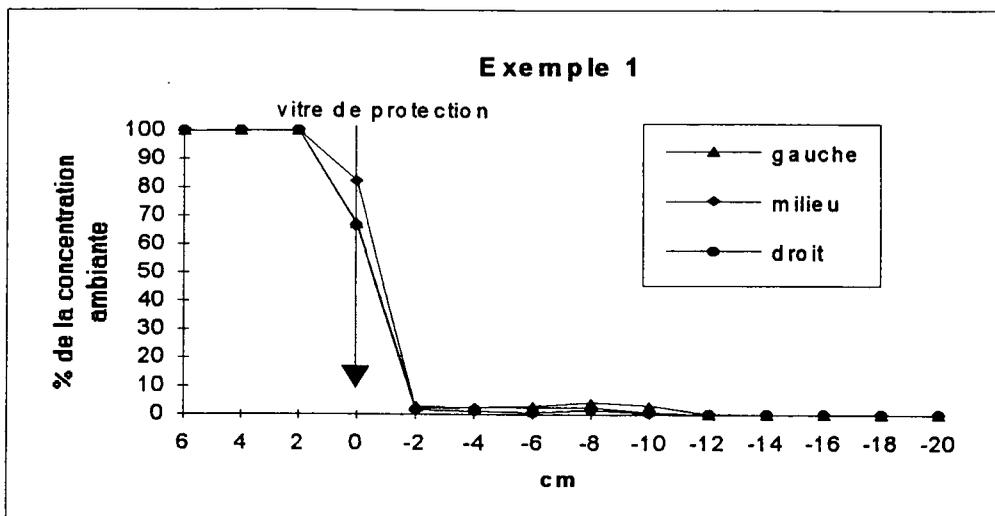
Or, les vitesses des flux d'air au niveau du bas de la vitre sont très faibles ( inférieures à  $0,15 \text{ m/s}$ ). On peut donc penser que ce système de prélèvement a une influence sur les flux d'air à ce niveau.

Des essais ont donc consisté à faire varier le débit de prélèvement afin de modifier les

vitesses à l'entrée de la sonde, puis à examiner différentes orientations de la sonde (orientation traditionnelle et orientation inverse). Par ailleurs, le déplacement de la sonde a été effectué dans les deux sens, de l'intérieur du poste vers l'extérieur et vice-versa.

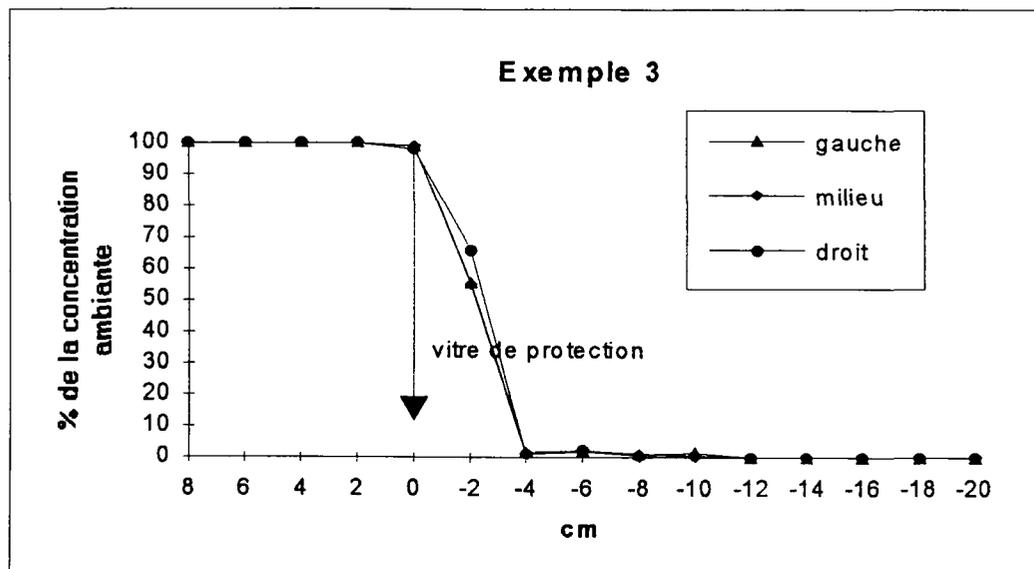
## RESULTATS ET DISCUSSION

Les courbes montrent divers profils de barrières de protection obtenus à partir de différents postes. Certains ont une barrière franche (exemple 1), d'autres présentent une zone de mélange qui se caractérise par la pénétration plus importante de l'air ambiant à l'intérieur du PSM (exemple 2).



Cette représentation graphique informe l'utilisateur du PSM sur sa protection et celle du produit qu'il manipule; au niveau du plan de travail essentiellement celle du produit; au milieu et au niveau du bas de la vitre de protection celle du personnel.

Une partie de l'air intérieur peut éventuellement sortir en dehors du poste comme le montre l'exemple 1, ou ne sort pas du tout comme sur cet autre exemple 3.

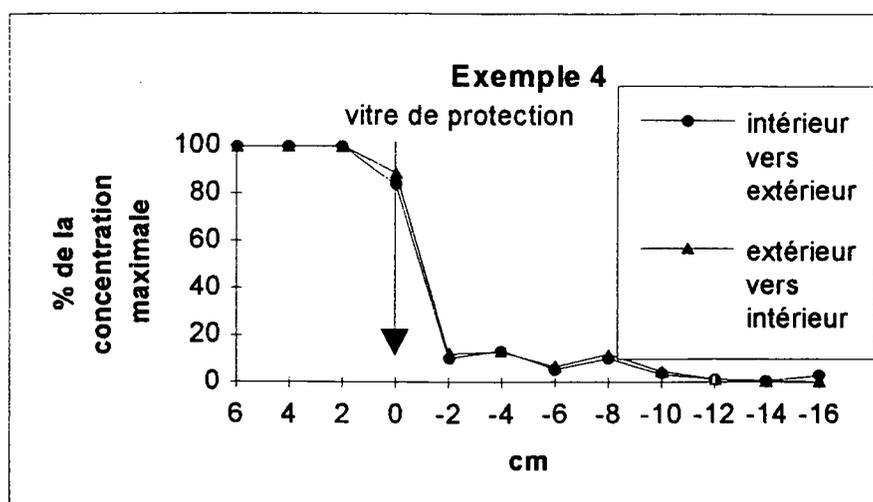


On peut noter que si les méthodes à l'iodure de potassium et celle au mannequin sur la détermination du facteur de protection du personnel aboutissent à des résultats semblables, il n'en est pas de même pour la barrière de protection au niveau du bas de la vitre. Appliquée dans les mêmes conditions, elle montre qu'une partie de l'air intérieur sort du PSM. En effet, la concentration ambiante n'est atteinte qu'à 2 cm de la vitre de protection en dehors du PSM (exemple 1).

Cette méthode de la barrière de protection permettrait donc de détecter des mouvements d'air de l'intérieur du PSM vers l'extérieur au niveau du bas de la vitre, mouvements assimilables à des "fuites" qui ne sont pas détectées par les deux autres méthodes.

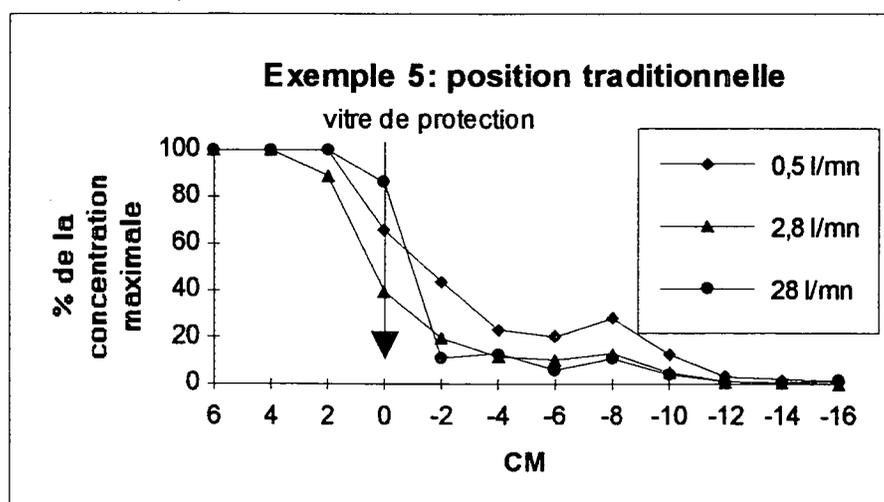
On s'est alors plus particulièrement intéressé à la position de la barrière au niveau du bas de la vitre. Quelques tests sont réalisés actuellement pour différentes conditions de prélèvement.

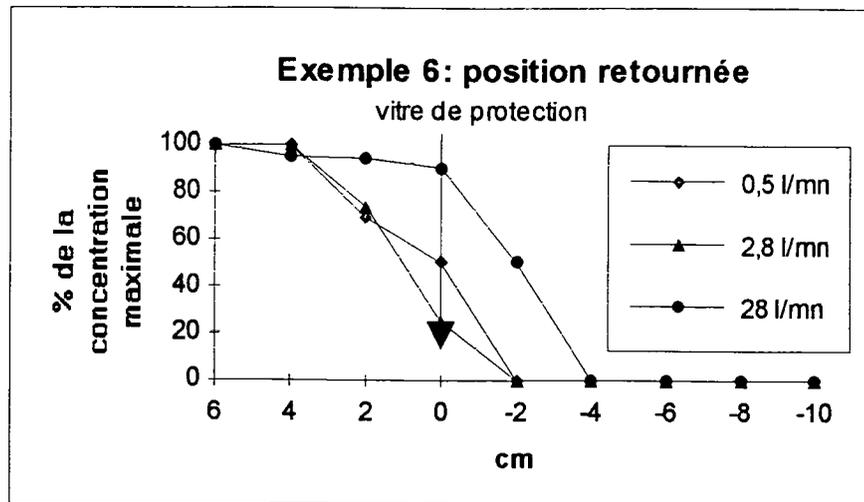
Pour un débit de 28 l/mn, on observe pour les deux positions de la sonde, une similitude entre les courbes obtenues pour un mouvement de la sonde allant de l'intérieur du poste vers l'extérieur et le mouvement inverse (exemple 4).



Si on compare les courbes obtenues pour les trois débits, 28, 2,8 et 0,5 l/mn (exemple 5), on remarque que la barrière se déplace vers l'extérieur du poste quand le débit diminue. La barrière est comprise entre +2 et -4 cm pour un débit de 28 l/mn, et entre +4 et -2 cm pour 2,8 l/mn et 0,5 l/mn.

En comparant les graphiques 5 et 6, on note que selon la position de la sonde (traditionnelle ou retournée) la concentration à l'intérieur du poste varie. On peut alors penser que cette position a une incidence quant à l'entrée d'air extérieur dans le poste. Par un test au fumigène, on a pu constater que de l'air extérieur est véhiculé le long des parois de la sonde jusqu'à 10 cm à l'intérieur du poste, d'où une surestimation de la concentration.





Ces constatations notées au niveau du bas de la vitre de protection nous incitent à penser qu'il serait mieux d'inverser l'ouverture de la sonde par rapport à la méthode traditionnelle pour explorer les divers altitudes du volume de la veine de garde.

En conclusion, la barrière de protection présente l'avantage de ne pas nécessiter l'utilisation d'un aérosol quelconque, mais d'utiliser des conditions naturelles. De plus, elle met en évidence d'éventuels mouvements d'air au niveau du bas de la vitre de protection, de l'intérieur vers l'extérieur, que d'autres méthodes ne font pas apparaître. Enfin, il paraît préférable d'étudier le haut de la veine de garde au niveau du bas de la vitre avec un compteur optique de particules de débit 2,8 l/mn, avec une sonde dont l'ouverture est dirigée vers l'extérieur du poste, cela afin de ne pas perturber les mouvements d'air à ce niveau.

#### REFERENCES

- (1) Journal of Aerosol Science (1994) vol. 25, pages S485-S486.
- (2) Norme NF X44-201 (1984): Postes de Sécurité Microbiologique.
- (3) British Standard 5726 (1992): Specification for design, construction and performance prior to installation.

## résumé

Le Laboratoire National d'Essais a développé une méthode permettant d'apprécier l'efficacité de protection du produit et du personnel utilisant les Postes de Sécurité Microbiologique de type II. Cette méthode, la barrière de protection, met en évidence des mouvements d'air, notamment au bas de la vitre de protection, de l'intérieur du poste vers l'extérieur, non détectés par les méthodes conventionnelles, remettant ainsi en question la protection du personnel. Des essais sur les conditions de réalisation de cette méthode ont permis de confirmer ce phénomène et d'affiner la procédure.

The "Laboratoire National d'Essais" has developed a method which permits to know the efficiency of the product and personal protection in utilizing a type II Microbiological Safety Cabinet. This method, the protection barrier, shows air flows, especially at the bottom of the window, from inside the cabinet to the outside, which are not detected by the conventional methods, affecting the personal protection. More studies about the operation conditions confirm this phenomenon and permit to improve the procedure.

## A.M.P.S : Appareil pour la Mesure de la Propreté des Surfaces

A. CHARAMATHIEU<sup>1</sup>, B. MESBAH<sup>2</sup>, A. RENOUX<sup>2</sup>, M.B. ATTOUI<sup>2</sup>, J. BLOUIN<sup>3</sup>

- 1) Sté ECO PRISME, 5 avenue du Général de Gaulle. 92220 BAGNEUX.
- 2) Laboratoire de Physique des Aérosols et transfert des contaminations Université Paris XII, av. du Général de Gaulle. 94001 CRETEIL.
- 3) Chambre d'Agriculture de la Gironde, 39 rue Michel Montaigne. 33290 BLANQUEFORT.

### **I Objectif**

Les industriels se sont intéressés très tôt aux transferts des contaminants dans l'air. En particulier en micro-électronique, car toutes les particules dont le diamètre est inférieur à la taille des réseaux peuvent provoquer un défaut, ce qui a nécessité de concevoir des unités de production dont la pureté du milieu gazeux était, au cours des années, de plus en plus grande.

Cette recherche, de plus en plus de propreté, a conduit à essayer de déterminer quel pouvait être l'influence de contaminants surfaciques sur la contamination aéroluque (remise en suspension des particules). Les études entreprises ont montré que les coefficients de transfert étaient non négligeables.

Les premiers contrôles de contamination surfacique ont été réalisés en effectuant des frottis (à sec ou humide), mais il s'est vite avéré que les rendements de ces prélèvements étaient très aléatoires, d'où une incertitude importante sur la présence ou non de polluants.

Compte tenu de la spécificité des contrôles bactériologiques, les professionnels ont rapidement utilisé les géloses de contact. Mais, là aussi, les rendements de prélèvement sont aléatoires, car les forces d'adhésion créées lors du prélèvement par gélose, sont très inférieures à celles de fixation sur le substrat, en particulier si les bactéries ont commencé leur multiplication.

D'autres méthodes ont été utilisées : écrouvillons, brosses, brosses rotatives... mais l'efficacité et la reproductibilité des prélèvements n'est pas du tout garantie.

### **II Solution AMPS**

La nécessité de la mise au point d'un dispositif de prélèvement, qui puisse assurer une très bonne reproductibilité, est très vite apparue.

C'est pourquoi, l'équipe d'ECO PRISME s'est penchée sur ce problème. Nous sommes rapidement arrivés à la solution de l'AMPS tel que réalisé aujourd'hui.

Le prélèvement des contaminants surfaciques est conditionné par un certain nombre d'impératifs incontournables, qui sont :

- le décollement vertical des particules, qui nécessite une énergie suffisante pour vaincre les forces d'adhésion (Van der Waals, etc...), et qui permet, par une agitation particulière optimisée, de s'affranchir de la microrugosité du substrat.

- l'entraînement de toutes les particules afin de pouvoir en assurer le dénombrement et déterminer leur granulométrie.

Lorsqu'il s'agit de bactéries, ou autres organismes vivants, les contraintes sont identiques, mais en plus, l'énergie dispensée pour assurer le décollement ne doit pas être trop importante afin de ne pas les tuer, pour pouvoir les identifier (caractère pathogène au non).

L'AMPS 1ère génération se compose d'un corps en acier inoxydable poli, dans lequel se déplace un piston à l'extrémité duquel se trouve un transducteur.

Le volume délimité par la cavité intérieure du corps et du piston est dénommé volume de prélèvement ; Celui-ci est variable en fonction de la hauteur du piston.

Le liquide de prélèvement, qui peut être de nature différente, a pour fonction d'entraîner les polluants prélevés et de les conduire jusqu'aux appareils de mesure, pour dénombrement et/ou analyse.

Le corps intérieur de l'appareil délimite une surface de prélèvement sur la surface à contrôler. L'adhérence de l'AMPS est assurée par une chambre concentrique dans laquelle on fait le vide.

L'AMPS 2ème génération a été réalisé par l'ITERA Massy, il se compose comme le précédent d'un corps conique en acier inoxydable, sur lequel viennent s'adapter 2 ou 4 transducteurs, ces derniers fonctionnent simultanément ou en déphasage.

Le liquide de prélèvement circule dans une chambre conique, dans laquelle un système de vortex a été réalisé afin de faciliter l'entraînement des contaminants prélevés.

L'AMPS 3ème génération est un appareil miniaturisé par rapport aux précédents, afin de répondre à un certain nombre d'impératifs.

- rechercher la contamination dans les endroits les plus inaccessibles,
- augmenter les rendements de prélèvement,
- diminuer les temps de prélèvement,

Le nouveau modèle dénommé AMPS crayon délivre sur la surface une puissance acoustique surfacique bien supérieure aux précédents modèles, ce qui a nécessité l'intégration d'un système de refroidissement qui n'existait pas.

### **III Evolution des essais**

Les premiers essais ont été effectués avec l'AMPS (1) au CEA. Ils ont permis de vérifier que l'on pouvait prélever quel que soient les conditions d'adhésion :

- des particules de noir de fumée mélangées à du beurre, déposé sur une surface,
- des particules de noir de fumée fixées avec une colle sur une surface,

- les pigments de l'encre de chine après dépôt et séchage de celle-ci sur une surface,
- etc...

Nous avons démontré par ces essais, que l'on savait remettre en suspension tous les contaminants inertes, quelques soient les conditions d'adhérence.

Les essais de remise en suspension des organismes vivants sont conduits par l'INRA Massy avec l'AMPS (2).

La qualification des AMPS (3) a été réalisé à l'ECP (Ecole Centrale de paris laboratoire) EPAP en effectuant les mêmes essais que sur l'AMPS (1).

L'étalonnage des AMPS (3) a été conduit en remettant en suspension et en entraînant des billes de latex de  $0,5 \mu m$  déposées sur des wafers par le SMEC, mis en oeuvre dans le laboratoire du Professeur Renoux à l'Université de Paris XII (Créteil).

Des prélèvements dans des chais du Bordelais ainsi qu'à la Chambre d'Agriculture de la Gironde ont permis de mettre en évidence la présence de levures, de moisissures, et de bactéries dans des cuves de différents modèles, construites en différents matériaux (bois, acier inoxydable, aciers revêtus...).

#### IV Résultats des étalonnages et des essais in situ

Les prélèvements sur wafer, des billes de latex de  $0,5 \mu m$ , ont démontré, par contrôle au microscope, grossissement 1000, que l'efficacité était supérieure à 99%.

Le tableau ci-dessous met en évidence les résultats obtenus dans les chais du Bordelais.

N° ECHANTILLON	VOLUME FILTRE ML	LEVURES /BOITE	LEVURES /LITRE	MOISSISURES /BOITE	MOISSISURES /LITRE	BACTERIES /BOITE	BACTERIES /LITRE
1-1	40	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1
1-2	50	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1
2-1	25	< 1	< 1	1	40	< 1	< 1
2-2	30	< 1	< 1	2	80	< 1	< 1
3-1	60	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1	< 1
3-2	20	< 1	< 1	< 1	< 1	2	100
4-1	60	< 1	< 1	< 1	< 1	8*	130
4-2	60	< 1	< 1	< 1	< 1	16*	250
5-1	60	< 1	< 1	ENVAHISSEMENT	ENVAHISSEMENT	< 1	< 1
5-2	50	< 1	< 1	ENVAHISSEMENT	ENVAHISSEMENT	< 1	< 1
6-1	60	36	600	16	250	14*	230
6-2	60	< 1	< 1	2	35	73*	1200
7-1	30	48	1600	10	350	< 1	< 1
8-1	60	62	1035	3	50	> 1800	> 30 000
8-2	60	38	650	< 1	< 1	> 600	> 10 000

Différents types de colonies ont été trouvés sur les boîtes suivantes : (après analyse à l'état frais de chaque type de colonie, on note la présence de bactéries de taille et de forme variées, mais toutes frétilantes, donc forte présomption de bactéries acétiques).

4-1 : 2 colonies petites, rondes, jaunes ; 3 petites colonies blanches ; 2 grosses colonies blanches, crémeuse ; 1 colonie petite et noire.

4-2 : 12 petites colonies blanches ; 1 colonie jaune et 3 grosses colonies blanches et crémeuses.

6-1 : 10 petites colonies blanches ; 4 petites colonies jaunes.

6-2 : 1 colonie petite et noire ; 4 grosses colonies blanches et crémeuses ; 6 petites colonies jaunes et 62 petites colonies blanches.

D'autre part, une détermination de la turbidité a été réalisée ; le tableau ci-dessous donne les résultats obtenus.

N° ECHANTILLON	TURBIDITE (N.T.U.)
blanc	0.19
1	5.93
2	1.5
2 bis	0.27
3	0.61
4	0.42
5	0.24
6	0.55
7	0.44
8	0.34

## DISTRIBUTION EN TAILLE DES PARTICULES INERTES ET VIABLES DANS DES BATIMENTS D'ELEVAGE PORCIN.

C. DROAL <sup>1</sup>, G. TYMEN <sup>1</sup>, A. GUELLIL <sup>2</sup>, D. BOULAUD <sup>3</sup>

(1) U.B.O., L.P.A.R.A., FACULTE DES SCIENCES, 6 AVENUE LE GORGEU, BP 452, 29275 BREST.

(2) LDA <sup>22</sup>, 3 RUE DU SABOT, BP 54, 22440 PLOUFRAGAN.

(3) IPSN / DPEI / SERAC - CEA Saclay, Bât. 389, 91191 GIF-SUR-YVETTE.

### ABSTRACT

People are more and more concerned by the quality of environmental air in pig livestock buildings, because of the great number of respiratory illnesses listed in animals as well as in pig breeders.

Once recalled the various results published on the subject, we present our own results that confirm the high concentrations in non-viable or viable particles recorded in livestock buildings. In addition, their granulometric distribution is characterized.

### INTRODUCTION

L'attention portée à la qualité de l'air en terme de particules inertes ou viables dans l'atmosphère des bâtiments d'élevage porcin est une contribution essentielle aux autres mesures visant à améliorer les performances zootechniques. Les particules en suspension dans l'air doivent en effet être considérées comme une véritable nuisance car d'une part, les concentrations de poussières inhalées sont trop importantes, et d'autre part, elles jouent un rôle non négligeable dans la transmission des maladies infectieuses. De nombreuses enquêtes épidémiologiques réalisées dans ces bâtiments ont permis de mettre en évidence d'importants problèmes respiratoires aussi bien chez les animaux que chez les éleveurs.

Dans cet article, après avoir démontré l'importance du problème de l'empoussièrement dans ces bâtiments, on présente nos propres travaux expérimentaux qui permettent de caractériser le spectre dimensionnel des particules viables ou non viables en suspension dans l'air. Nous décrivons brièvement les diverses techniques de prélèvement et d'analyses que nous avons utilisées à cet effet. Enfin, nous discutons et comparons les spectres obtenus.

### POSITION DU PROBLEME

Alors que le niveau d'empoussièrement de l'air extérieur se situe, selon les régions, aux alentours de  $0.1 \text{ mg/m}^3$ , on observe des concentrations variant entre 1 et  $10 \text{ mg/m}^3$ , et pouvant même, d'après CERMAK et coll. (1978) s'élever jusqu'à  $400 \text{ mg/m}^3$ , témoignant par conséquent de l'ampleur de la pollution par les particules dans ces locaux d'élevage.

Quant aux micro-organismes, on estime leur contribution à la charge particulaire à quelques  $10^5$  à  $10^6$  germes/ $\text{m}^3$  d'air, ce qui est loin d'être négligeable comparé aux  $150$  germes/ $\text{m}^3$  d'air mesurés en général dans l'atmosphère.

La pertinence des données, relatant des fortes concentrations en poussières ou en micro-organismes dans les bâtiments d'élevage porcin montre combien les conditions environnementales actuelles des porcs sont loin d'être acceptables. L'étude de la qualité de l'air, et plus précisément de la détermination du spectre dimensionnel des particules inertes et viables constituent sont ainsi indispensables pour aboutir à la mise en place d'un procédé d'épuration efficace dans ces locaux d'élevage.

## MATERIELS

Trois campagnes de mesures ont été réalisées dans des bâtiments assez différents les uns des autres. L'un est voué à l'expérimentation ; nous y avons étudié principalement l'influence de la présence des animaux et du débit de ventilation sur la composante des particules inertes. Les deux autres sont plutôt des bâtiments d'élevages traditionnels.

Quelle que soit le type de bâtiments, tous les prélèvements ont été réalisés à environ un mètre de hauteur, afin qu'ils soient le plus représentatif possible de l'air inhalé par les animaux.

**Pour les particules inertes**, les concentrations massiques de particules sont déterminées à l'aide d'un filtre, d'un spectromètre inertiel et diffusionnel (SDI-2001), d'un impacteur basse pression (BERNER), et d'une batterie de sédimentation mise au point par BOULAUD et coll., (1983). Les mesures en nombre sont réalisées à l'aide d'un compteur optique (Palas PCS-2000) et d'une batterie de diffusion (TSI 3040) couplée à un compteur de noyaux (prototype). Ces différents appareils permettent non seulement de remonter à la concentration de certaines gammes de particules, mais aussi à leur spectre dimensionnel grâce aux méthodes d'inversion numérique que nous avons adaptées à cet effet (DROAL et TYMEN, 1995).

**Pour les particules viables**, nous utilisons aussi une batterie de sédimentation que nous avons adaptée spécifiquement pour leur prélèvement et l'analyse (DROAL et coll., 1994).

## RESULTATS OBTENUS - DISCUSSION

Les principaux résultats obtenus sont les suivants :

● Dans le tableau 1, nous avons consigné les concentrations totales des particules submicroniques mesurées au moyen de la batterie de diffusion au milieu d'un module de la porcherie expérimentale (Station de Pathologie Porcine de Ploufragan). Elles sont déterminées à partir de la concentration obtenue au premier canal de la batterie en tenant compte de l'efficacité du compteur. Ce module occupe un volume de 60 m<sup>3</sup>, contient 8 porcs de 100 kg environ.

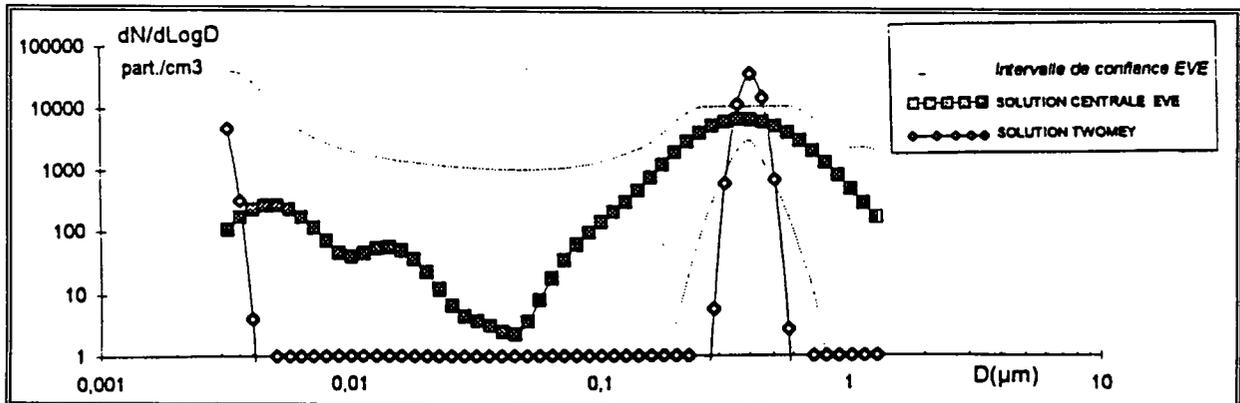
La ventilation est entièrement maîtrisée : un cadran de contrôle permet de visualiser la vitesse de rotation du ventilateur, permettant ainsi le contrôle du débit. La pression (surpression ou dépression) est calculée en fonction de l'écart entre le débit d'extraction et le débit de soufflage. L'air, filtré, provient de l'extérieur par une bouche située dans la partie centrale de la pièce. Les filtres, absolus, sont des panneaux à flux laminaire constitués de fibres de verre, avec une efficacité annoncée de 99,99 %. Ils sont associés à des pré-filtres, aussi formés par des fibres de verre, d'efficacité ASHRAE gravimétrique comprise entre 75% et 88%, lesquels sont nettoyés deux fois par semaine.

ETAT DE PRESSURISATION	DEBIT DE VENTILATION M <sup>3</sup> /H	CONCENTRATION PART./CM <sup>3</sup> (ABSENCE D'ANIMAUX)	CONCENTRATION PART./CM <sup>3</sup> (PRESENCE D'ANIMAUX)
DEPRESSION	570	3950	28300
	750	4900	39800
	1550	1520	4080
SURPRESSION	570	3270	47900
	750	2940	35300
	1550	89	15900

**TABLEAU 1 : CONCENTRATIONS PARTICULAIRES ENREGISTREES DANS UN MODULE DE PORCHERIE EXPERIMENTALE EN ABSENCE ET EN PRESENCE D'ANIMAUX ET SOUS DIVERSES CONDITIONS D'AMBIANCE.**

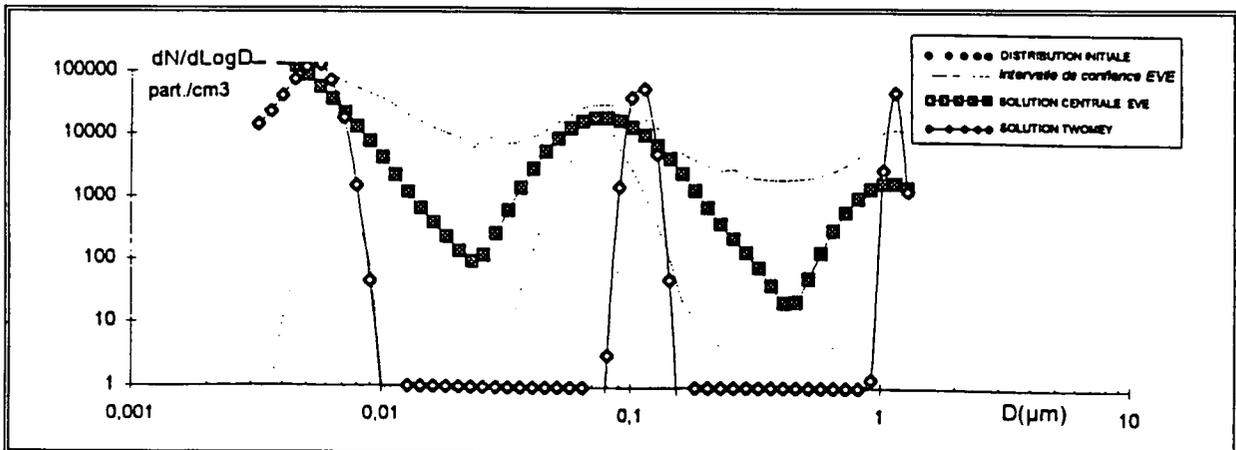
A l'évidence, il apparaît clairement que la **présence des animaux** entraîne une augmentation considérable du taux de particules en suspension dans l'air du module. Par ailleurs, on peut noter l'**influence du débit de ventilation** : les concentrations mesurées à 1550 m<sup>3</sup>/h sont toujours plus faibles qu'à 570 ou 750 m<sup>3</sup>/h que le module contienne des animaux ou non. Si le taux de renouvellement de l'air permet d'épurer les poussières, en revanche, bien que l'on devrait observer des concentrations plus importantes lorsque le module est en dépression, l'état de pressurisation ne semble pas jouer un rôle prépondérant sur le nuage particulaire.

La détermination des spectres dimensionnels de ces particules échantillonnées a aussi permis de montrer qu'en présence des animaux, il existe un, voire deux modes de particules supplémentaires. La figure 1 illustre le spectre dimensionnel des particules en suspension dans l'air du module dépourvu d'animaux, montre qu'il n'existe en effet qu'un seul mode de particules submicroniques se situant aux environs de 0,3 µm en diamètre que l'on peut expliquer par le trou d'efficacité fréquemment rencontré dans les dispositifs de filtration.



**FIGURE 1 : SPECTRE DIMENSIONNEL DES PARTICULES SUBMICRONIQUES EN SUSPENSION DANS L'AIR DU MODULE DEPOURVU D'ANIMAUX (DEPRESSION - 750 m<sup>3</sup>/h)**

Le spectre dimensionnel des particules (figure 2) en suspension dans l'air du module exposé aux mêmes conditions (état de pressurisation et débit de ventilation), mais contenant les animaux fait apparaître la présence, validée par l'étroit intervalle de confiance, de noyaux de condensation, et laisse également supposer la présence de très grosses particules.



**FIGURE 2 : SPECTRE DIMENSIONNEL DES PARTICULES SUBMICRONIQUES EN SUSPENSION DANS L'AIR DU MODULE EN PRESENCE DES ANIMAUX (DEPRESSION - 750 m<sup>3</sup>/h)**

● Dans les deux autres campagnes de mesures, réalisées dans des bâtiments plutôt traditionnels, nous nous sommes plutôt intéressés à la composante des particules microniques.

Des prélèvements d'air, effectués dans deux animaleries identiques (même volume, même nombre d'animaux...) mais maintenues à des températures différentes, nous ont permis de discuter de l'**influence de la température** et de la **présence des animaux**. C'est ainsi qu'à partir des valeurs répertoriées dans le tableau 2, nous pouvons constater un lien étroit entre la présence des animaux et celle des grosses particules. Les concentrations de celles-ci dans l'air extérieur sont très faibles

comparativement à celles obtenues dans les deux salles. Par ailleurs, ces résultats mettent clairement en évidence l'effet température sur les particules de diamètre supérieur à 0,3 µm. Dans toutes les classes de tailles considérées ici, la concentration particulaire est au moins 2 fois moins élevée dans la salle où la température est la plus élevée. On attribue cette différence de comportement au fait que les animaux sont moins actifs dans une ambiance plus chauffée (c'est ce que nous avons pu observer), ce qui atténue la remise en suspension des particules.

En ce qui concerne les spectres dimensionnels, nous avons pu montrer que bien qu'il existe des divergences importantes entre les concentrations massiques totales de particules (tableau 2), obtenues notamment entre la batterie de sédimentation et les impacteurs (SDI-2000 et impacteur à basse pression de type BERNER), ces techniques de mesures ont toutes permis d'identifier la présence de deux modes massiques stables de particules aux environs de 3-6 µm et de 10 µm (figure 5). Si le nombre d'animaux et la température influent sur les concentrations totales de particules, nous n'avons pu noter aucune variation au niveau des granulométries en fonction de ces paramètres.

NOMBRE DE PORCS	BERNER	SDI-2001	BATTERIE DE SEDIMENTATION
	Conc. (mg/m <sup>3</sup> )	Conc. (mg/m <sup>3</sup> )	Conc. (mg/m <sup>3</sup> )
146 (CAS A)	0,44	1,22	10,53
	0,45	0,61	
	0,49	1,20	
113 (CAS B)	0,51	1,18	4,85
	0,51	0,85	
	0,50	0,86	3,87
	0,54	0,79	
	0,59	0,57	3,16
0,41	1,07		

**TABLEAU 2 : CONCENTRATIONS DES PARTICULES MESUREES DANS LA SALLE D'ENGRAISSEMENT.**

● En ce qui concerne les **micro-organismes aéroportés**, les nombreux prélèvements d'air réalisés à l'aide de la batterie de sédimentation nous ont permis d'obtenir des résultats très intéressants. Chacun d'eux ont permis d'estimer la concentration moyenne des bactéries (flore totale) en suspension dans l'air d'une animalerie. Les valeurs sont regroupées dans le tableau 3.

NOMBRE DE PORCS	BATTERIE DE SEDIMENTATION CONC. TOTALE CFU/M <sup>3</sup>
146 (CAS A)	17,9 10 <sup>5</sup>
	20,1 10 <sup>5</sup>
113 (CAS B)	9 10 <sup>5</sup>
	8 10 <sup>5</sup>
	11,8 10 <sup>5</sup>
	8,1 10 <sup>5</sup>
	6,6 10 <sup>5</sup>

**TABLEAU 3 : CONCENTRATION DES BACTERIES MESUREES DANS LA SALLE ABRITANT 146 PUIS 113 PORCS.**

Les concentrations mesurées dans chacun des cas attestent de la forte présence des bactéries en suspension dans l'air et sont en accord avec diverses concentrations déjà mesurées dans les bâtiments d'élevage porcin et publiées dans la littérature (ATTWOOD, 1987 ; DONHAM, 1991 ; BUTERA et coll., 1991). Notons aussi, comme l'a fait remarquer DONHAM (1991), qu'elles diminuent lorsqu'il y a moins d'animaux dans la salle.

Sur la figure 3, nous présentons un exemple de spectres dimensionnels obtenus à partir de chacun de ces prélèvements. Dans les deux cas (A et B), les spectres se caractérisent tous par des allures bi-modales dans le domaine des particules microniques. Un premier mode se situe entre 10 et

15  $\mu\text{m}$ , l'autre, entre 2 et 6  $\mu\text{m}$ . Ils montrent que les bactéries associées avec des particules forment des aérosols microbiens dont le diamètre est, le plus souvent, supérieur à 10  $\mu\text{m}$ .

De cette étude sur les micro-organismes, il ressort que les grosses particules semblent être un excellent support pour les bactéries. En effet, si on compare le spectre dimensionnel des particules avec celui des particules porteuses de germes, on peut noter que le nombre de particules centrées autour de 10  $\mu\text{m}$  est très proche de celui des aérosols microbiens.

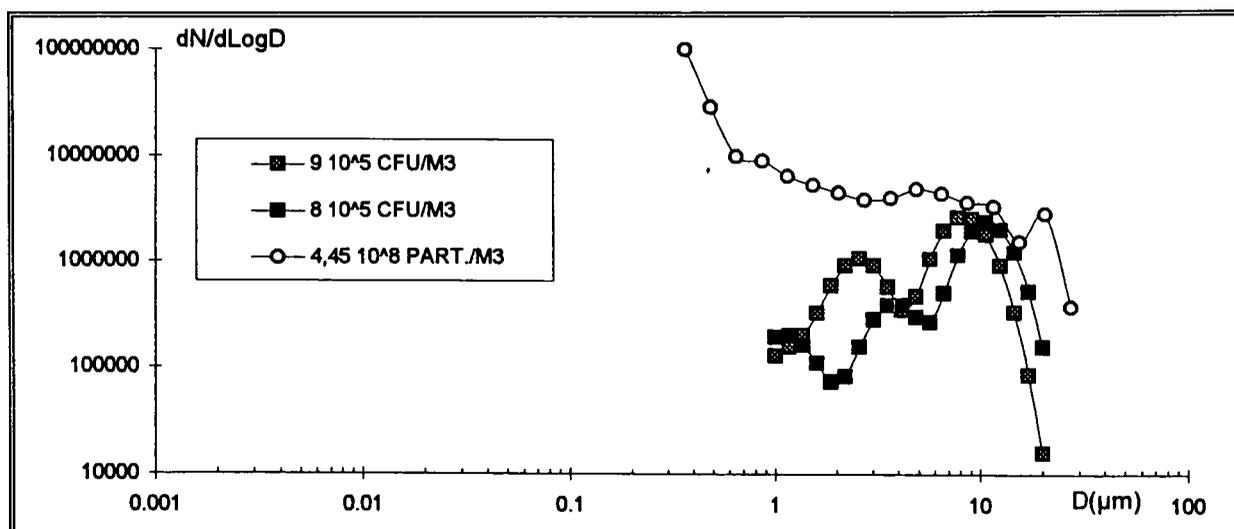


FIGURE3 : COMPARAISON DES SPECTRES GRANULOMETRIQUES DES BACTERIES (DEBIT : 1,3 L/MIN) AVEC CELUI DES PARTICULES (COMPTEUR PCS-2000).

## CONCLUSION

Les nombreux prélèvements effectués dans des conditions environnementales difficiles et peu adaptées à ce genre d'études ont permis de mettre en évidence la grande hétérogénéité des particules, l'influence de la ventilation, de la température, du nombre d'animaux... L'adaptation de deux algorithmes d'inversion non linéaire à plusieurs dispositifs d'échantillonnages nous a permis d'étudier non seulement les concentrations des particules inertes et viables en suspension dans l'air des bâtiments d'élevage porcin, mais aussi leur répartition granulométrique.

Les micro-organismes en suspension dans l'air des bâtiments d'élevage porcin ont fait l'objet de travaux spécifiques à l'aide de la batterie de sédimentation utilisée pour la première fois dans ce champ d'applications. Un aménagement des plaques de collection, adaptées au coulage de milieux récepteurs spécifiques, a permis de démontrer la capacité du système à différencier les micro-organismes sédimentables selon leur taille. Grâce aux techniques numériques d'inversion, nous avons pu reconstituer leur spectre dimensionnel entre 1 et 20  $\mu\text{m}$  et mis en évidence leur prédominance aux environs de 10  $\mu\text{m}$ .

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- ATTWOOD P., BROUWER R., RUIGEWAARD P., WERSLOOT P., DE WIT R., BOLEIJ J.S.M., 1987 : "A study of the relationships between airborne contaminants and environmental factors in dutch swine confinement buildings." Am. Ind. Hyg. Assoc. J. Vol. 48 (8), pp. 745-751.
- BOULAUD. D., CHOUARD J.C., FRAMBOUT C., MADELAINE G., 1983 : "Study of a sedimentation battery ." Journal of Aerosol Science. Vol. 14,3, pp. 421-424.
- BUTERA M., SMITH J.H., MORISSON W.D., HACKER R.R., KAINS F.A., OGILVIE J.R., 1991 : "Concentration of respirable dust and bioaerosols and identification of certain microbial types in a hog-growing facility." Can. J. Anim. Sci. Vol. 71, pp. 271-277.
- CERMAK J.P. et ROSS P.A., 1978 : "Airborne dust concentrations associated with animal housing tasks." Farm building Progress. Vol. 51, pp.11-15.

- **CROOK B., ROBERTSON J.F., TRAVERS GLASS S.A., BOTHEROYD E.M., LACEY J., TOPPING M.D., 1991** : "Airborne dust, ammonia, microorganisms, and antigens in pig confinement houses and the respiratory health of exposed farm workers." *Am. Ind. Assoc. J.* 52(7), pp. 271-279.
- **DONHAM K.J., POPENDORF W., PALMGREN U., LARSSON L., 1986** : "Characterization of dusts collected from swine confinement buildings." *American Journal of Industrial Medicine*, Vol. 10, pp. 294-297.
- **DONHAM K.J., 1991** : "Association of environmental air contaminants with disease and productivity in swine." *Am. J. Vet. Res.*, Vol. 52, n°10.
- **DROAL C., BOURGUEIL E., TYMEN G., 1994** : "Détermination du spectre dimensionnel des micro-organismes aéroportés à l'aide d'une batterie de sédimentation." *Les Assises nationales QUALIBIO 1994 "SANTÉ ET ENVIRONNEMENT HOSPITALIER."*
- **DROAL C., 1995** : "Aérosols et micro-organismes - Techniques de prélèvements et d'analyses des spectres dimensionnels - Applications au milieu de l'élevage porcin". Thèse de doctorat de l'Université de BREST.
- **DROAL C., TYMEN G., 1995** : "Détermination des distributions dimensionnelles des aérosols à partir de deux algorithmes d'inversion non-linéaire appliqués à plusieurs dispositifs d'échantillonnage." 11<sup>ème</sup> Journées du COFERA, PARIS, 5-6 Décembre 1995.
- **HEBER A.J., STROIK M., FAUBION J.M., WILLARD L.H., 1988** : "Size distribution and identification of aerial dust particles in swine finishing buildings." *Transactions of the ASAE*, 31 (3). pp 882-887.
- **HINZ T., 1989** : "Sampling airborne particulates in animal houses." In *Agriculture.- "Aerosol sampling in animal houses"*, report of the Commission of the European Communities. n° EUR 11877 EN - edited by C.M WATHES & J.M. RANDALL, pp.54-58.
- **PAATERO P., RAUNEMAA T., 1989** : "Analysis of CO<sub>2</sub> thermograms by the new extreme-value estimation (EVE) deconvolution principle." *Aerosol Science Technology.*, Vol. 10, pp 365- 369.
- **TWOMEY S., 1965** : "The application of numerical filtering to the solution of integral equations encountered in indirect sensing measurements." *J. Franklin Inst.*, Vol. 279, pp. 95-109.
- **ROBERTSON J.H., FRIEBEN W.R., 1984** : "Microbial validation of vents filters. *Biotechnologies and Bioengineering*, 26, pp. 828-835.
- **TWOMEY S., 1963** : "On the numerical solution of FREDHOLM integral equations of the first kind by the inversion of the linear system produced by quadrature." *Journal Assoc. Computing Mach.*, 1968, Vol. 10, pp. 97-101.

## DIFFUSION DES DESCENDANTS A VIE COURTE DU RADON DANS UN TUBE CYLINDRIQUE EN ECOULEMENT LAMINAIRE

J. Malet<sup>1</sup>, N. Montassier<sup>1</sup>, D. Boulaud<sup>1</sup>, A. Renoux<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, Département de Protection de l'Environnement et des Installations,  
Service d'Etudes et de Recherche en Aérocontamination et en Confinement  
CEA/Saclay, Bât. 389, 91 191 Gif-sur-Yvette cedex, France

<sup>2</sup> Université Paris XII, Laboratoire de Physique des Aérosols et Transferts des Contaminants  
Av. du Général de Gaulle, 94010 Créteil cedex

### MOTS-CLES

Diffusion brownienne, dépôt, écoulement de Poiseuille, descendants du <sup>222</sup>Rn, <sup>218</sup>Po

### RESUME

On s'intéresse ici au dépôt par diffusion d'aérosols nanométriques de période radioactive courte, les descendants du <sup>222</sup>Rn (<sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi, <sup>214</sup>Po). Le but est de déterminer numériquement une fraction pénétrante de ces éléments dans un tube cylindrique en écoulement laminaire (méthode des deux filtres). Le code de calcul utilisé (TRIO EF) est validé sur des théories analytiques pour aérosols non radioactifs et pour aérosols avec terme de source constant. Les corrélations sont très bonnes. On étudie ensuite l'influence des effets d'entrée, de la perte de charge du filtre aval, et de la désintégration radioactive sur la fraction pénétrante. Ces influents corrigent la fraction pénétrante de 5 à 20% selon le cas étudié. Or le calcul de la fraction pénétrante est utilisé pour déterminer un coefficient de diffusion ; le code permet ainsi de corriger de 5 à 25% le coefficient de diffusion du <sup>218</sup>Po déterminé par la méthode des deux filtres ; il permet également de déterminer numériquement un coefficient de diffusion pour les deux autres descendants du radon.

### ABSTRACT

The diffusion of short-lived radon daughters of nanometric size (<sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi, <sup>214</sup>Po) is studied theoretically. In this study, the penetration fraction through a circular cross-section tube with filters at both ends is calculated numerically. The numerical code used here is validated for non-radioactive aerosols and for aerosol with constant formation in flight. A good correlation of our results is observed with the analytical ones. The influence of the Poiseuille flow development, the downstream filter effect and the radioactive loss of particles is studied here. Those effects lead to a correction of the <sup>218</sup>Po penetration fraction by about 5-20%. Moreover, the penetration fraction is used to determine a diffusion coefficient of the species. Also, the numerical results correct the <sup>218</sup>Po diffusivity by about 5-25% ; also, this numerical method can help to determine a diffusion coefficient of the <sup>214</sup>Pb and <sup>214</sup>Bi.

L'étude concerne le dépôt sur les surfaces d'aérosols nanométriques à vie courte : la fraction libre des descendants à vie courte du radon (<sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi, <sup>214</sup>Po). Le mécanisme de dépôt étudié ici est la diffusion brownienne.

### INTRODUCTION

Les valeurs de vitesse de dépôt de la fraction libre des descendants à vie courte du radon rapportées dans la littérature s'étendent sur une large gamme : 0,01 à 0,7 cm.s<sup>-1</sup>. Or les mécanismes de dépôt des aérosols par diffusion brownienne sont bien connus de la littérature. Il est donc nécessaire de comprendre ce qui différencie le dépôt des descendants libres du radon, du dépôt des aérosols. Pour cela, on étudie la fraction déposée, par diffusion brownienne, des descendants libres du radon dans un tube cylindrique en écoulement laminaire.

*Description de l'étude* : une concentration connue en atomes de radon est envoyée dans un tube cylindrique, doté d'un filtre à chacune de ces extrémités. Le filtre amont retient toutes les particules et laisse passer le gaz radon. Les descendants du radon se forment alors dans le tube par désintégration radioactive (« la formation en vol »). Les particules peuvent soit se déposer, soit se désintégrer (« la disparition en vol »), soit être collectées sur le filtre aval. On détermine donc une fraction pénétrante  $F_{pén}$ , une fraction déposée,  $F_{dép}$ , et une fraction désintégrée  $F_{dés}$ , reliées par la relation :

$$F_{pén} = 1 - F_{dép} - F_{dés}$$

### POSITION DU PROBLEME

Pour calculer une fraction pénétrante, il est nécessaire de connaître le champ des vitesses et le champ des concentrations en tout point du tube. La vitesse est calculée à partir des équations de Navier Stokes ; le profil des vitesses dans un tube cylindrique en écoulement laminaire est parabolique. La concentration se calcule en résolvant l'équation de transport de masse. Celle-ci s'exprime par un terme de convection, un terme de diffusion brownienne, un terme de production par désintégration de l'élément père et un terme de disparition par désintégration de l'élément étudié. On a n équations couplées pour n descendants du radon étudiés. On ne peut pas résoudre analytiquement ces n équations. L'utilisation

d'un code de calcul de mécanique des fluides aux éléments finis, nommé TRIO EF (code développé au CEA/DRN/SEMT) a donc été nécessaire.

### ETUDE NUMERIQUE

#### VALIDATION DU DEPOT PAR DIFFUSION BROWNIENNE

Pour des aérosols, l'équation de transport de masse se résume en un terme de convection et un terme de diffusion. Cette équation se résout analytiquement ; la figure 1 compare les résultats de théories analytiques (Ingham) et les résultats obtenus par TRIO EF. La corrélation est très bonne. Les phénomènes de dépôt par diffusion brownienne sont donc bien pris en compte par le code de calcul.

#### VALIDATION DE LA DESINTEGRATION RADIOACTIVE

La fraction pénétrante du  $^{218}\text{Po}$  a déjà été étudiée analytiquement en supposant le régime des vitesses établi et en négligeant la désintégration radioactive du  $^{218}\text{Po}$ . La figure 2 compare la fraction pénétrante du  $^{218}\text{Po}$  obtenue par les théories analytiques (Berezhnoi) à celle obtenue par le code de calcul. La corrélation est très bonne. Le terme source du  $^{218}\text{Po}$ , combiné au dépôt par diffusion, est donc bien pris en compte par le code de calcul.

Par ailleurs, les lois radioactives se retrouvent par le code de calcul TRIO EF avec une erreur inférieure à 1,5%. Les termes source et puits des trois descendants du radon sont donc bien pris en compte par le code de calcul.

#### INFLUENCE DES EFFETS D'ENTREE, DU FILTRE AVAL, ET DE LA DESINTEGRATION RADIOACTIVE

Le code de calcul permet de prendre en compte des phénomènes négligés dans les théories analytiques. Le développement de la couche limite dynamique crée une composante radiale de la vitesse dirigée vers le centre du tube ; il y a alors une diminution du flux de particules vers la paroi. La perte de charge du filtre aval engendre une composante radiale de la vitesse dirigée vers la paroi du tube ; il y a alors une augmentation du flux de particules vers la paroi. La désintégration radioactive de l'élément étudié entraîne une baisse de la fraction pénétrante puisqu'il faut alors prendre en compte la fraction désintégrée dans la relation entre la fraction déposée et la fraction pénétrante. Ces différents phénomènes se compensent plus ou moins selon les caractéristiques géométriques du tube et la vitesse moyenne d'écoulement ; il en résulte une diminution générale de la fraction pénétrante, allant de 2 à 20% (fig. 3)

#### COEFFICIENT DE DIFFUSION DU $^{218}\text{Po}$

Une telle étude de la fraction pénétrante du  $^{218}\text{Po}$  dans un tube cylindrique en écoulement laminaire est utilisée pour la mesure du coefficient de diffusion de cet élément. En ajustant la fraction pénétrante théorique sur la fraction pénétrante expérimentale, on en déduit le coefficient de diffusion. Une erreur sur le calcul théorique de la fraction pénétrante engendre donc une erreur sur le coefficient de diffusion. Le tableau ci-dessous donne des exemples (pris dans la littérature) d'erreurs sur la détermination du coefficient de diffusion du  $^{218}\text{Po}$  en utilisant une théorie analytique pour aérosols et une théorie analytique pour aérosols avec formation en vol.

	D déduit en utilisant une théorie aérosols ( $\text{m}^2/\text{s}$ )	D déduit des résultats TRIO EF ( $\text{m}^2/\text{s}$ )	Erreur sur le calcul du coefficient de diffusion (TRIO EF)
Chamberlain & Dyson	5,54e-6	9,00e-6	+62,45
Raabe	3,40e-6	7,1e-6	+108%

D déduit en utilisant une théorie pour aérosol avec formation en vol ( $\text{m}^2/\text{s}$ ) (Frey)	D déduit des résultats TRIO EF	D déduit des résultats de Sasse	Erreur sur le calcul du coefficient de diffusion (TRIO EF)
2,7e-6	2,40e-6	2,40e-6	-11,1%
4,4e-6	3,45e-6	3,99e-6	-21,6%
7,2e-6	6,28e-6	6,53e-6	-12,8%

L'utilisation d'une théorie pour aérosols sans formation en vol est donc inadaptée pour la détermination du coefficient de diffusion du  $^{218}\text{Po}$  ; l'utilisation d'une théorie analytique pour aérosols avec formation en vol engendre une erreur de 5 à 25% sur la détermination du coefficient de diffusion. Sasse effectuée la

même étude avec un code de calcul aux différences finies et corrige le coefficient de diffusion de 10 à 20%.

#### FRACTIONS PENETRANTES DES $^{214}\text{Pb}$ ET $^{214}\text{Bi}$

Le code de calcul permet également de calculer la fraction pénétrante du  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ . (fig. 4). Leur fraction pénétrante est légèrement supérieure à celle du  $^{218}\text{Po}$ . En effet, bien que ces particules présentent toutes le même gradient de concentration vers la paroi, comme le montre la figure 5, l'évolution axiale de la concentration des trois descendants met en évidence la formation plus tardive du  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  (figure 6). A gradient de concentration égal, la fraction pénétrante est donc supérieure pour les  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ .

On peut par ailleurs signaler que le minimum de concentration en descendants au centre du tube observé sur la figure 4 est dû à la vitesse maximum dans cette région du tube ; comme il y a ici formation en vol, plus le temps de vol est court, moins il y a de particules.

#### CONCLUSION

Cette étude numérique permet d'expliquer une partie des résultats divergents trouvés dans la littérature pour la vitesse de dépôt :

- le code de calcul montre que l'on ne peut pas négliger la formation et la disparition en vol de ces particules dans toute étude de leur dépôt.
- le coefficient de diffusion brownienne, paramètre important pour l'étude du dépôt de ces particules, est entaché d'une erreur lorsqu'il est déterminé par la méthode des deux filtres en utilisant une théorie analytique pour aérosols avec formation en vol. Le code de calcul permet de chiffrer cette erreur entre 5 et 25%.

Cette étude a également permis de calculer une fraction pénétrante pour le  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ , ce qui pourrait permettre la détermination d'un coefficient de diffusion de ces particules.

Enfin, ce code de calcul est un bon outil pour l'étude du dépôt par diffusion d'aérosols nanométriques à période radioactive courte. Il devrait être également un bon outil pour la détermination d'une vitesse de dépôt de ces particules.

#### BIBLIOGRAPHIE

- Berezhnoi V.M., Kirichenko, V.V. (1964) Theory of diffusive deposition of decay products of inert gases in circular and flat channel, *Atomnaya Energiya*, 17, (4), 300-302
- Chamberlain A.C., Dyson E.D. (1956) *Br. J., Radiol.* 29, 317
- Frey, G., Hopke, P.K. (1981) Effects of trace gases and water vapor on the diffusion coefficient of  $^{218}\text{Po}$
- Ingham D.B. (1975) Diffusion of aerosols from a stream flowing through a cylindrical tube, *J. Aerosol Sci.*, 6, 125-132
- Raabe O. G., M. E. Wrenn (1969) Analysis of the activity of radon daughter samples by weighted least squares, *Health Physics* 17:593-605
- Sasse, Gadgil and Nazaroff. (1994) On the measurement of  $^{218}\text{Po}$  Diffusivity using the two-filter method", *J. Aerosol Sci.*, 25, (4), 689-697

Figure 1 :

Fraction pénétrante des aérosols en fonction du nombre adimensionnel alpha  
 Comparaison entre les calculs TRIO EF et les théories analytiques

Domaine testé :  
 $0,5 < L < 2m$   
 $0,02 < R < 0,04m$   
 $1e-5 < D < 1e-7m^2/s$   
 $Re < 1200$

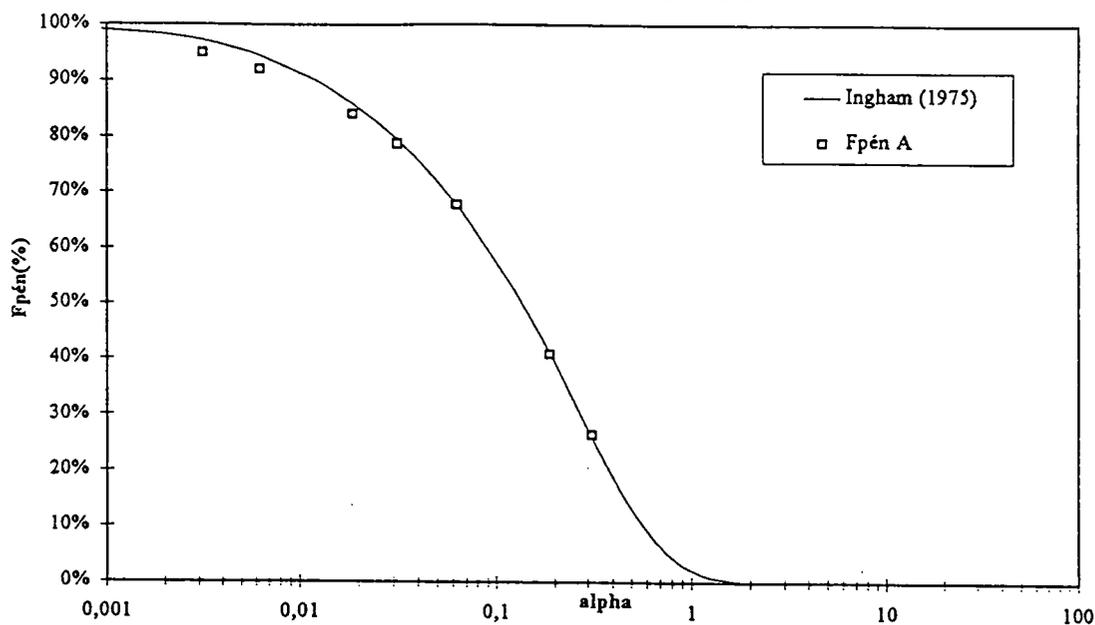
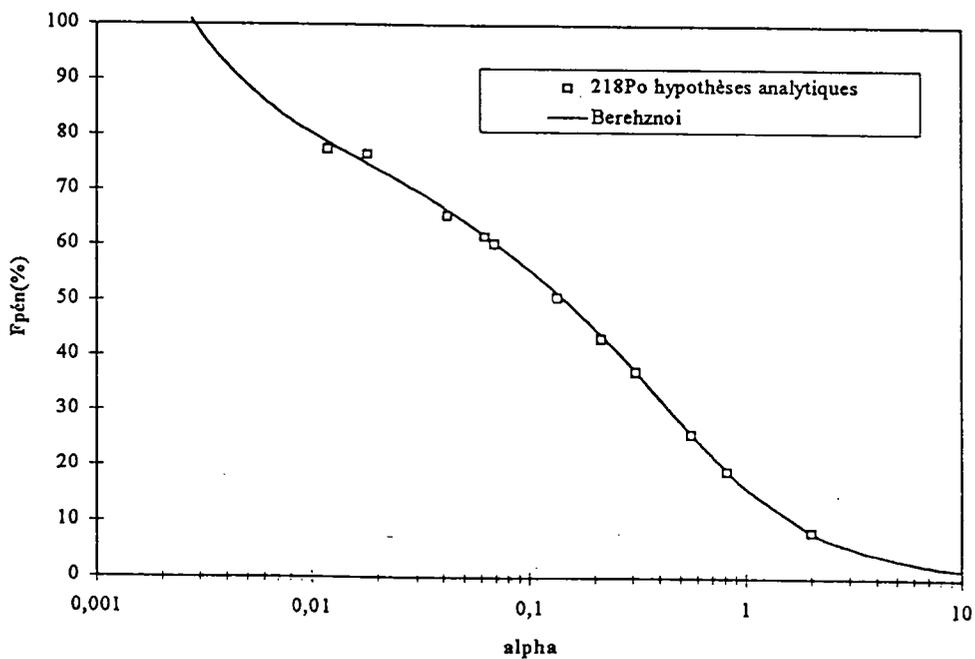


Figure 2 :

Fraction pénétrante du <sup>218</sup>Po en fonction du nombre adimensionnel alpha  
 Comparaison entre les résultats TRIO EF et les théories analytiques

Domaine testé :  
 $0,5m < L < 2m$   
 $0,01m < R < 0,04m$   
 $2e-6m^2/s < D < 9e-6m^2/s$   
 $Re < 1200$



Nomenclature : L : longueur du tube  
 R : rayon du tube  
 V : vitesse moyenne d'écoulement dans le tube  
 D : coefficient de diffusion des particules

$$\alpha = \frac{D * L}{R^2 * V}$$

Figure 3 : Fraction pénétrante du  $^{218}\text{Po}$  en fonction du nombre adimensionnel alpha  
Influence de l'établissement du régime parabolique des vitesses, de la perturbation créée par le filtre aval, et de la désintégration radioactive du  $^{218}\text{Po}$

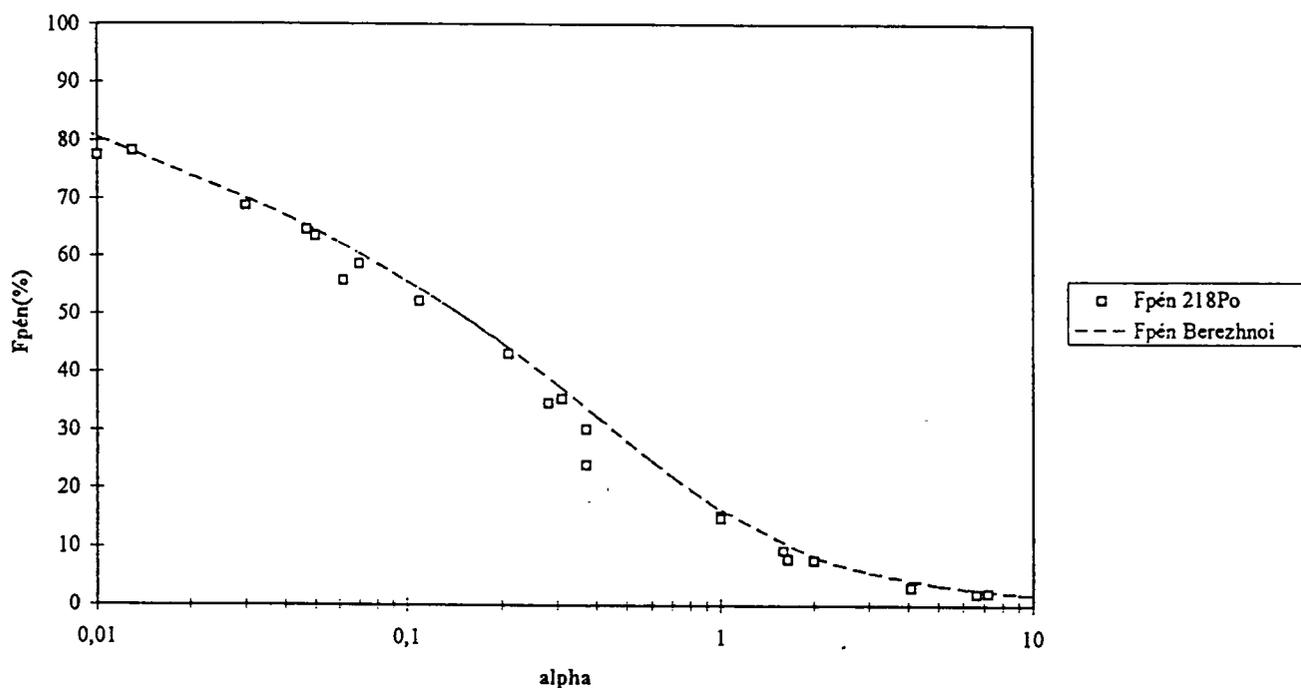


Figure 4 : Comparaison entre les fractions pénétrantes des trois premiers descendants du radon en fonction du nombre adimensionnel alpha

Domaine testé :  
 $0,5\text{m} < L < 2\text{m}$   
 $0,01\text{m} < R < 0,04\text{m}$   
 $2\text{e-}6\text{m}^2/\text{s} < D < 9\text{e-}6\text{m}^2/\text{s}$   
 $Re < 1200$

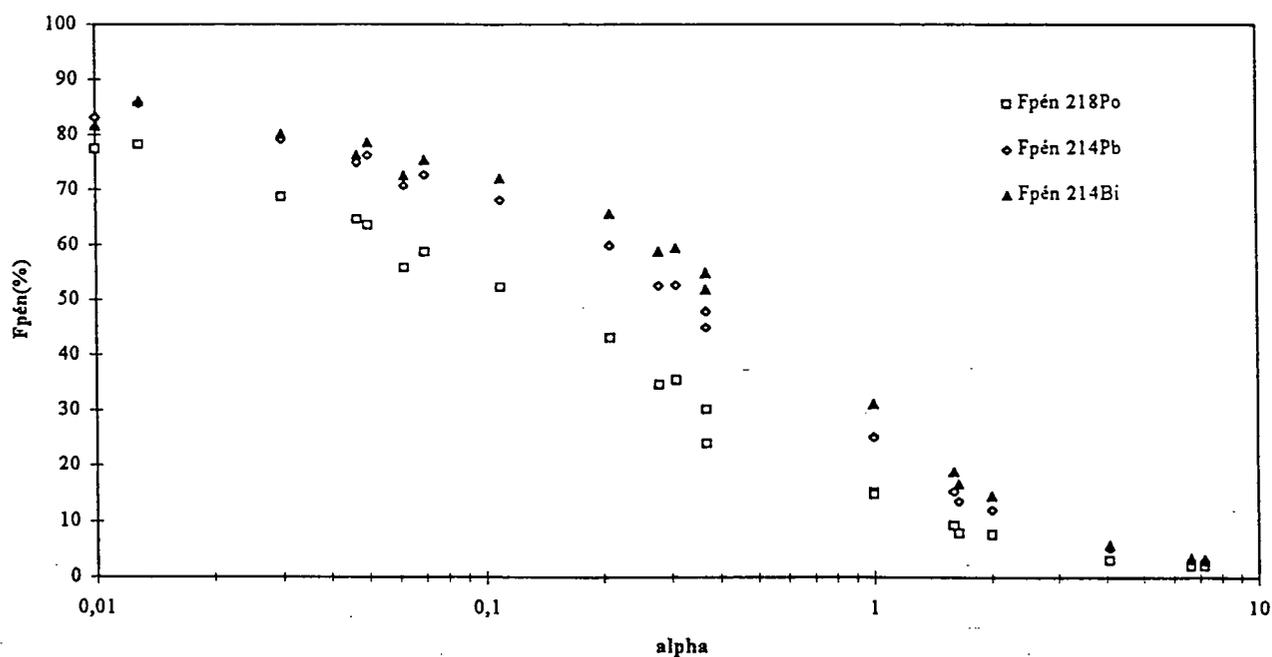


Figure 5 : Profil radial d'activité normalisée par rapport à son maximum pour les trois premiers descendants du radon  
 ( $L=2m$ ,  $R=0,04m$ ,  $V_{moy}=0,08m/s$ ,  $D=5,54e-6m^2/s$   
 $Re=448$ ,  $Sc=2,6$ ,  $Pe=1155$ )

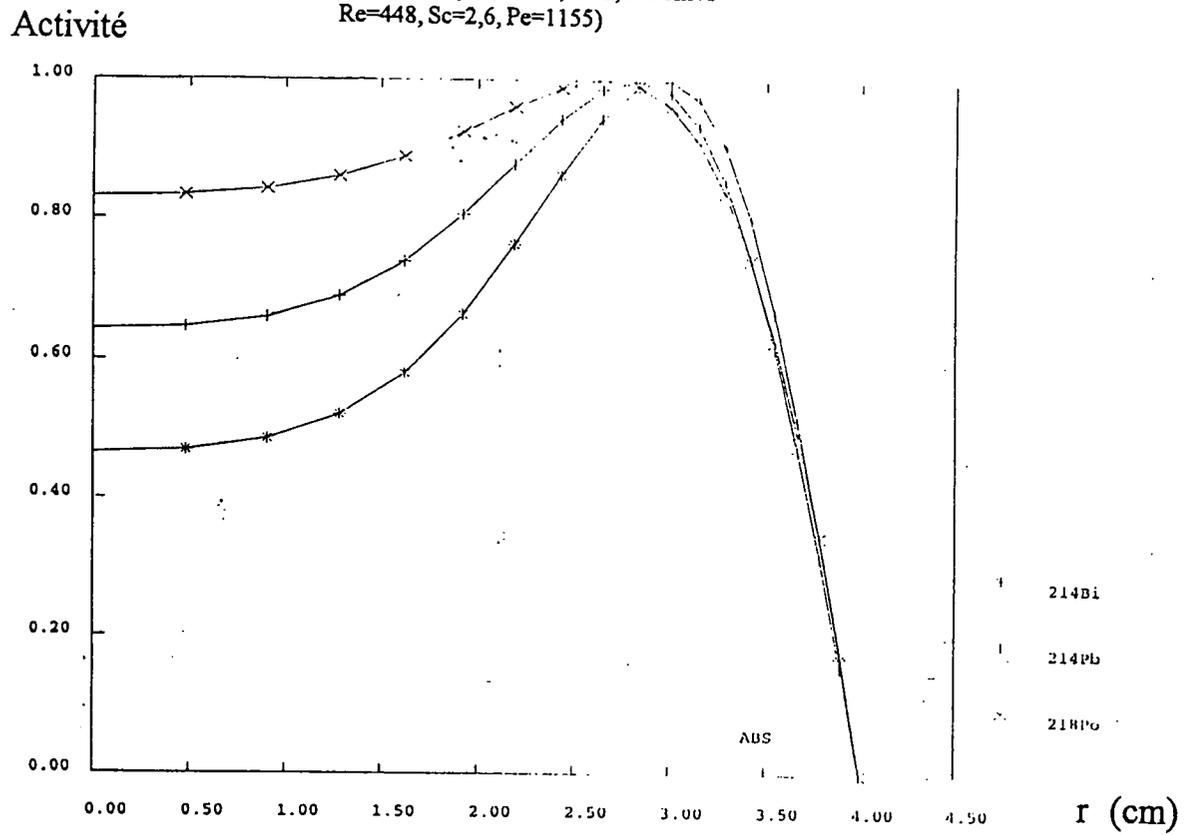
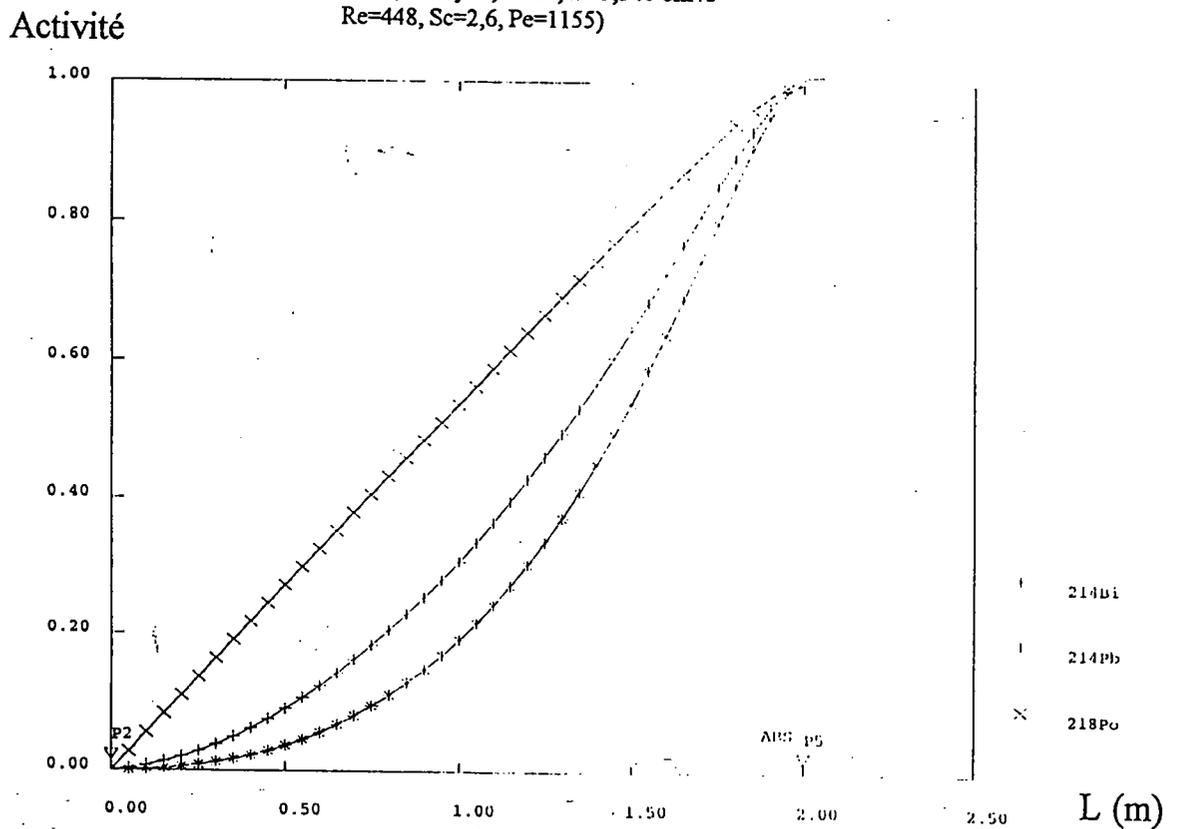


Figure 6 : Profil axial d'activité normalisée par rapport à son maximum pour les trois premiers descendants du radon  
 ( $L=2m$ ,  $R=0,04m$ ,  $V_{moy}=0,05m/s$ ,  $D=5,54e-6m^2/s$   
 $Re=448$ ,  $Sc=2,6$ ,  $Pe=1155$ )



## UTILISATION D'UN CANAL ANNULAIRE DE DIFFUSION POUR LA MESURE INTEGREE DE LA FRACTION LIBRE DU RADON-222

D. Kerouanton\*, G. Tymen\*, D. Boulaud\*\*

\* U.B.O, Laboratoire de Physique des Aérosols et de la Radioactivité Atmosphériques, Faculté des sciences et Techniques, B.P 809, 29275 BREST CEDEX

\*\* Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, Département de Protection de l'Environnement et des Installations, Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols, IPSN/CEA, Bat 389, CE Saclay, 91191 GIF-SUR-YVETTE CEDEX.

**Summary-Use of a diffusional annular channel for an integrated measurement of the unattached fraction of Radon-222 decay products.** "Unattached" fraction of Radon-222 decay products in air, represents particles which size lies from 0.5 nm to a few nanometers. Its size distribution is still badly known but its importance in the calculation of irradiation doses received by an individual is primordial. Among techniques currently used for the collection and the study of this "fine" component, wire screens constitute the simplest way for punctual measurements. In order to dispose of a technique able to integrate free radon daughter concentration fluctuations over long periods, we have built a 30 cm-long annular channel which inner cylinder (radius 2.37 cm) is recovered by a Kodak LR 115  $\alpha$  track detector associated with a 13  $\mu$ m thickness Mylar film. With the choice of a 4 nm cut-off diameter, corresponding to a 2.5 mm inter-cylinder space and a flow rate of 4.5 l/mn, almost the majority of free radon progeny (specially the Po-218) is collected on the cylindrical surfaces. The chemical development of the cellulose nitrate films and the analysis of tracks by a spark counting technique, allow to evaluate the Po-218 as unattached form. From this procedure, it was possible to obtain informations on the size distribution of this component, by studying the track density on the length of the nitrate film. After a short description of theoretical aspects on the collection efficiency of the annular channel obtained by an analytical approach, first results on the experimentation of the annular channel carried out in a radon chamber are reported.

Radon progeny/"Unattached" fraction/ annular diffusion channel/ LR 115  $\alpha$  track detector

### I- Introduction

Le radon-222 est un gaz rare radioactif présent dans les sols et les matériaux de construction en teneurs variables. On le retrouve après émanation, dans les atmosphères confinées des habitations où il se désintègre. Bien que cet élément fût mis en évidence dès le début du siècle, la radioactivité du Radon ne fût vraiment prise en considération que dans les années 1950, notamment pour la radioprotection des mines d'uranium. Plus tard, les économies d'énergies, préconisées par de nombreux gouvernements dès les crises pétrolières des années 1970, conduisirent à rendre de plus en plus étanches l'intérieur des maisons créant ainsi de véritables enceintes closes propices à l'accumulation du Radon. On considère d'ailleurs aujourd'hui l'inhalation du radon et des ses descendants comme responsable de la moitié environ de l'irradiation naturelle reçue par un individu (Nations-Unies, [UN82]).

On se préoccupe aujourd'hui de plus en plus de l'exposition individuelle aux faibles doses d'irradiation et aux effets induits potentiels. C'est pourquoi de nombreuses études de laboratoire et de terrain ont été entreprises ces dernières années sur le cas spécifique du Radon. En fait le risque sanitaire dû au Radon n'est pas lié au gaz lui-même (celui-ci étant inerte chimiquement, il ne se fixe pas et ne réagit avec les tissus de l'organisme) mais à ses produits de filiation à vie courte, particules solides chargées positivement pour la plupart qui ont tendance à se fixer sur les particules naturelles de l'air ambiant. Ces descendants peuvent être inhalés et se déposer dans l'arbre respiratoire où ils irradient les tissus et les cellules en causant des dommages susceptibles d'entraîner le développement d'un cancer broncho-pulmonaire. On a l'habitude de considérer les descendants du Radon-222 sous la forme de deux composantes: une fraction dite non-attachée de diamètre particulaire moyen de 1 nm, et une composante attachée présentant un spectre dimensionnel plus large de diamètre moyen se situant vers 100-200 nm.

Si dans des conditions courantes des atmosphères intérieures, la fraction non-attachée représente près d'une dizaine de pourcents de l'activité  $\alpha$  totale due aux dérivés du Radon, elle représente un taux de conversion exposition-dose huit fois supérieur à celui de la fraction attachée [JA88]. Ceci justifie que l'on s'y intéresse de plus près. De tous les dérivés à vie courte du radon-222, le  $^{218}\text{Po}$  représente plus de 90% de la fraction libre [RE90], d'autres travaux concernant la fraction libre ont montré qu'en règle générale, l'activité du  $^{214}\text{Bi}$  (et donc du  $^{214}\text{Po}$ ) sous forme libre est faible, même à basse concentration de particules dans l'atmosphère [RE90], [TY91]. Il est donc très intéressant de pouvoir étudier le  $^{218}\text{Po}$  sous forme non-attachée, cette composante semblant être la plus néfaste pour les poumons des personnes exposées.

Mais nos connaissances sur cette composante fine de la descendance du Radon-222 restent incomplètes, notamment en ce qui concerne sa distribution dimensionnelle, il existe naturellement des méthodes de collection et d'analyse de cette composante fine de l'aérosol radioactif naturel, mais elles sont le plus souvent ponctuelles (impacteurs de Mercer ou grilles de tamis [NA88]) et ne permettent pas l'intégration des fluctuations de concentration sur de longues périodes d'exposition. Dans cette dernière optique, nous avons cherché à développer

une méthode utilisant un détecteur de traces  $\alpha$  du type LR115 de Kodak et un canal de diffusion. En ce qui concerne cette dernière, notre choix s'est porté vers un système à géométrie annulaire susceptible d'éviter tout problème d'encombrement ou d'effet de bords, permettant une fixation aisée du film détecteur et surtout capable de fournir une efficacité de collection semblable au canal rectangulaire "plat"

Dans cet article, nous examinons succinctement la pénétration des petites particules dans un conduit annulaire, puis optimisons ses dimensions pour la collection de la fraction libre du Radon-222. Enfin, nous présentons le mode de détection que nous avons choisi pour comptabiliser les émissions alpha du Po-218

## II-Pénétration des petites particules dans un canal annulaire de diffusion

Lorsque des particules d'aérosols, en suspension dans un fluide quelconque, passent au travers d'un tube, elles entrent, grâce au phénomène de diffusion, en contact avec les parois où elles se déposent. Ce principe physique est à la base de la conception des batteries de diffusion. La concentration  $C$  s'obtient, pour un appareil à symétrie cylindrique par exemple, en intégrant une équation du type :

$$(1) \quad u(r) \frac{\partial C(r, x)}{\partial x} = D \left[ r \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial C(r, x)}{\partial r} \right) \right]$$

Dans cette dernière,  $u(r)$  représente le profil de vitesse selon l'axe,  $D$  ( $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ) est le coefficient de diffusion des particules considérées. Le terme de diffusion axiale est ici négligé. Ce genre d'équation a fait l'objet de traitement les plus divers par de nombreux auteurs pour différentes géométries: canal cylindrique [In75], ou canal rectangulaire [BU80]. Depuis quelques années, une nouvelle géométrie combinant les avantages des deux précédents, le canal annulaire en l'occurrence, est utilisé pour la mesure d'espèces chimiques dans l'air. Ces systèmes sont appelés "denuders" [PR89].

Soit un aérosol de concentration initiale  $C_0$ , pénétrant dans un canal annulaire de rayon interne  $R_1$ , externe  $R_2$  et de longueur  $L$ . Il existe un gradient transversal de vitesse dont le profil est donné par:

$$(2) \quad u(r) = \frac{2\bar{U}}{\gamma} \left[ 1 - \left( \frac{r}{R_2} \right)^2 + \beta \ln \left( \frac{r}{R_2} \right) \right]$$

$$\text{avec (3)} \quad A = \frac{R_1}{R_2}, \quad \beta = \frac{(A)^2 - 1}{\ln(A)}, \quad \gamma = (A)^2 + 1 + \beta, \quad \bar{U} = \frac{Q}{\pi(R_2^2 - R_1^2)}$$

$Q$  représente le débit du fluide dans le tube et  $\bar{U}$  la vitesse moyenne. La concentration  $C(r, x)$  s'obtient par la résolution de l'équation (1) avec les conditions aux limites  $C(R_1, x) = C(R_2, x) = 0$  quelque soit  $x$  appartenant à  $]0, L]$ . Les développements mathématiques sont longs [KE95a], aussi nous ne donnerons ici que la forme du résultat final ainsi que deux exemples numériques.

$$(6) \quad E = 1 - \frac{\bar{C}}{C_0} = 1 - \sum_{n=1}^{\infty} K_n e^{-\frac{2\alpha_n^2 D L}{4\bar{U}(R_2 - R_1)^2}}$$

Les valeurs propres  $\alpha_n$  et les coefficients  $K_n$  s'obtiennent grâce aux conditions aux limites. A titre d'exemple donnons l'efficacité de collection pour le rapport  $R_1/R_2 = 0,9$  (nous nous limitons aux trois premiers termes qui s'avèrent être suffisants dans la pratique)

$$(7) \quad E = 1 - 0,91029 \times e^{-2 \times (3,8828)^2 \times \Delta} - 0,00007 \times e^{-2 \times (8,4798)^2 \times \Delta} - 0,05312 \times e^{-2 \times (13,0926)^2 \times \Delta} - \dots$$

## III- Optimisation des dimensions du canal annulaire pour la collection de la fraction "libre" du Po-218

Le diamètre moyen du Po-218 libre dans les habitations se situe aux alentours de 0,9 à 1,2 nm, Ramamurthi [RA89] montra qu'un diamètre de coupure à 50 % fixé à un maximum de 4 nm s'avérait être pour collecter la quasi-totalité de la fraction libre de la descendance du Radon-222. Cette condition appliquée à notre système nous a conduit à dimensionner notre canal de la façon suivante: longueur  $L = 30\text{cm}$ , rayon interne du

canal  $R_1 = 2,39$  cm et le rayon externe  $R_2 = 2,63$  cm. Un programme de simulation, directement issu de la théorie précédente nous donne la densité des particules collectées en fonction de la distance de déposition de la particule sur les parois du canal. Pour un diamètre particulaire de 1 nm, on montre que les débits 4,5  $\ell/\text{mn}$  et 10  $\ell/\text{mn}$  donne, respectivement, 50% et 30% des particules déposées sur les premiers 2,5 cm du canal. Les calculs montrent de plus que, dans les deux cas, la quasi-totalité des particules seront collectées sur la longueur totale du canal. (respectivement 100% et 96%). En conclusion, afin d'éviter une accumulation trop importante des particules sur les premiers centimètres du canal, nous préférons utiliser un débit de 10  $\ell/\text{mn}$  garantissant une limite de 30% des particules déposées sur les premiers 2,5 cm.

Nous avons tout d'abord étudié les performances du dispositif en laboratoire dans une atmosphère confinée et filtrée de manière à étalonner la courbe de réponse de l'appareil. Les expériences déjà menées par d'autres chercheurs montrent que le diamètre moyen des particules de Po-218 libre se situe aux alentours de 0,7 nm, c'est à dire inférieur aux conditions de l'air ambiant. Si nous voulons respecter la limite de 30% de particules déposées sur les premiers 2,5 cm, il nous faut utiliser, dans ce cas, un débit de prélèvement minimal de 18  $\ell/\text{mn}$ . (plus de 95% des particules sont alors collectées au total sur les parois du canal).

Le problème d'une collection efficace de la fraction libre, que ce soit en laboratoire ou sur le terrain étant résolu, il nous reste à mettre au point le moyen de détecter la désintégration des atomes de Polonium-218 et de conserver cette information de manière à obtenir la mesure intégrée du Po-218 sous forme libre (ou tout autre dérivé à vie courte du Radon d'ailleurs). Pour y parvenir, nous avons utilisé un détecteur de traces  $\alpha$  du type LR-115 fabriqué par la firme Kodak.

#### V- Utilisation d'un détecteur de traces pour une mesure intégrée de l'activité $\alpha$ du Po-218 libre

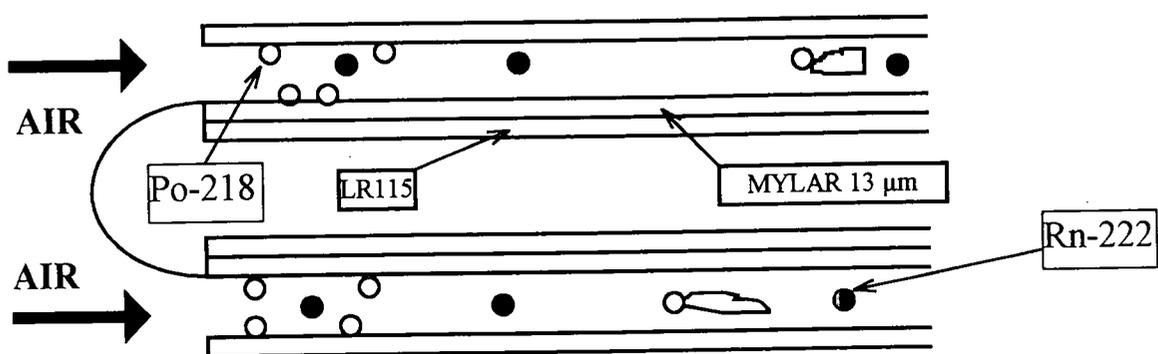
Le film LR115, composé d'un support en polycarbonate d'épaisseur 100  $\mu\text{m}$  et recouvert d'une pellicule de nitrate de cellulose de 11 à 12  $\mu\text{m}$ , est déjà utilisé dans le dosimètre passif Kodalpha, et le dosimètre actif C.E.A. Le principe de détection est le suivant : une particule  $\alpha$ , émise lors de la désintégration d'une particule radioactive, perd linéairement de l'énergie en fonction de la distance parcourue dans le nitrate de cellulose. L'énergie libérée au cours du ralentissement provoque des modifications à l'échelle moléculaire qui vont se traduire par la formation d'une trace latente. La révélation de cette dernière s'effectue à l'aide d'un agent actif qui ronge la surface du film. La diminution de l'épaisseur résiduelle qui s'ensuit, a pour effet d'augmenter le diamètre de la trace jusqu'à la rendre visible et donc mesurable. Ici nous utilisons de la soude (NAOH) à 10%, portée à une température de 60°, le temps de développement étant de 140 minutes.

La plage énergétique de détection du film LR115 dépend des conditions de développement. Dans les conditions de développement mentionnées plus haut, on montre alors que les particules  $\alpha$  sont détectables, sous incidence normale entre 1,5 et 4,3 Mev. L'étude du mécanisme de perte d'énergie permet de connaître la plage énergétique de détection du film suivant l'angle d'incidence de la particule et ainsi déterminer l'efficacité de détection du film. ([Ba93], [KE95b]).

Le  $^{218}\text{Po}$  étant un émetteur  $\alpha$  d'énergie 6 Mev, il ne peut être détecté même sous de forts angles d'incidence. Il faut donc utiliser un écran de ralentissement, constitué par exemple d'une feuille de Mylar, qui permet de choisir, suivant son épaisseur, d'autres plages de détection de limites énergétiques supérieures.

Les calculs montrent qu'une épaisseur de Mylar de 13  $\mu\text{m}$  suffit à placer énergétiquement une particule  $\alpha$  émise par le  $^{218}\text{Po}$  dans la plage optimale de détection du film, les atomes de  $^{214}\text{Po}$  (énergie d'émission 7,68 Mev) n'étant pas détectables. Malheureusement, l'énergie de l'émetteur  $\alpha$  du  $^{222}\text{Rn}$  (5,5 Mev) étant proche de celle du  $^{218}\text{Po}$ , les calculs montrent qu'il est lui aussi détectable et il s'ensuit une contribution parasite due au gaz lui-même. Sur la figure 1 est représenté le dispositif tel que nous l'avons conçu. Le film LR115 est enroulé sur le cylindre interne du canal et recouvert de mylar aluminisé. Le Po-218 non-attaché seul se dépose, tandis que le Po-218 attaché et le Radon-222 peuvent néanmoins se désintégrer lors de leur passage et induire une trace.

Figure 1: coupe schématique du canal annulaire



## VI - Estimation théorique de l'impact du Radon et de ses descendants sur le film LR115

### VI.1- Estimation de la contribution du gaz Radon, du $^{218}\text{Po}$ "non-attaché" et "attaché"

Dans la configuration que nous avons choisie, la particule  $\alpha$  issue d'un atome de Radon peut aisément être émise avec une énergie compatible avec la plage de détection du film et être à l'origine d'un nombre de traces non négligeable. Le programme, mentionné plus haut, nous permet d'estimer avec précision la contribution du Radon.  $C_{\text{Rn}}$  étant la concentration en Radon ( $\text{Bq.m}^{-3}$ ) ambiant, on montre que le nombre de traces  $n_{\text{Rn}}$  due au Radon par unité de surface et de temps est donné par:

$$(8) \quad n_{\text{Rn}} = 1,4 \times 10^{-4} \times C_{\text{Rn}} \quad \text{traces/cm}^2/\text{heure}$$

Soit  $C_{\text{Po libre}}$ , la concentration en  $^{218}\text{Po}$  "non attaché" ( $\text{Bq.m}^{-3}$ ). En admettant que les atomes de Po-218 sont effectivement captés proportionnellement au surface respective des deux parois, on peut montrer qu'à 18  $\ell/\text{mn}$ , la contribution du  $^{218}\text{Po}$  s'élève à :

$$(9) \quad n_{\text{Po libre}} = 0,096 \times C_{\text{Po libre}} \quad \text{traces/cm}^2/\text{heure}$$

et pour 10  $\ell/\text{mn}$

$$(10) \quad n_{\text{Po libre}} = 0,053 \times C_{\text{Po libre}} \quad \text{traces/cm}^2/\text{heure}$$

Le  $^{218}\text{Po}$  "attaché", trop gros pour se déposer par diffusion, a un comportement comparable à celui du gaz Radon-222. En reprenant les calculs précédent, on obtient sa contribution :

$$(11) \quad n_{\text{Po attaché}} = 1,73 \times 10^{-4} \times C_{\text{Po attaché}} \quad \text{traces/cm}^2/\text{heure}$$

### VI.3- Estimation théorique des performances du canal dans des conditions de terrain

Afin d'avoir un ordre d'idée des performances du dispositif, considérons l'exemple concret suivant, supposé être représentatif de conditions domestiques effectivement rencontrées : une concentration en Radon égale à 200  $\text{Bq.m}^{-3}$ , un facteur d'équilibre  $^{222}\text{Rn}/^{218}\text{Po}$  de l'ordre de 0,3 et une proportion de fraction "libre" ne représentant que 20% de la concentration totale en Polonium-218. Dans ce cas, les concentrations des différentes espèces intervenant dans les calculs sont respectivement égales à  $C_{\text{Rn}} = 200 \text{ Bq.m}^{-3}$ ,  $C_{\text{Po libre}} = 12 \text{ Bq.m}^{-3}$ ,  $C_{\text{Po attaché}} = 48 \text{ Bq.m}^{-3}$ . En utilisant les relations (8), (9) et (11), on obtient pour une durée d'exposition de un mois (soit 720 heures), le nombre de traces théorique relatif à chaque composante : ainsi, pour un total de 482 traces/ $\text{cm}^2$ , la contribution du Polonium-218 sous forme "libre" représente près de 95% du total (soit 456 traces/ $\text{cm}^2$ ), celle du Radon-222 s'élève à 4,2% (20 traces/ $\text{cm}^2$ ) et celle du Polonium-218 sous forme "attachée" reste négligeable (6 traces/ $\text{cm}^2$ )

## VII Expérimentation du canal annulaire

Le montage, illustré par la figure 2, est constitué par une enceinte close de 350 litres. Un système d'aspiration permet de faire circuler l'air en circuit fermé. L'apport en gaz Radon se fait à l'aide d'une source d'activité 1mCi de Radium-226. Le canal de diffusion est situé à l'extérieur de la chambre, le long de son armature interne est disposé le film LR115 recouvert d'une épaisseur de Mylar aluminisé de 13  $\mu\text{m}$ , le débit dans le canal étant fixé à 18  $\ell/\text{mn}$ . Pendant le prélèvement, des orifices d'accès permettent d'effectuer des mesures de la concentration en  $^{222}\text{Rn}$  (méthodes de la chambre de désintégration [TH70]), et la concentration en Po-218 attaché ou non-attaché (prélèvements sur grilles et filtres [HO90]), leur prélèvement se faisant à la même distance de la chambre que le prélèvement par le canal.

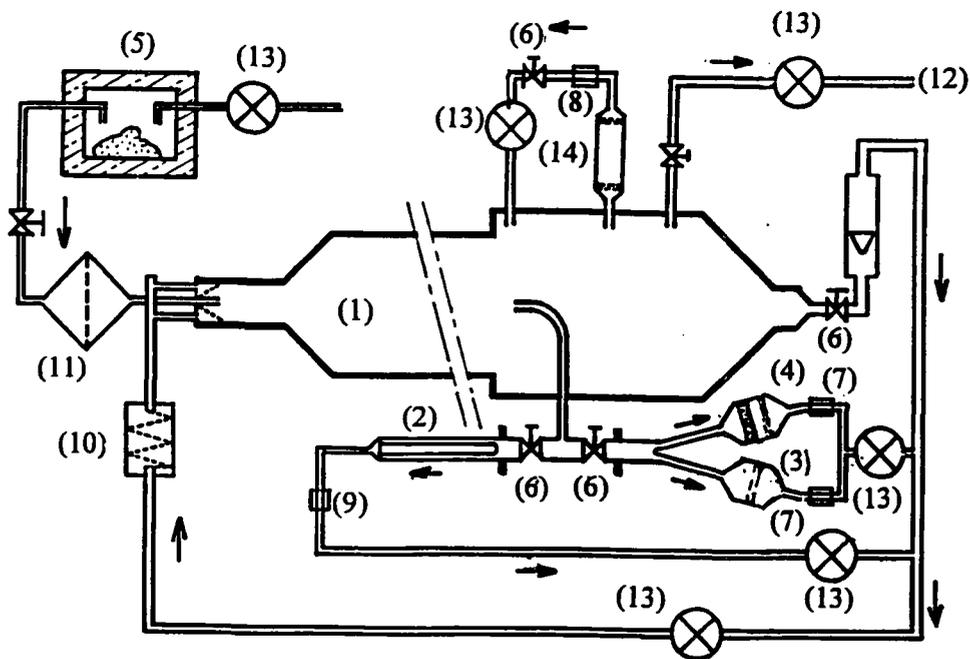


Figure 2 : (1) Enceinte, (2) Canal annulaire, (3) Filtre, (4) Grille et filtre, (5) Source Radium, (6) Vannes, (7) Orifice critique 7  $\ell/\text{mn}$ , (8) Orifice critique 4  $\ell/\text{mn}$ , (9) Orifice critique 18  $\ell/\text{mn}$ , (10) Filtre absolu, (11) Filtre, (12) Circuit d'évacuation, (13) Pompes, (15) Chambre double filtre

Après développement, les films LR115 sont lus à l'aide d'un compteur à étincelage [TH79], appareil basé sur les propriétés disruptives du nitrate de cellulose. Le film est utilisé comme diélectrique d'un condensateur, une haute tension appliquée entre les armatures produit une décharge disruptive à travers chaque trou, sous forme d'une étincelle. On compte ensuite le nombre d'étincelles à l'aide d'une carte de comptage reliée à un PC.

Nous avons dans un premier temps mesuré l'impact réel du radon en disposant à l'entrée du canal un filtre absolu de manière à n'observer que les traces dues au gaz Radon et au Po-218 apparus dans le canal après sa désintégration. Les résultats montrent que la densité de traces observées est en bon accord avec ce que prévoit la théorie [KE93].

Dans un deuxième temps, nous avons expérimenté le canal en laboratoire. Afin de pouvoir séparer les contributions du Polonium-218 libre ou attaché, nous utilisons un filtre absolu dans le circuit de manière à ne prélever que du Po-218 sous forme non-attachée. La figure (3) montre les premiers résultats obtenus par rapport à la courbe théorique donnée par l'équation (10)

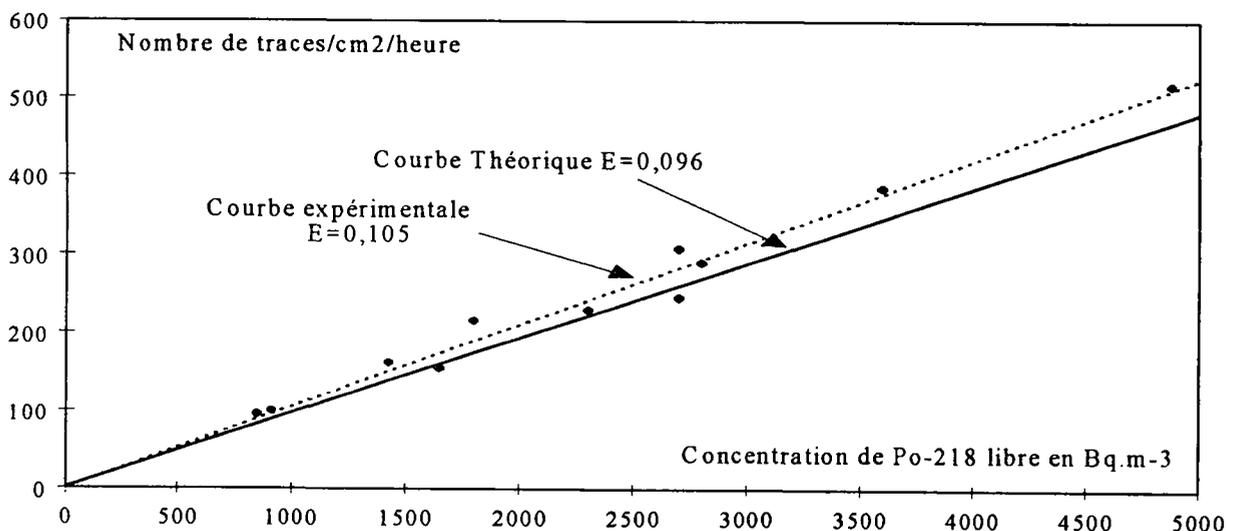


Figure 3: réponse du canal annulaire

On constate que les résultats expérimentaux sont en bon accord avec l'estimation théorique, bien que cette dernière soit près de 10% inférieure. Nous pensons que ce résultat pourrait s'expliquer par l'incapacité du compteur à étincelage à discerner un trou d'une trace presque entièrement développée, ce qui tendrait à surestimer le nombre de trous effectivement produits.

Un autre aspect intéressant du dispositif, outre l'intégration des résultats sur de longues périodes, est la possibilité de restituer la granulométrie de la fraction non-attachée du Po-218. En effet, la densité de traces le long du canal étant fonction du diamètre moyen des particules captées, nous pouvons alors utiliser un programme numérique d'inversion des données du type E.V.E [PA89], pour lequel nous avons construit la matrice noyau caractéristique des performances du conduit annulaire [DR95]. Les résultats montrent un diamètre moyen d'activité situé entre 0,65 nm et 0,8 nm pour une moyenne de 0,75 nm, ce qui est comparable aux résultats obtenus par Reineking et col. [RE93] et Ramamurthi [RA93]. La figure 4 montre un exemple de ce que le programme E.V.E nous a permis d'obtenir:

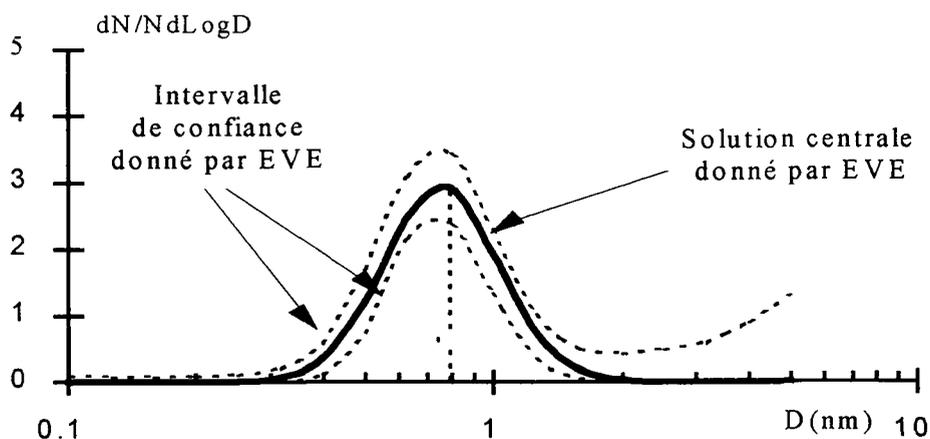


Figure 4: Spectre dimensionnel moyen du Po-218 libre

### VIII Conclusion

Le canal annulaire de diffusion couplé à un détecteur de trace  $\alpha$  du type LR115 a permis de fournir des résultats prometteurs quant à la collection et la détection de la fraction libre du Radon-222. Les résultats doivent néanmoins être confirmés dans d'autres types d'atmosphères, notamment dans l'atmosphère intérieure des habitations. De plus, il nous paraît possible d'obtenir le même type d'informations sur le Po-214, l'autre émetteur  $\alpha$  des descendants à vie courte du Radon-222, en utilisant une épaisseur de Mylar de 36  $\mu\text{m}$  au lieu des 13  $\mu\text{m}$  utilisés pour le Po-218.

### Bibliographie

- [BU80] BUSIGIN A., VOOREN A.V., VAN DER PHILLIPS C.R. (1980), *J. Aerosol Sci.*, Vol.11, pp 359.
- [BA94] BARILLON, R. "Contribution à la détection de particules alpha par détecteurs solides de traces nucléaires- application à la mesure du Radon", Thèse de doctorat, Université de Franche-Comté
- [DR95] DROAI, C. "Techniques de prélèvements et d'analyses de spectres dimensionnels-Applications au milieu de l'élevage porcin", Thèse de doctorat, Université de Bretagne Occidentale, juillet 1995
- [HO90] HOPKE P.K. (1990), Technical Report Serie U.S, Departement of energy, January 1990.
- [Ingham 1975] INGHAM D.B, *J. Aerosol Science*, Vol. 6, n°6, pp 393-402.
- [JA88] JAMES A.C (1988), chap.7, Radon and its decay products in indoor air, Edited by NAZAROFF W.W et NERO A.V.Jr, Wiley interscience publications, JOHN WILEY & SONS, Inc.
- [KE93] KEROUANTON, D., TYMEN, G, BOULAUD D. (1993) COFERA 93.
- [KE95a] KEROUANTON, D., TYMEN, G, BOULAUD D. (1995a) à paraître dans *J. Aerosol Science*
- [KE95b] KEROUANTON, D., TYMEN, G, BOULAUD D. (1995b) à paraître
- [NA88] Radon and its decay products in indoor air (1988), Edited by NAZAROFF et NERO., Wiley interscience publications, JOHN WILEY & SONS, Inc.
- [PA89] PAATERO, P., RAUMEMAA, T. (1989), *Aerosol Science Technology*, pp.365-369
- [PR89] PRATSINIS S.E, Xu M., BISWAS P., WILLEKE K.(1989), *J.Aerosol Sci.*, Vol.20, pp.1597-1600.
- [RA89] RAMAMURTHI M (1989), Thesis, University of Illinois.
- [RA93] RAMAMURTHI M, STRYDOM, R. HOPKE, P.K, J. HOLUB, R.F (1993) *J. Aerosol Science*, pp.393-397
- [RE90] REINEKING A, PORSTENDORFER J (1990), *Health physics*, Vol.58, n°6, pp.715-727.
- [RE93] REINEKING et al. (1993) First international workshop on indoor radon remedial action, Rimini, Italy, June 27-July 3
- [TY91] TYMEN, G., ROBE, M.C., RANNOU, A. (1991), "Radiation protection dosimetry Fifth international symposium on the Natural Radiation Environment, Nuclear Technology Publishing.
- [TH70] THOMAS J.W, LeCLARE P.C (1970), *Health Physics*, Vol.18, PP.113-122.
- [TH79] LE THANH, P., et NICKPAY, P. (1979), 10ième conférence internationale sur : "Solid State Nuclear track detector", Lyon, 2-6 juillet 1979 (François H., ed.). OXFORD, Pergamon Press, pp. 337-361
- [UN82] "Ionizing Radiations : sources and biological effects" United Nations Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR 1982 REPORT.

## EFFICACITE DES FILTRES A FIBRES A BASSE PRESSION COMPARAISON THEORIE EXPERIENCE

**M. B. ATTOUI**

Laboratoire de Physique des Aérosols et Transfert des Contaminations.  
Université Paris XII- Avenue du Général de Gaulle 94010 CRETEIL.

Mots clés: Aérosol, Pression, Perméance

### INTRODUCTION

Les études de filtration concernent généralement deux paramètres: l'efficacité de collection E et la perte de charge  $\Delta p$  du médium filtrant. Ici nous n'étudions que l'efficacité qui est rappelons le, le rapport du nombre de particules retenues par le filtre à celui des particules ( $N_{am}$ ) qui arrivent en amont, soit:

$$E = \frac{N_{am} - N_{av}}{N_{am}} \quad N_{av} \text{ est le nombre d'aérosols en aval du filtre.}$$

On préfère, en général, parler de perméance (ou coefficient de pénétration) P donnée par

$$P = 1 - E = N_{av} / N_{am}.$$

La perméance d'un filtre dépend d'un certain nombre de ses paramètres géométriques, dont le diamètre des fibres qui le constituent, son coefficient de tassement  $\alpha$ , son épaisseur h et de la vitesse moyenne U du fluide vecteur (appelée vitesse frontale de filtration). Avec:

$$\alpha = \frac{\text{volume des fibres}}{\text{volume total du filtre}} \quad U = \frac{\text{Débit volumique du fluide vecteur}}{\text{Surface filtrante}}$$

A la pression atmosphérique, la perméance est obtenue le plus souvent par la mesure de la concentration particulaire volumique en amont ( $C_{am}$ ) et en aval ( $C_{av}$ ) du filtre placé dans un flux d'air chargé d'aérosols. Le volume v de prélèvement étant le même en amont et en aval, on a:

$$P = \frac{C_{av}}{C_{am}} = \frac{N_{av}/v}{N_{am}/v} = \frac{N_{av}}{N_{am}}$$

La perméance est d'autre part donnée par la relation suivante

$$P = \exp\left[-\frac{4\alpha h \eta}{\pi(1-\alpha)D_f}\right] \text{ avec}$$

$\alpha$  coefficient de compactage (fraction solide),  
h épaisseur du filtre,  
 $\eta$  efficacité unitaire d'une fibre,  
 $D_f$  diamètre d'une fibre.

Le diamètre de la fibre  $D_f$  peut être calculé à partir de la relation de Davies (1952):

$$D_f = 8 \left[ \frac{3}{2} \frac{U}{\Delta p} \right]^{1/2}$$

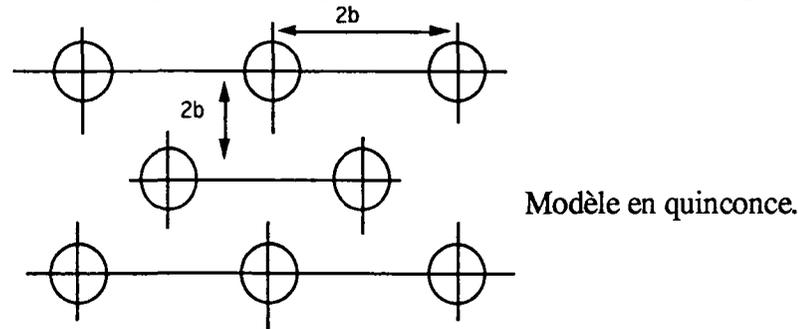
$\alpha$  le coefficient de compactage, est donné par la relation:

$$\alpha = \frac{V_f}{V_F} = \frac{m_F}{\rho_f h} \quad m_F \text{ est la masse du filtre; } \nu \text{ est la viscosité cinématique du fluide considéré.}$$

$\alpha$ ,  $h$  et  $D_f$  sont des grandeurs accessibles à la mesure. Ce qui n'est pas le cas de  $\eta$  l'efficacité unitaire de chacune des fibres constituant le filtre. L'expression de  $\eta$  est obtenue en tenant compte du champ d'écoulement autour d'une fibre, de la forme et de la disposition de la fibre par rapport au fluide vecteur.

Les fibres, dans la plupart des modèles théoriques, sont approximées par des cylindres (de section circulaire) disposés dans l'espace perpendiculairement au flux du gaz vecteur.

Notre étude expérimentale avait porté (ATTOUI 94) sur des aérosols de tailles comprises entre 0,04 et 3  $\mu\text{m}$ , correspondant au minimum d'efficacité; avec des filtres dont les diamètres de fibres sont de l'ordre du libre parcours moyen du gaz vecteur. Dans ces conditions le modèle de filtre qui donne les meilleurs résultats est celui donné par une structure triangulaire (arrangement en quinconce) représentée par la figure ci dessous.



### Efficacité unitaire d'une fibre

#### Modèle de Lee et Liu (1982)

Lee et Liu (1982) proposent, dans la région du maximum de perméance, l'expression suivante:

$$\eta = 1,6 \left[ \frac{1-\alpha}{Ku} \right]^{1/3} Pe^{-2/3} + 0,6 \left[ \frac{1-\alpha}{Ku} \right] \frac{R^2}{1+R} = \eta_D + \eta_R$$

$\eta_D$  et  $\eta_R$  étant l'efficacité de diffusion et d'interception

Ku est le facteur hydrodynamique de Kuwabara:  $Ku = -0,75 - 0,5 \ln \alpha + \alpha - 0,25\alpha^2$

#### Modèle de Liu et Rubow (1990)

Liu et Rubow corrigent "l'effet de glissement" en introduisant, nous l'avons vu, des coefficients de correction dans les efficacité théoriques partielles de diffusion et d'interception données par le modèle de Lee et Liu. Ce qui donne:

$$\eta = 1,6 \left[ \frac{1-\alpha}{Ku} \right]^{1/3} Pe^{-2/3} C_d + 0,6 \left[ \frac{1-\alpha}{Ku} \right] \frac{R^2}{1+R} C_r$$

\*  $C_d = 1 + 0,388 Kn_f \left[ \frac{1-\alpha}{Ku} Pe \right]^{1/2}$  est le terme de correction dans le domaine de diffusion,

\*  $C_r = 1 + \frac{1,996}{R} Kn_f$  est le terme de correction dans le domaine d'interception.

$$Pe' = Pe C_d^{3/2} \frac{R'^2}{1+R'} = \frac{R^2}{1+R} C_r$$

### Modèle de S. Payet (1992)

En comparant la théorie et l'expérience autour du maximum de perméance, S. Payet (1992) remarque un écart systématique dans le domaine diffusionnel entre ses résultats expérimentaux et le modèle de Liu et Rubow, bien que les valeurs données par ce modèle soient très satisfaisantes dans le domaine d'interception (au delà de  $0,2 \mu\text{m}$ ). Elle remarque en plus que, dans le modèle de Liu et Rubow, l'efficacité partielle de diffusion peut dépasser l'unité pour les fines particules. Elle propose alors, un coefficient de correction qui empêche  $\eta_D$  de dépasser l'unité.

$$\text{De ce fait, dans son modèle } \eta_D \text{ s'écrit: } \eta_D = 1,6 \left[ \frac{1-\alpha}{Ku} \right]^{1/3} Pe'^{-2/3} Cd'$$

$Cd'$ , le coefficient de correction est donné par:

$$Cd' = \frac{1}{1 + 1,6 \left[ \frac{1-\alpha}{Ku} \right]^{1/3} Pe'^{-2/3}}$$

Cela entraîne l'apparition d'un nouveau nombre de Peclet modifié:

$$Pe'' = Pe' Cd'^{-3/2} \quad Pe'' = Pe (Cd Cd')^{-3/2}$$

### **Evolution des mécanismes de filtration avec la pression**

Dans le modèle de S. Payet l'efficacité unitaire d'une fibre est donnée par la somme des efficacités partielles de diffusion et d'interception. Nous allons donc regarder comment évoluent ces deux efficacités en fonction de la pression, avant de les remplacer dans le modèle de Payet par leurs nouvelles expressions.

#### Mécanisme de diffusion dans le modèle de Liu et Rubow

Le nombre de Péclet qui caractérise le dépôt par diffusion diminue quand la pression diminue. Or  $\eta_D$  est une fonction en  $Pe^{-2/3}$ . De plus, le coefficient de correction  $Cd$  est lié au nombre de Knudsen de la fibre  $Kn_f$  qui augmente quand la pression diminue. Donc  $\eta_D$  va augmenter lorsque la pression diminuera.

#### Mécanisme d'interception dans le modèle de Liu et Rubow

Nous avons vu que  $\eta_R$  est donnée par:

$$\eta_R = 0,6 \left[ \frac{1-\alpha}{R} \right] \frac{R^2}{1+R} Cr \quad \text{avec} \quad Cr = 1 + \frac{1,996}{R} Kn_f$$

$Kn_f$  augmentant quand la pression diminue, il en sera de même pour  $\eta_R$ .

#### Mécanisme de diffusion dans le modèle de S. Payet

S. Payet introduit, nous l'avons vu, un coefficient limitant  $\eta_D$  à 1,  $Cd'$ . Regardons comment varie ce coefficient avec la pression.

$$Cd' = \frac{1}{1 + 1,6 \left[ \frac{1-\alpha}{Ku} \right]^{1/3} Pe'^{-2/3}} ; Pe' = Pe Cd'^{-2/3}$$

Cd augmente quand la pression diminue,  $Cd^{-2/3}$  va donc diminuer. De plus, Pe diminue quand la pression diminue, donc Pe' va diminuer,  $Pe^{-2/3}$  augmente ce qui fera diminuer Cd'. Donc la variation de  $\eta_D$  est limitée par la diminution de Cd' alors que Pe' augmente.

Rappelons que le dépôt par interception est décrit par la même expression, que ce soit dans le modèle de Liu et Rubow ou dans celui de S. Payet.

### Expression du modèle de S. Payet aux basses pressions

Il nous est maintenant possible, à partir du modèle de S. Payet et de notre étude de l'influence de la pression sur différents paramètres, d'écrire l'expression de l'efficacité unitaire d'une fibre faisant apparaître les corrections dues à la variation de la pression.

Modèle de S. Payet corrigé en pression:

$$\eta_{dc} = 1,6 \left[ \frac{1-\alpha}{Ku} \right]^{1/3} Pe'_c^{-2/3} Cd'_c$$

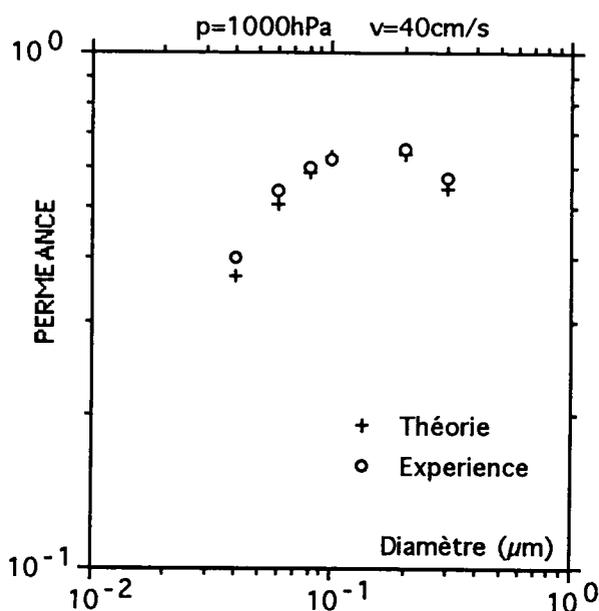
$$\eta_c = \eta_{dc} + \eta_R$$

Le tableau ci-dessous récapitule les expressions des différents paramètres dans lesquelles intervient la pression, ainsi que les expressions qui font apparaître la pression.

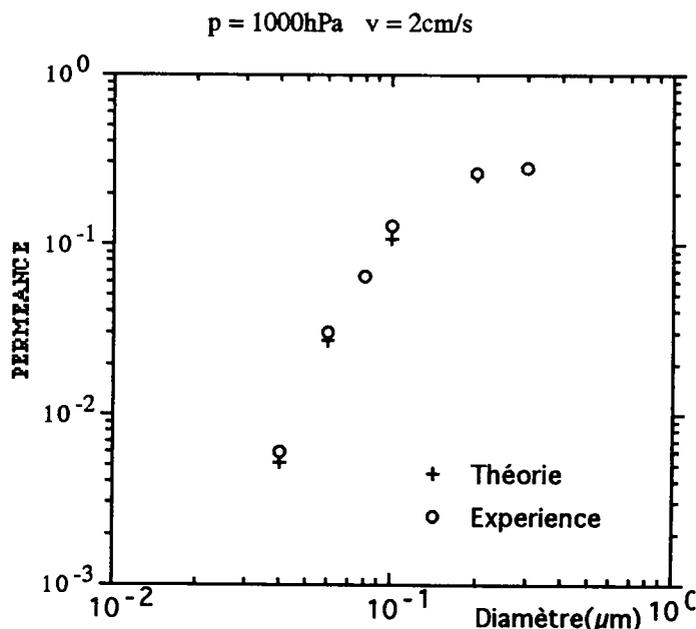
Paramètres	Paramètres corrigés (c)
$Kn_p = \frac{2\lambda_0}{D_p}$	$Kn_{pc} = \frac{2\lambda_0}{D_p} \frac{p_0}{p} = \frac{p_0}{p} Kn_p$
$Kn_f = \frac{2\lambda_0}{D_f}$	$Kn_{fc} = \frac{2\lambda_0}{D_f} \frac{p_0}{p} = \frac{p_0}{p} Kn_f$
Cu	$Cu_c = 1 + Kn_{pc} \left[ 1,246 + 0,42 \exp(-0,87/Kn_{pc}) \right]$
Pe	$Pe_c = \frac{3D_f D_p U_0 \pi \mu}{k_B T Cu_c}$
Cd	$Cd_c = 1 + 0,388 Kn_{fc} \left[ \frac{(1-\alpha) Pe_c}{Ku} \right]^{1/3}$
Cr	$Cr_c = 1 + \frac{1,996}{R} Kn_{fc}$
Cd'	$Cd'_c = \frac{1}{1 + 1,6 \left[ \frac{1-\alpha}{Ku} \right]^{1/3} Pe_c^{-2/3}}$
Pe'	$Pe'_c = Pe_c Cd_c^{-2/3}$

$$\eta_c = 1,6 \left[ \frac{1 - \alpha}{Ku} \right]^{1/3} Pe'_c^{-2/3} Cd'_c + 0,6 \left[ \frac{1 - \alpha}{Ku} \right] \frac{R^2}{1 + R} Cr$$

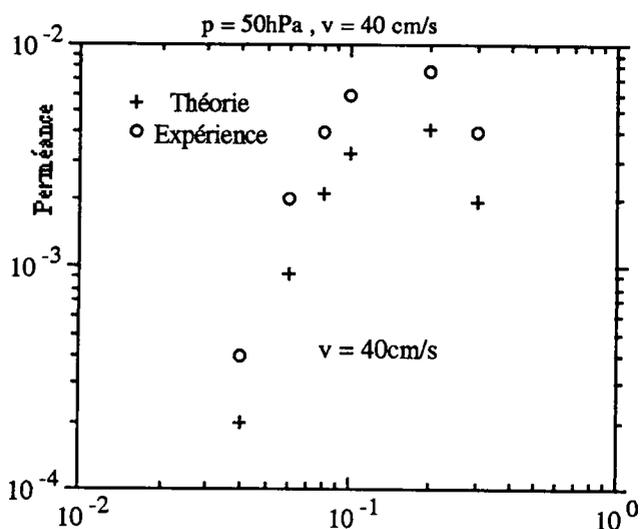
C'est avec les résultats donnés par ce modèle que nous comparons nos résultats expérimentaux. Les courbes 1 et 2 représentent la perméance en fonction de la pression pour deux vitesses (40 et 2 cm/s) à la pression atmosphérique. Les variations de la perméance spectrale en fonction pour des pressions basses sont données sur les courbes 3 à 6.



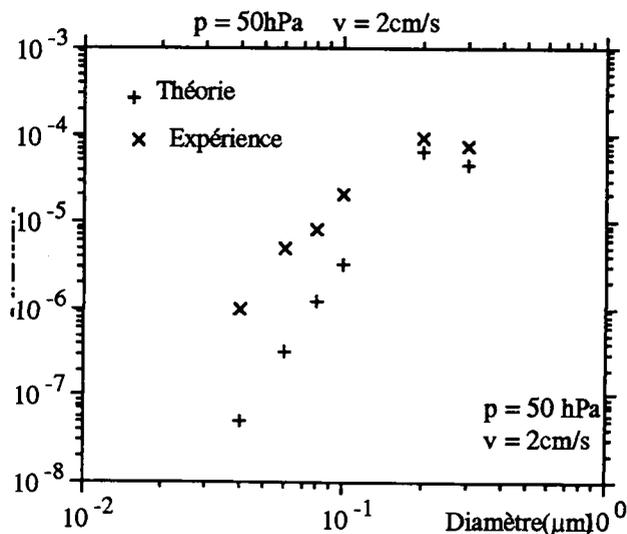
Courbe -1-  
Perméance spectrale à la pression atmosphérique  
pour  $v = 40 \text{ cm/s}$



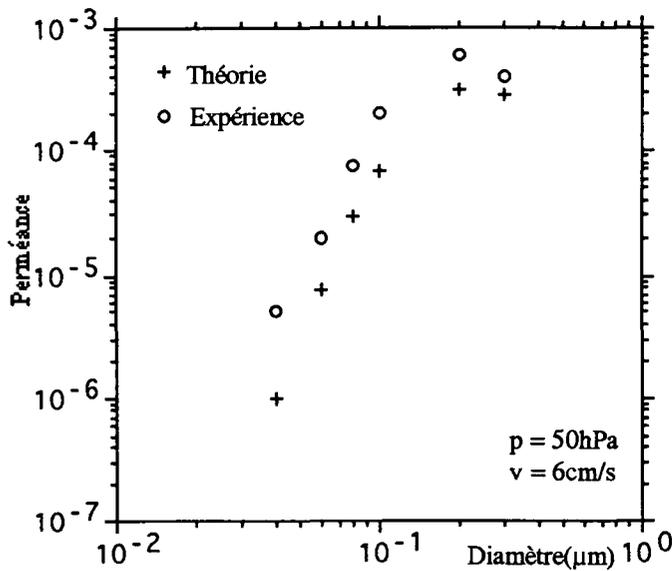
Courbe -2-  
Perméance spectrale à la pression atmosphérique  
pour  $v = 2 \text{ cm/s}$



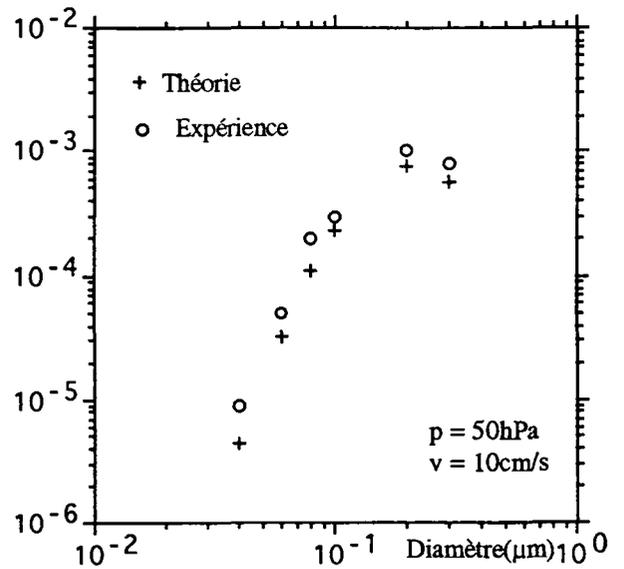
Courbe -3-  
Perméance spectrale à 50hPa pour  $v = 40 \text{ cm/s}$



Courbe -4-  
Perméance spectrale à 50hPa pour  $v = 2 \text{ cm/s}$



Courbe -5-  
Perméance spectrale à 50hPa pour v = 40 cm/s



Courbe -6-  
Perméance spectrale à 50hPa pour v = 2 cm/s

### Conclusion:

Nous pouvons constater un accord satisfaisant théorie - expérience sauf dans le domaine diffusional (faibles diamètres) où nous remarquons un écart. Cet écart se creuse quand les vitesses sont faibles (courbe - 4-). En effet le phénomène de diffusion augmentant avec la diminution de la vitesse est amplifié aux basses pressions.

### **Bibliographie:**

ATTOUI. M.B.(1994).

Thèse en science des aérosols, Université Paris XII, FRANCE. Rapport CEA - R .5690.

LEE K. W., LIU B. Y. H. (1982)

Theoretical Study of Aerosol Filtration by Fibrous Filters. Aerosol Sci. Technol., 1, 147-161.

LIU B. Y. H., RUBOW K. L. (1990)

Efficiency, Pressure Drop and Figure of Merit of High Efficiency Fibrous and Membrane Filter Media In 5th World Filtration Congress, Nice, 5-8 juin 1990.  
Société Française de Filtration, Paris, Vol. 3, 112-119.

PAYET S. (1991)

Filtration Stationnaire et Dynamique des Aérosols Liquides Submicroniques. Thèse en Physique des Aérosols de l'Université Paris XII, Rapport CEA-R-5589.

\*\*\*

**CONFINEMENT DYNAMIQUE PAR "RIDEAU D'AIR"  
APPLIQUE A L'INDUSTRIE AGROALIMENTAIRE**

**J.C. LABORDE\*, V.M. MOCHO\*, M. POURPRIX\*, A. RENOUX\*\***

\* Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire  
Département de Protection de l'Environnement et des Installations  
IPSN/CEA, 91191 GIF-SUR-YVETTE Cédex, FRANCE

\*\* Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transferts des Contaminations  
Université PARIS XII, Faculté des Sciences de Créteil  
Avenue du Général de Gaulle, 94010 CRETEIL Cédex, FRANCE

Résumé

De nombreuses industries, telle que l'industrie agro-alimentaire, nécessitent l'utilisation de techniques de protection rapprochée afin de protéger le produit contre différentes sources de contaminations externes. Les techniques proposées ne doivent pas perturber la fabrication du produit et doivent garantir un haut niveau d'efficacité pour diverses conditions opératoires.

La technique de confinement retenue est basée sur le principe du rideau d'air à double jet plan. La communication proposée présente les principes de cette technique et illustre ses performances, mises en évidence à partir d'expériences réalisées sur une maquette de laboratoire à partir d'une source de pollution atmosphérique. Les résultats obtenus à partir d'aérosols submicroniques montrent l'évolution de l'efficacité du confinement du rideau d'air en fonction de divers paramètres de fonctionnement (débit des jets d'air, angle d'orientation de ceux-ci, etc...). Ces résultats montrent également entre autre l'influence d'effractions au travers de la barrière dynamique (intrusions résultant du passage d'objets cylindriques à des fréquences d'effractions de 0 à 4 Hz). Des simulations 2D (sans effractions) effectuées à l'aide d'un code de calcul de mécanique des fluides (TRIO-EF) permettent de visualiser les mouvements des flux d'air, la longueur du dard de couplage jet rapide-jet lent et de retrouver l'ordre de grandeur de l'efficacité du confinement des principales configurations, mesurée expérimentalement.

Cette étude est réalisée en collaboration avec l'association UNIR (Ultra propre Nutrition Industrie Recherche) dans le cadre d'un contrat avec le CEA.

Abstract

Many industries, such as the food-processing industry, necessitate the use of close protection techniques to protect the product against various sources of external contamination. The techniques proposed must not disrupt the manufacture of the product and must guarantee a high level of efficiency for various operating conditions.

One of the techniques of dynamic confinement retained is based on the principle of the double plane jet air curtain. This paper presents the principles of this technique and illustrates its performances, as revealed by experiments carried out on a laboratory model using an atmospheric pollution source. The results obtained from submicronic aerosols demonstrate the change in the efficiency of confinement of the air curtain as a function of various operating parameters (jets flow rate, angle of the latter etc.). These results also show the influence of intrusions through the dynamic barrier (intrusions resulting from cylindrical objects passing through at intrusion frequencies of 0 to 4 Hz).

2 D Simulations (without intrusions) produced using a fluid mechanics computation code (TRIO-EF) enable the air flow movements, the length of the fast jet-slow jet coupling core to be displayed and the order of magnitude of the experimental confinement efficiency to be recovered. This study is carried out in collaboration with the UNIR association (Ultra clean Nutrition Industry Research) within the framework of a contract with the CEA.

## liste des symboles

$b_0$	: demi-épaisseur de la buse des jets
$c$	: concentration en polluant
$C_\mu$	: constante du modèle k- $\epsilon$
$C_{ext}$	: concentration en polluant dans le local
$C_0$	: concentration en polluant de l'air d'alimentation des jets
$D_t$	: coefficient de diffusion turbulente
$Eff$	: efficacité totale de confinement
$Eff_i$	: efficacité ponctuelle de confinement
$k$	: énergie cinétique turbulente du modèle k- $\epsilon$
$L_d$	: longueur du dard du jet
$n$	: nombre total de points de mesure à l'intérieur de l'enceinte
$Q_{JL}$	: débit de soufflage du jet lent
$Q_{JR}$	: débit de soufflage du jet rapide
$Q_{VI}$	: débit de soufflage de la ventilation interne
$Q_{JL0}$	: débit de soufflage de référence du jet lent
$Q_{JR0}$	: débit de soufflage de référence du jet rapide
$Q_{V10}$	: débit de soufflage de référence de la ventilation interne
$u$	: vitesse selon l'axe ox
$U(x)$	: vitesse le long de l'axe du jet plan
$U_0$	: vitesse dans la buse d'alimentation du jet
$v$	: vitesse selon l'axe oy
$w$	: vitesse selon l'axe oz
$x$	: distance le long de l'axe du jet
$\alpha$	: angle d'orientation des jets
$\epsilon$	: taux de dissipation de l'énergie turbulente du modèle k- $\epsilon$

### 1.- Principe du confinement par rideau d'air à double jet plan

Le principe du confinement dynamique par un rideau d'air, constitué d'un double jet plan, résulte d'une application des propriétés des jets plans turbulents.

De nombreux auteurs [1], [2], [3], [4] ont montré qu'un jet turbulent libre est constitué de deux zones distinctes : la zone de transition ou coeur constituée du dard du jet et celle de développement (figure 1).

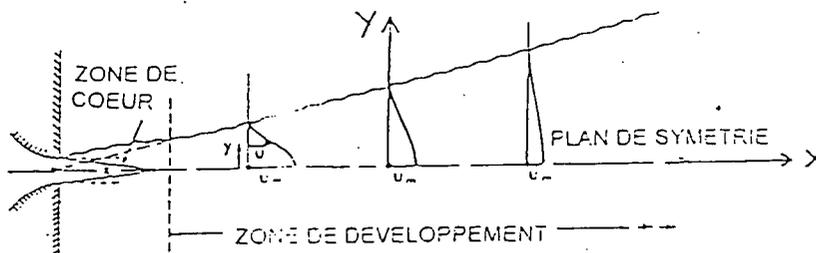


Figure 1 : Jet plan turbulent libre

L'étendue de la zone de transition,  $0 < x < L_d$ , est donnée par la longueur  $L_d$  du dard du jet plan. Celui-ci délimite une zone trapézoïdale dont la base est appuyée sur la buse du jet et où la vitesse est constante. La longueur du dard est en moyenne égale à 6 fois l'épaisseur de la buse de soufflage. Dans cette zone, il n'y a pas de mélange entre l'air issu du jet et l'air environnant ; l'air du dard est donc propre à condition qu'il soit filtré en amont de la buse de soufflage.

La limite de la zone de développement est égale à la portée du jet, soit la distance à partir de laquelle la vitesse du jet est du même ordre de grandeur que la vitesse moyenne des turbulences de l'air hors de la zone d'influence du jet. Dans cette zone, est produit un effet d'induction de l'air environnant par l'air principal du jet donc un mélange entre ces deux milieux.

A partir de la théorie des jets plans est venue l'idée [5] de séparer deux espaces distincts (l'un contaminé et l'autre propre) au moyen du dard d'un jet plan dit "jet lent" couvrant toute la hauteur de l'ouverture séparant ces deux espaces. Un second jet plan dit "jet rapide" est adjoint au premier, du côté de l'espace propre, de manière à stabiliser celui-ci lors de perturbations au travers du rideau d'air ainsi constitué (figure 2). Dans la configuration nominale, le débit du jet rapide est réglé de manière à induire au niveau de l'ouverture, sur sa face en contact avec le dard du jet lent, un débit égal à celui d'alimentation de ce dernier. Ce principe est appliqué au confinement d'un poste de travail [6] [7] représenté par une maquette de laboratoire (figure 3) qui va servir à approfondir les connaissances sur la technique du rideau d'air. Cette technique nécessite également une ventilation à l'intérieur du poste de travail ainsi qu'une extraction d'air.

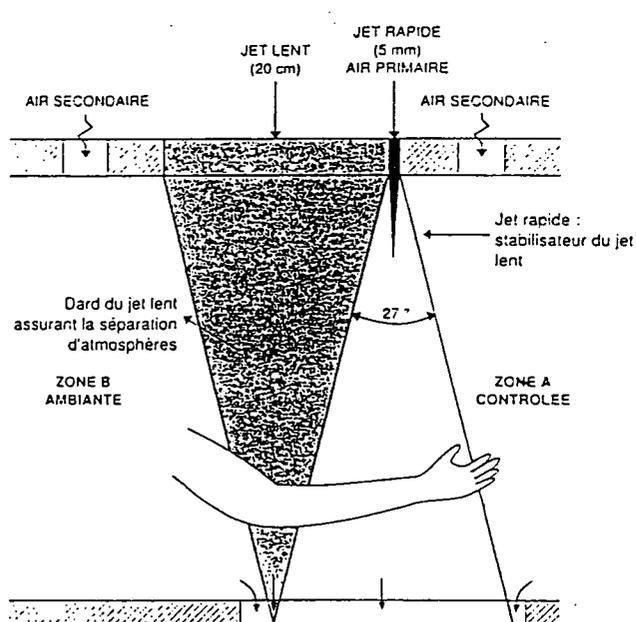


Figure 2 : Principe du double jet plan

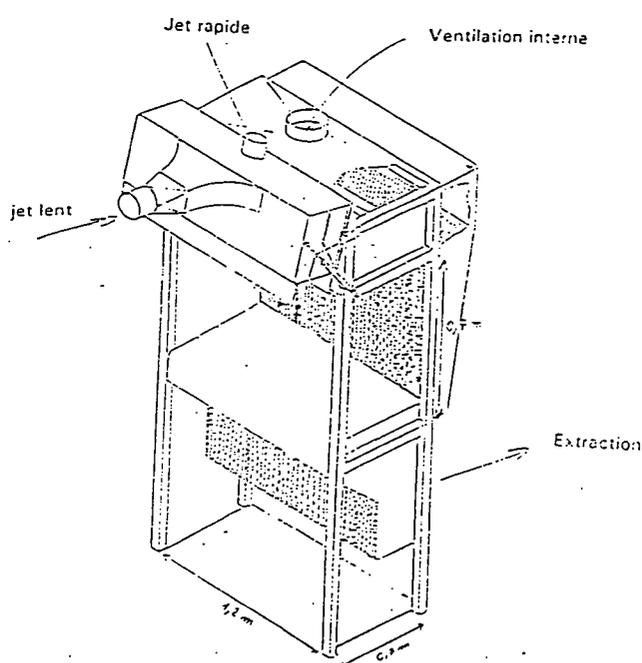


Figure 3 : Application au confinement d'un poste de travail

## 2.- Efficacité du confinement

Pour évaluer l'efficacité du confinement de la maquette du rideau d'air à double jet plan (Eff), deux approches ont été mises en oeuvre, l'une expérimentale et l'autre numérique.

$$\text{Eff} = \frac{\text{Concentration dans l'espace pollué}}{\text{Concentration dans l'espace confiné}}$$

L'efficacité de confinement du système vis-à-vis de particules dépend de plusieurs mécanismes :

$$\text{Eff} = f(\text{diffusion moléculaire, diffusion turbulente, inertie, thermophorèse, convection})$$

Dans l'application proposée, la granulométrie des particules étudiées est submicronique et les écarts de température sont inférieurs à 100°C ; de plus, le système de confinement est basé sur l'utilisation de jets turbulents. Dans ces conditions, les phénomènes prédominants sont le transport par convection et diffusion turbulente, soit :

$$\text{Eff} = f(\text{diffusion turbulente, convection})$$

On obtient donc pour un polluant l'équation bilan suivante :

$$\underbrace{\frac{\partial c}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (uc) + \frac{\partial}{\partial y} (vc) + \frac{\partial}{\partial z} (wc)}_A = D_t \underbrace{\left( \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \right)}_B$$

Le terme A représente le transport du polluant par convection, u, v, w étant les composantes moyennes de la vitesse du fluide porteur et c la valeur moyenne de la concentration en polluant. Le terme B représente le transport par la diffusion turbulente,  $D_t$  étant appelé coefficient de diffusion turbulente.

### 2.1. Approche expérimentale

Afin de caractériser expérimentalement l'efficacité de confinement, on utilise la pollution atmosphérique présente dans le local. L'efficacité du confinement est calculée vis-à-vis des aérosols atmosphériques de diamètre compris entre 0,1 et 0,2  $\mu\text{m}$ .

Les mesures d'empoussièrement dans la zone confinée sont effectuées au moyen d'un Compteur de Particules. Cet appareil, basé sur la diffusion de la lumière par les particules, permet d'obtenir une distribution granulométrique et la concentration en aérosol associée, dans la gamme 0,1  $\mu\text{m}$  à 5  $\mu\text{m}$  (jusqu'à  $10^5$  particules/ $\text{ft}^3$ ). Il est particulièrement bien adapté à la mesure des faibles empoussètements.

Dans la zone empoussiérée, les mesures sont effectuées à partir d'un Analyseur de Mobilité Electrique comprenant un Classificateur Electrostatique associé à un Compteur à Noyaux de Condensation. Cet ensemble de mesure permet d'obtenir la distribution granulométrique et la concentration associée en aérosol, dans la gamme 0,01  $\mu\text{m}$  à 1  $\mu\text{m}$  (jusqu'à  $10^9$  particules/ $\text{ft}^3$ ).

## 2.2. Approche numérique

La modélisation en deux dimensions de la maquette de rideau d'air à double jet plan est effectuée à l'aide du code de calcul TRIO-EF. Ce logiciel de mécanique des fluides qui permet de résoudre les équations de Navier-Stokes, utilise le modèle k-ε pour traiter la turbulence des écoulements [8] [9]. Le coefficient de diffusion turbulente ( $D_t$ ) est exprimé en fonction de l'énergie cinétique de fluctuation des vitesses ( $k$ ) et du taux de dissipation associée ( $\epsilon$ ) par la relation :

$$D_t = C_\mu \frac{k^2}{\epsilon}$$

avec  $C_\mu$  : constante

La méthode numérique mise en oeuvre dans TRIO-EF est la méthode aux éléments finis.

## 3.- Efficacité du confinement en l'absence d'effraction

### 3.1. Influence de la ventilation interne et de l'angle d'orientation des jets

Dans un premier temps est étudiée l'influence de l'angle d'orientation des jets ( $\alpha$ ) et du débit de la ventilation interne, à partir des débits des jets lent et rapide d'une configuration dite "Nominale", soit :

- débit du jet rapide : 140 m<sup>3</sup>/h
- débit du jet lent : 420 m<sup>3</sup>/h

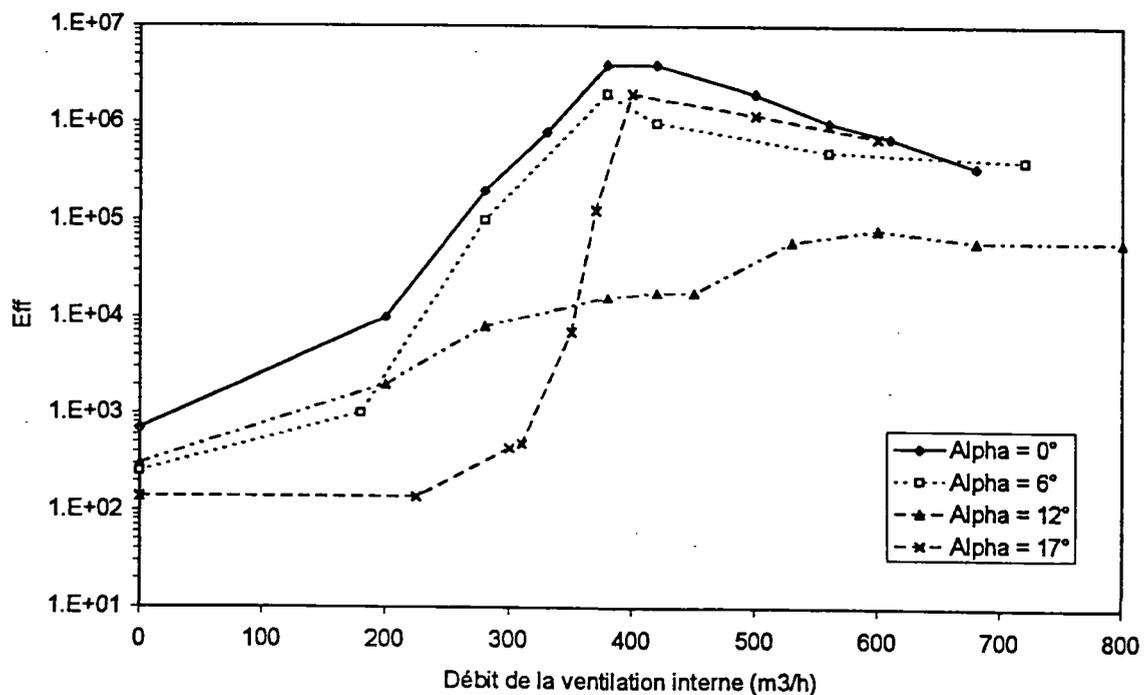


Figure 4 : Efficacité du confinement au centre géométrique de l'enceinte en fonction du débit de la ventilation interne et de l'angle d'orientation des jets

Les résultats obtenus (figure 4) montrent qu'une ventilation interne est indispensable pour obtenir une bonne efficacité du confinement. L'efficacité est optimale lorsque le débit de celle-ci est égal au débit d'induction du jet rapide à l'intérieur de l'enceinte, soit 420 m<sup>3</sup>/h environ dans notre cas.

La valeur expérimentale obtenue est conforme à celle déduite de la relation proposée par Rajaratnam [2] pour calculer le débit induit par un jet plan, à la distance x de celui-ci :

$$Q_{vi} = \frac{1}{2} Q_{jr} \left[ 0,44 \left( \frac{x}{b_0} \right)^{\frac{1}{2}} - 1 \right]$$

La visualisation du champ de vitesse à l'intérieur de l'enceinte (figure 5) permet d'expliquer le rôle important de la ventilation interne. En l'absence de cette dernière, le jet rapide s'autoalimente et provoque l'apparition d'un vortex à l'intérieur de l'enceinte. Celui-ci homogénéise à l'intérieur les polluants ayant franchi le rideau d'air.

De plus, l'efficacité est meilleure lorsque l'angle d'orientation des jets par rapport au plan d'ouverture est faible ou nul. Ceci provient de la déviation de la trajectoire du jet rapide par le plan incliné assurant le confinement statique entre la boîte à buses du rideau et le reste de l'enceinte. En effet, avec une orientation initiale de 12°, le jet rapide souffle directement dans l'enceinte et entraîne avec lui par induction les éventuels polluants extérieurs (figure 6).

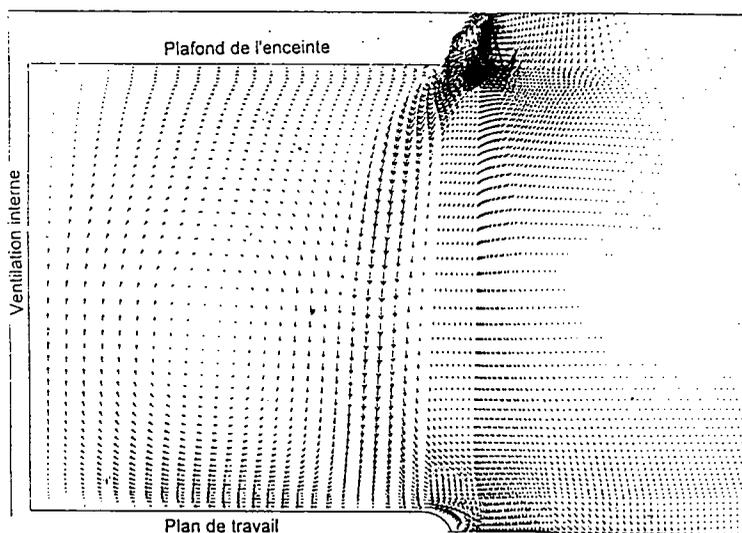


Figure 5 : Champ de vitesse à l'intérieur de l'enceinte

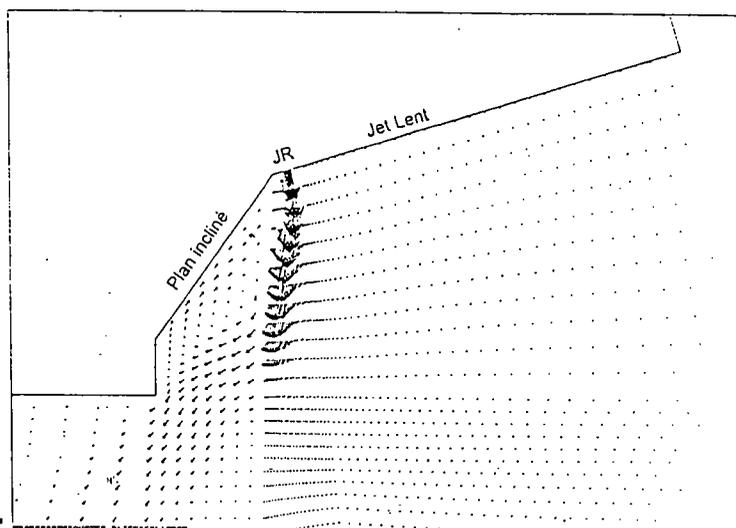


Figure 6 : Déviation de la trajectoire du jet rapide

L'efficacité numérique de confinement de la maquette est obtenue à partir des tracés d'isoconcentration en polluant. La modélisation est effectuée en imposant une concentration en polluant dans l'ambiance, à l'entrée du système, de  $C_{ext} = 10^7$  unités. De plus, une concentration de  $C_0 = 1$  unité est imposée dans chacun des jets d'air filtrés alimentant la maquette ; cette dernière valeur correspond au bruit de fond imposé dans la modélisation. Les valeurs de  $10^7$  et 1 ont été choisies car elles se rapprochent des grandeurs des concentrations expérimentales mesurées (exprimées en particules/pied<sup>3</sup>).

Deux résultats issus de la modélisation sont représentés ci-après figures 7 et 8. Il s'agit respectivement de la configuration "Nominale" sans ventilation interne et avec ventilation interne.

Les efficacités numériques obtenues, 300 sans ventilation interne et  $10^4$  à  $10^5$  avec ventilation interne, sont en bon accord avec les résultats expérimentaux et montrent là encore le rôle important de la ventilation interne.

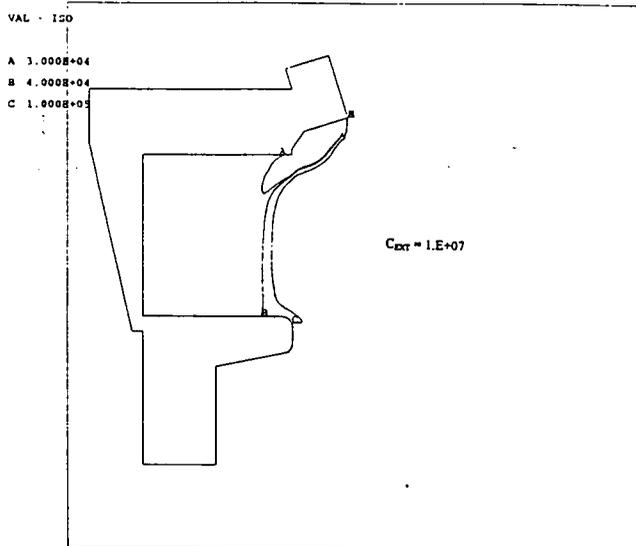


Figure 7 : Isoconcentrations relatives à la configuration "Nominale", sans ventilation interne

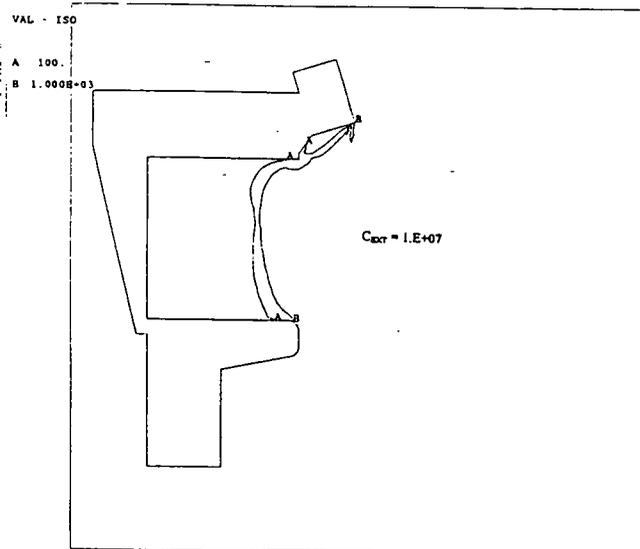


Figure 8 : Isoconcentrations relatives à la configuration "Nominale", avec ventilation interne

### 3.2. Influence du débit du jet rapide

Le critère d'évaluation choisi pour illustrer l'influence du débit du jet rapide est la longueur du dard. Trois configurations, dont les paramètres de fonctionnement sont résumés dans le tableau 1 ci-après, sont étudiées.

Configurations Paramètres	N	A	Aéco
angle (°)	12	0	0
débit jet rapide	$Q_{JR0}$	$Q_{JR0}$	$0,5 Q_{JR0}$
débit jet lent	$Q_{JL0}$	$Q_{JL0}$	$Q_{JL0}$
débit ventilation interne	$Q_{V10}$	$Q_{V10}$	$0,5 Q_{V10}$

Tableau 1

Seuls des débits relatifs sont indiqués, les valeurs absolues dépendant des applications mises en jeu. La visualisation du dard de couplage Jet rapide-Jet lent des configurations "N" et "A" (figure 9) montre que si la longueur du dard d'un jet libre est d'environ 6 fois son épaisseur de buse, cela n'est plus vrai lorsque celui-ci est couplé à un jet plus rapide. La longueur du dard est maintenant fonction de l'angle du jet avec ses parois adjacentes et du rapport des débits des différents jets (lent et rapide). Dans ces conditions, le dard du rideau d'air des configurations "N" et "A" ne couvre pas la totalité du plan d'ouverture de la maquette. Pour cela, il est nécessaire de régler le débit du jet rapide de manière à n'induire, sur sa face en contact avec le jet lent et sur toute la hauteur de l'ouverture, que la moitié du débit du jet lent.

L'autre partie du débit du jet lent est nécessaire à créer l'induction caractéristique sur son autre face. L'induction du jet rapide étant deux fois plus petite, le débit de la ventilation interne nécessaire à la maquette est lui aussi réduit d'un facteur 2. Cette configuration, à caractère plus économique, est appelée "Aéco".

Contrairement aux configurations "N" et "A", le dard correspondant à la configuration "Aéco" couvre cette fois toute la hauteur de l'ouverture à protéger (figure 10).

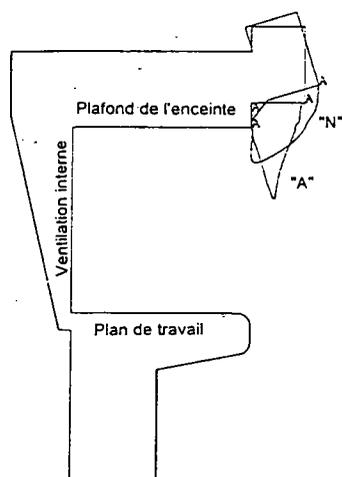


Figure 9 : Dards des configurations "N" et "A"

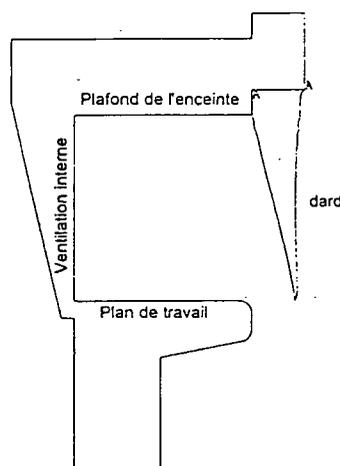


Figure 10 : Dard de la configuration "Aéco"

#### 4.- Efficacité de confinement en situation d'effractions

L'efficacité de confinement du rideau d'air à double jet plan est maintenant étudiée en situation d'effractions. Les effractions au travers du rideau d'air sont effectuées au moyen d'un effracteur mécanique permettant le déplacement alternatif, sur une distance de 40 cm, d'objets cylindriques de taille variable. L'effraction est effectuée au centre du rideau d'air. Les dimensions des objets effrateurs retenus sont résumées dans le tableau 2.

taille	diamètre (mm)	hauteur (mm)
T1	65	115
T2	124	222
T3	195	302

Tableau 2

Trois configurations, dont les caractéristiques sont résumées tableau 3, sont proposées afin d'évaluer l'influence de la taille et de la vitesse de déplacement de l'objet effracteur.

Configurations Paramètres	N	Aéco	Aécoplus
angle (°)	12	0	0
débit jet rapide	$Q_{JR0}$	$0,5 Q_{JR0}$	$0,8 Q_{JR0}$
débit jet lent	$Q_{JL0}$	$Q_{JL0}$	$1,6 Q_{JL0}$
débit ventilation interne	$Q_{V10}$	$0,5 Q_{V10}$	$0,8 Q_{V10}$

Tableau 3

Les trois configurations sont comparées à partir de la mesure de la moyenne totale du logarithme de l'efficacité du confinement ; elle représente la moyenne des efficacités ponctuelles de confinement (l'ensemble exprimé en unité logarithme) :

$$\log \text{Eff} = \frac{1}{n} \sum_i^n \log \text{Eff}_i$$

Les efficacités ponctuelles sont établies à partir de douze points de mesure, répartis sur deux plans parallèles au plan d'ouverture ; le premier de profondeur zéro et le second à mi-profondeur de la maquette.

La figure 11 montre l'évolution de l'efficacité des configurations "N", "Aéco" et "Aécoplus" vis-à-vis d'effractions de l'objet T1 à plusieurs fréquences d'effractions.

Il en ressort que l'efficacité de confinement dépend de deux effets distincts :

- ↪ un effet "barrière" assuré par le dard de couplage des jets rapide et lent,
- ↪ un effet "épurateur" assuré par la ventilation interne de l'enceinte.

En l'absence d'effractions, l'efficacité du confinement dépend essentiellement de l'effet "barrière". En effet, la configuration "Aéco", dont le dard couvre toute la hauteur de l'ouverture, est plus efficace que la configuration "N". En situation d'effractions, l'efficacité du confinement est très sensible à l'effet "épurateur" de la ventilation interne. L'efficacité de la configuration "Aéco" chute plus rapidement que celle de la configuration "N" et "A". La configuration "Aécoplus", issue des deux configurations précédentes, dispose d'un effet "barrière" similaire à celui de la configuration "Aéco" et d'un effet épurateur proche de celui de la configuration "N". Il en résulte qu'elle présente des efficacités de confinement supérieures à celles des deux autres.

L'efficacité du confinement dépend non seulement de la vitesse de l'objet effracteur mais aussi de sa taille, comme le prouvent les courbes figure 12 représentant, pour la configuration "Aécoplus", l'évolution de l'efficacité en fonction de la vitesse de déplacement des trois objets effracteurs.

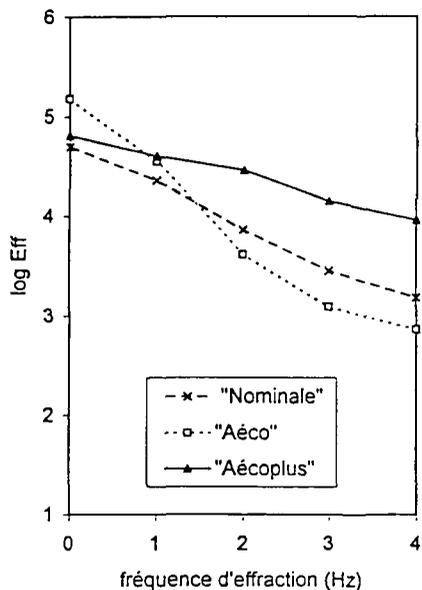


Figure 11 : Efficacité vis-à-vis d'effractions par l'objet T1

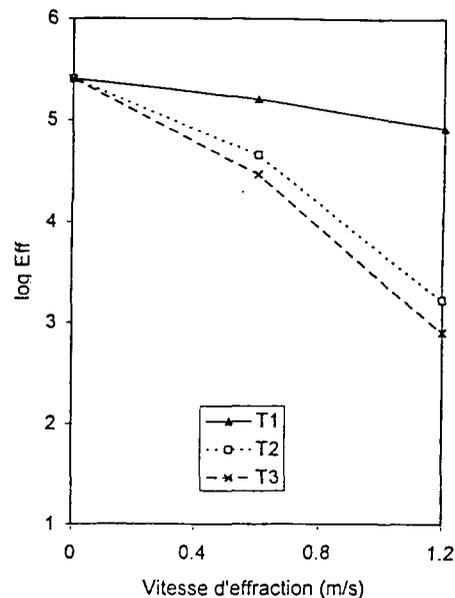


Figure 12 : Efficacité de la configuration "Aécoplus" sous effractions

## 5.- Conclusion

La communication présentée démontre la faisabilité de la technique de rideau d'air afin de garantir un haut niveau d'efficacité du confinement en situations normales et perturbées de fonctionnement de la barrière dynamique.

Les approches numériques et expérimentales proposées permettent d'améliorer les connaissances sur les paramètres fondamentaux de conception d'un rideau d'air.

L'efficacité du confinement dépend de deux effets étroitement liés :

- ↳ un effet "barrière" constitué par le dard du couplage des jets lent et rapide mis en oeuvre,
- ↳ un effet "épurateur" assuré par la ventilation interne de l'enceinte à protéger.

Les paramètres de fonctionnement de la configuration donnant les meilleurs résultats répondent aux conditions suivantes :

- le débit d'alimentation de la ventilation interne doit être égal au débit induit par une face du jet rapide sur la hauteur de l'ouverture à protéger. De plus, la vitesse de la ventilation interne doit être supérieure ou égale à une valeur nominale dépendant du type d'application,
- le débit d'alimentation du jet lent doit être égal au double du débit induit par une face du jet rapide sur la hauteur de l'ouverture à protéger. De plus, la largeur de la buse du jet lent doit être supérieure ou égale au cinquième de la hauteur de l'ouverture à protéger,
- enfin, l'angle d'orientation des jets avec le plan d'ouverture doit être proche de 0°.

Les résultats prometteurs obtenus incitent à poursuivre les études vers une adaptation de la technique du rideau d'air dans le but de séparer les différentes étapes de la fabrication d'un produit agroalimentaire au moyen de sas dynamiques.

## Remerciements

Cette étude a pu être menée grâce à la collaboration avec l'association UNIR. Nous remercions en particulier Messieurs Patrice ROBICHON, Président d'UNIR, et Yves AUDIDIER, Directeur de Recherche, pour leur participation à ces travaux.

**BIBLIOGRAPHIE**

- [1] ZIJNEN B.G. VAN DER HEGGE  
Measurements of the velocity distribution in a plane turbulent jet of air  
Appl. Sci. Res. S A7, 1958 a
- [2] RAJARATNAM N.  
Turbulent jets  
Elsevier Scientific Publishing Company, 1976
- [3] CURD E.F.  
Possible application of wall jets in controlling air contaminants  
Ann. Occp. Hyg. Vol 24 n°1, 1981
- [4] TENNEKES H. & LUMLEY J.L.  
A first course in turbulence  
M.I.T. PRESS, 1974
- [5] MELINE F.  
Procédé de confinement de la pollution d'un local à l'aide d'une veine gazeuse  
Brevet d'invention FR 82 12382, 1982
- [6] MELINE F.  
Procédé et dispositif pour maintenir une atmosphère propre à température régulée sur un poste de travail  
Brevet d'invention FR 89 12861, 1989
- [7] MAUGUIN P. & GUETRON R.  
Le confinement aseptique par double jet plan  
18ème Congrès International du froid. Montréal, Canada, août 1991
- [8] AURIOL F., CASALOTTI N., MAGNAUD J.P. & STIETEL A.  
TRIO-EF : Notice d'utilisation  
Rapport CEA/DMT.91/532, 1991
- [9] MAGNAUD J.P. & CAROLI C.  
La modélisation de la turbulence dans TRIO-EF  
Rapport CEA/DEMT.88/454, 1989

# EFFICACITE D'ECHANTILLONNAGE D'UN CAPTEUR A FENTE ANNULAIRE

O. WITSCHGER <sup>(1,2)</sup>, J.F. FABRIES <sup>(1)</sup>, P. GÖRNER <sup>(1)</sup>, A. RENOUX <sup>(2)</sup>

(1) INRS, Laboratoire de Métrologie de la Pollution par les Aérosols  
BP 27, av de Bourgogne, 54501 VANDOEUVRE CEDEX, France

(2) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations  
Université Paris XII, av du Général de Gaulle, 94010 CRETEIL CEDEX, France

**ABSTRACT** : The first step in the assessment of air pollution due to airborne particles is air sampling. Although this geometry is used at the workplace or in the atmospheric environment, the annular slot type sampler has received less investigations during the last years. Several samplers with different geometrical configurations have been designed and the efficiencies measured in several external flow (1-3 m/s) and aspiration velocities (0,5-2 m/s) within the range from a few  $\mu\text{m}$  to approximately 70  $\mu\text{m}$  in aerodynamic diameter. The experiments have been performed in a new wind tunnel facility built for aerosol sampling investigations. Moreover, a new experimental methodology, using a polydisperse aerosol made of glass beads to measure entry, transmission and overall sampling efficiencies of samplers has been developed and validated. The results show that it could be possible to find a configuration which allows to aspirate particles with a relative uniform efficiency, independently of air velocity. Based on the entry efficiency data a semi-empirical model has been developed.

**RESUME** : Le contrôle de la pollution particulaire de l'air passe par une première étape qui est l'échantillonnage de l'air. Bien que sa géométrie soit utilisée, du fait de son caractère omnidirectionnel, dans le domaine de l'hygiène du travail ainsi que dans l'environnement, le capteur à fente annulaire a été très peu étudié. Les efficacités de captage ont été mesurées pour différentes caractéristiques de géométrie des capteurs, vitesses d'aspiration (0,5-2 m/s) et d'écoulement extérieur (1-3 m/s) et pour des diamètres aérodynamiques compris entre quelques  $\mu\text{m}$  et environ 70  $\mu\text{m}$ . Ces mesures ont été effectuées au sein d'une nouvelle installation aéraulique destinée à des expérimentations relatives à l'échantillonnage. Une méthodologie de mesure des différentes efficacités de captage, transmission et d'échantillonnage, utilisant un aérosol polydispersé de billes de verre, a été développée et validée. Les résultats montrent qu'il est possible de trouver des combinaisons de paramètres pour que le captage soit relativement indépendant de la vitesse de l'écoulement extérieur. Un modèle de type semi-empirique d'efficacité de captage en fonction du diamètre des particules a été développé.

## INTRODUCTION

▪ Le contrôle de la pollution particulaire en suspension dans l'air à l'intérieur des locaux professionnels ou dans l'environnement passe par une première étape qui est l'échantillonnage de l'air.

Ce prélèvement s'effectue généralement à l'aide d'un dispositif qui aspire un échantillon d'air au travers d'un orifice, conduisant ainsi les particules via un simple conduit ou un sélecteur granulométrique jusqu'à un étage terminal de collecte, pouvant être soit un média filtrant soit une zone de comptage optique. Une question se pose donc quant à la représentativité de l'aérosol ainsi échantillonné par rapport à l'aérosol ambiant que l'on cherche à spécifier. En effet, il est essentiel que l'aérosol échantillonné soit représentatif en termes de concentration et de distribution granulométrique de l'aérosol ambiant, ou dans une optique de prévention du risque lié aux polluants particulaires, d'une fraction conventionnelle de celui-ci.

La caractéristique importante d'un dispositif de prélèvement est donc son efficacité d'échantillonnage  $E_E$  qui est définie comme étant la probabilité moyenne qu'a une particule de

l'aérosol ambiant d'être prise en compte au niveau de l'étage terminal. Il est possible de décomposer la fonction échantillonnage en fonctions élémentaires qui correspondent aux différents éléments qui constituent le dispositif. En supposant une efficacité de collecte totale et dans le cas d'un dispositif ne possédant pas de sélecteur granulométrique, on a :

$$E_E = E_C \cdot E_T$$

où  $E_C$  définit l'efficacité de *captage* par l'orifice d'aspiration et  $E_T$  l'efficacité de *transmission* au sein du conduit de prélèvement.

L'échantillonnage est un processus physique complexe. Il dépend de nombreux facteurs qui sont liés à l'aérosol (taille, densité, forme, état physique, état de charge), au dispositif de prélèvement (forme du capteur et de son(s) orifice(s) d'aspiration, à son orientation, à l'état de ses surfaces), à l'écoulement de l'air (au voisinage et à l'intérieur du dispositif, niveau de turbulence).

Une des spécifications cibles pour le développement d'un dispositif de prélèvement est l'indépendance vis à vis de l'intensité et de la direction du vecteur vitesse de l'écoulement de l'air extérieur.

▪ Bien que sa géométrie soit utilisée, du fait de son caractère omnidirectionnel, dans le domaine de l'hygiène du travail ainsi que dans l'environnement, le capteur à fente annulaire n'a pas fait l'objet d'études systématiques ces dernières années, notamment pour ce qui est de l'efficacité de captage  $E_C$ . Dans ce type de dispositif de prélèvement, le flux de particules est capté par une fente annulaire délimitée par deux disques parallèles, de même diamètre et coaxiaux, orientés horizontalement, et ensuite transmis au travers d'un orifice circulaire situé sur le disque inférieur à un tube vertical jusqu'à l'étage terminal.

Les efficacités de captage de capteurs à fente annulaire spécialement conçus pour notre étude (Figure 1) ont été déterminées expérimentalement pour des diamètres aérodynamiques allant de quelques  $\mu\text{m}$  jusqu'à environ  $70 \mu\text{m}$ . Les expérimentations ont été réalisées en faisant évoluer les caractéristiques de géométrie des capteurs (hauteur de la fente  $h$ , diamètre des disques  $D_s$ ), la vitesse d'aspiration moyenne au travers de la fente  $U_s$  ainsi que la vitesse de l'air à l'extérieur  $W$ .

Il apparaît possible de trouver des combinaisons de paramètres géométriques et de vitesse d'aspiration telles que l'efficacité de captage soit relativement indépendante de la vitesse de l'air à l'extérieur et proche de la courbe conventionnelle inhalable (CEN, 1994, ISO, 1993).

Sur la base des résultats expérimentaux, un modèle de prévision de type semi-empirique de l'efficacité de captage en fonction de la taille des particules a été élaboré.

## DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET METHODOLOGIE DE MESURE DES EFFICACITES

▪ Les expérimentations ont été réalisées grâce à une nouvelle installation aéraulique construite au laboratoire et décrite par la figure 2.

Il s'agit d'une installation en circuit ouvert de longueur totale d'une vingtaine de mètres. Elle est composée dans sa partie horizontale d'un conduit cylindrique droit de 4,5 m de longueur et de diamètre de section 30 cm. La gamme de vitesse d'air est comprise entre 0,5 et 4,5 m/s. La

turbulence est contrôlée par une grille à maille carrée, l'intensité est comprise entre 6 et 8 %. La situation de la zone de mesure en sortie du conduit horizontal permet de tirer parti de la totalité de la section du conduit.

L'aérosol d'essai polydispersé est généré par un générateur à lit fluidisé (Guichard, 1976) et dispersé après neutralisation en amont de conduit horizontal. Cet aérosol est composé de microsphères pleines en verre.

Des mesures aérauliques et la détermination des caractéristiques de concentration et de granulométrie de l'aérosol d'essai sur la section de sortie du conduit horizontal ont montré que l'installation possède, compte tenu des particules très grossières générées et de la vitesse de l'air, une bonne stabilité temporelle et une bonne uniformité spatiale (Witschger et al., 1994).

- En relation avec l'installation, une nouvelle méthodologie de mesure des efficacités a été développée. Celle-ci est fondée sur la mesure des distributions granulométriques des aérosols déposés et échantillonnés au sein d'un prélèvement de référence et du dispositif que l'on désire étudier. Une seule technique d'analyse (Coulter Multisizer®) est utilisée pour la détermination des différentes distributions granulométriques.

Le prélèvement de référence est effectué au moyen d'une sonde à orifice circulaire à bords minces fonctionnant dans des conditions isocinétiques et isoaxiales. Dans ces conditions, on effectue l'hypothèse que l'efficacité de captage est unitaire (Belyaev et Levin, 1974, Tufto et Willeke, 1983); toutefois la prise en compte du dépôt est nécessaire puisque même dans ces conditions l'efficacité de transmission décroît rapidement lorsque le diamètre des particules augmente (Witschger et al., 1993).

Cette méthodologie permet la détermination en une seule manipulation et simultanément de l'efficacité de captage, de transmission et d'échantillonnage du dispositif pour une gamme de diamètre aérodynamique allant de quelques  $\mu\text{m}$  à environ  $70 \mu\text{m}$ . Les intervalles de confiance au niveau de probabilité 95 % sur chaque résultat d'efficacité sont déterminés. Enfin, une analyse systématique de la cohérence des résultats est effectuée, qui consiste à comparer les valeurs des différentes fractions massiques calculées à partir des efficacités mesurées par la nouvelle méthodologie et les mêmes fractions massiques obtenues par une méthode indépendante de simple pesée.

Cette nouvelle méthodologie de mesure des efficacités a fait l'objet d'une validation (Witschger et al., 1996).

## RESULTATS EXPERIMENTAUX ET MODELISATION DE L'EFFICACITE DE CAPTAGE

- Les différentes mesures d'efficacités ont été réalisées pour les configurations géométriques suivantes :

$$\begin{aligned} h &: 1,1 \text{ et } 2,5 \text{ mm} \\ D_s &: 30 \text{ et } 50 \text{ mm} \end{aligned}$$

Le diamètre intérieur du conduit vertical ( $D_i = 10 \text{ mm}$ ) et sa longueur ( $L_c = 130 \text{ mm}$ ) ont été gardés constant. La vitesse d'aspiration moyenne au niveau de la fente  $U_s$  était comprise entre  $0,55 \text{ m/s}$  et  $2,08 \text{ m/s}$ , ce qui correspond à des débits d'aspiration de  $3,4$  à  $13,0 \text{ l/min}$ . Les différentes mesures ont été effectuées pour des vitesses d'air  $W$  égales à  $1$  et  $3 \text{ m/s}$ . Chacune des manipulations a été reconduite au moins une fois.

- Les résultats expérimentaux montrent que dans la majorité des configurations étudiées, l'efficacité de captage décroît depuis l'unité lorsque le diamètre de la particule croît.

Toutefois, cette décroissance semble atteindre rapidement une asymptote horizontale dont le niveau est fonction de paramètres pertinents tels que la hauteur de la fente, le diamètre des disques, le rapport R de la vitesse de l'air W à la vitesse d'aspiration moyenne  $U_s$ . De plus, les résultats révèlent, comme le montre la figure 3, qu'il existe des configurations où l'efficacité de captage est relativement uniforme jusqu'à environ 70  $\mu\text{m}$ , indépendante de la vitesse de l'air à l'extérieur et proche de la courbe conventionnelle définissant la fraction inhalable.

▪ Sur la base des résultats expérimentaux des efficacités de captage, un modèle de prévision a été développé. Les différents paramètres du modèle ont été optimisés en minimisant la fonction  $\chi^2$  qui tient compte des variances expérimentales  $\sigma^2(E_c \text{ exp.})$  sur les valeurs des efficacités (Fabriès et Görner, 1993). L'ajustement a été effectué sur 298 valeurs d'efficacités  $E_c \text{ exp.}$ . Le modèle est décrit par l'équation suivante :

$$E_c \text{ mod.} = \frac{1}{1 + 2 \text{Stk}_w^{0,361} \cdot R^{-0,100}} \cdot \left[ 1 + \text{Stk}_w^{0,186} \cdot \left( \frac{R \cdot (D_s/h)}{150} \right)^{1,505} \right]$$

où le nombre de Stokes de la particule est défini relativement à la vitesse W et au diamètre  $D_s$ . La forme générale de l'équation a été élaborée à partir d'une analyse qualitative de l'influence des paramètres géométriques et aérauliques. Ce modèle respecte la limite physique  $E_c \text{ mod.} \rightarrow 1$  lorsque  $\text{Stk}_w \rightarrow 0$ .

La figure 4 montre les valeurs des efficacités expérimentales en fonction des valeurs calculées à partir de notre modèle. L'analyse statistique sur le coefficient de régression montre qu'au niveau de confiance 95 %, on peut admettre que le coefficient de régression est unitaire.

## CONCLUSION

▪ Les efficacités de captage de capteurs à fente annulaire ont été mesurées pour différentes caractéristiques de géométrie des capteurs, paramètres de fonctionnement, conditions aérauliques extérieures et pour une gamme de diamètre aérodynamique allant de quelques  $\mu\text{m}$  à environ 70  $\mu\text{m}$ . Ces expérimentations ont été menées au sein d'une nouvelle installation aéraulique et suivant une méthodologie spécialement développée et validée fondée sur la mesure de la distribution granulométrique des fractions déposées et échantillonnées de l'aérosol à l'aide d'un prélèvement de référence et du capteur à étudier.

Sur la base des résultats expérimentaux, un nouveau modèle de prévision de l'efficacité de captage d'un capteur à fente annulaire a été élaboré.

Il apparaît que certaines configurations géométriques et de fonctionnement induisent d'une part une relative indépendance de l'efficacité de captage vis à vis de l'écoulement de l'air extérieur, et d'autre part une efficacité proche de celle correspondant à la convention inhalable.

Les différents résultats acquis ainsi que le modèle semi-empirique élaboré concernant cette géométrie de fente autorise le développement et la qualification en laboratoire et en situation réelle d'un nouvel échantillonneur qui permettrait d'apprécier la fraction inhalable.

## BIBLIOGRAPHIE

- Belyaev, S.P., Levin, L.M. (1974)  
Techniques for collection of representative aerosol samples.  
*J. Aerosol Sci.*, 5, 325-338
- CEN (Comité Européen de Normalisation) (1993)  
Atmosphères des lieux de travail. Définition des fractions de taille pour le mesurage des particules en suspension dans l'air.  
*Norme Européenne NF EN 481, 1993*
- Fabriès, J.F., Görner, P. (1993)  
Accuracy requirements in performance assessment of particle size-selective samplers.  
*American Industrial Hygiene Conference & exposition '93. 15-21 mai 1993. New-Orleans, Louisiane, USA.*
- Guichard, J.C. (1976)  
Aerosol generation using fluidized beds.  
*in Fine Particles.*  
éditeur : B.Y.H. Liu, pp 173-193  
*Academic Press, New-York*
- ISO (International Organization for Standardization) (1993)  
Qualité de l'air. Définitions des fractions de taille des particules pour l'échantillonnage lié aux problèmes de santé.  
*DIS 7708, 1993.*
- Tufto, P., Willeke, K. (1982)  
Dependence of particulate sampling efficiency on inlet orientation and flow velocities.  
*Am. Ind. Hyg. Assoc. J.* 43, 436-443.
- Witschger, O., Fabries, J.F., Gorner, P., Renoux, A. (1993)  
Efficacité de captage de dispositifs de prélèvement d'aérosols.  
*10èmes Journées d'Etude sur les Aérosols. GAMS COFERA Paris, France, 30 Novembre - 1er Decembre. publ. dans Actes pp 7-14.*
- Witschger, O., Wrobel, R., Fabriès, J.F., Görner, P., Renoux, A. (1994)  
A new experimental facility for studying aerosol samplers.  
*European Aerosol Conference, 30 mai-2 juin 1994, Blois, France.*  
*J. Aerosol Sci.* 25, S333-S334.
- Witschger, O., Wrobel, R., Fabriès, J.F., Gorner, P., Renoux, A. (1996)  
A new experimental wind tunnel facility for aerosol sampling investigations.  
*soumis au Journal of Aerosol Science (manuscript n°1039).*

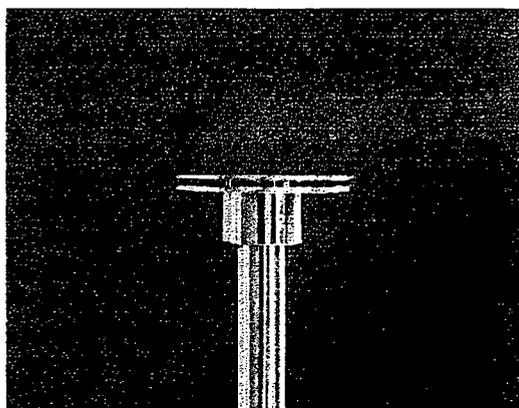


Figure 1 : Capteur à fente annulaire.

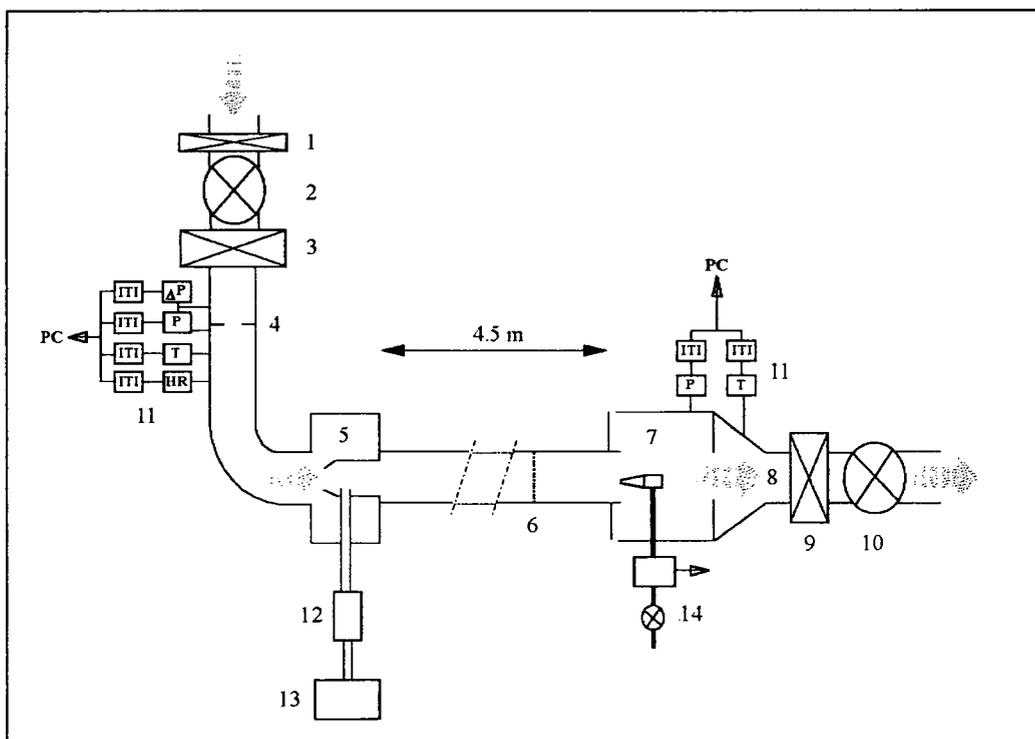
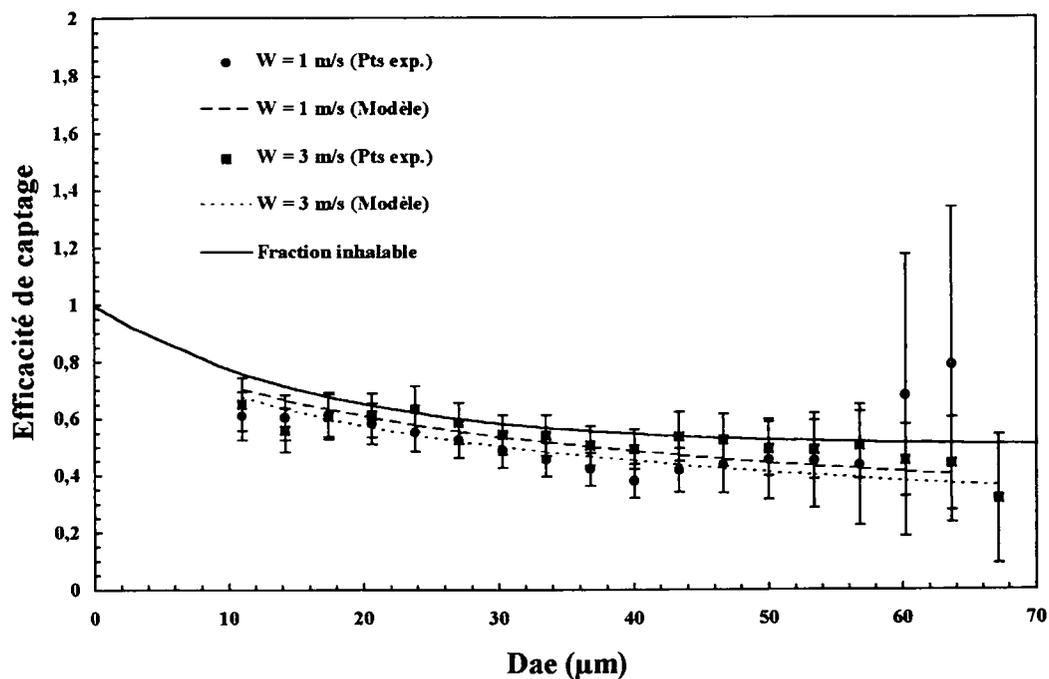
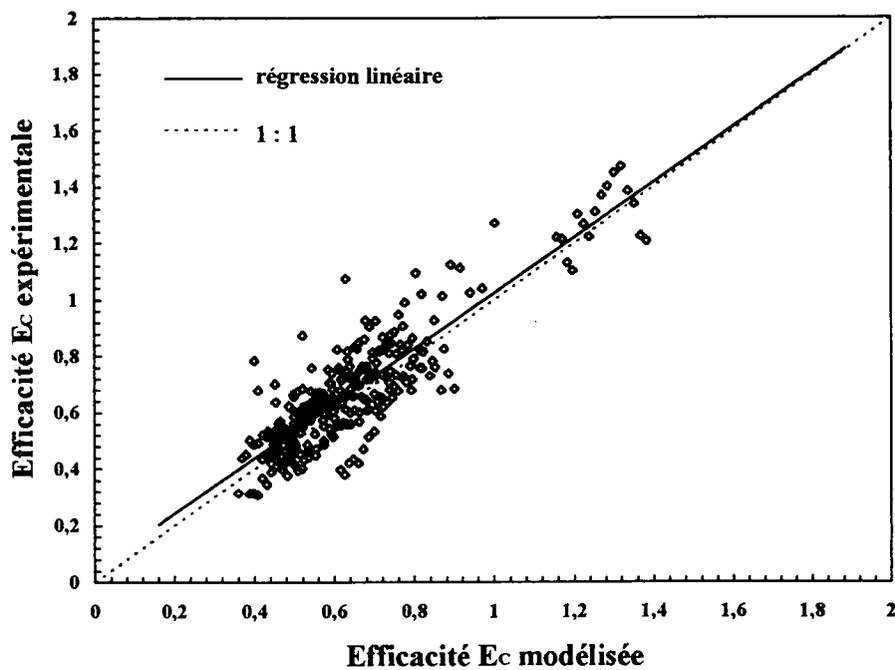


Figure 2 : Schéma de l'installation aéraulique à empoussièremment contrôlé (échelle non respectée). 1 : préfiltre, 2 : ventilateur de soufflage, 3 : filtre HEPA, 4 : diaphragme, 5 : zone de mélange, 6 : grille de turbulence, 7 : zone de mesure, 8 : système de reprise, 9 : bloc de filtration, 10 : ventilateur extracteur, 11 : capteurs\indicateurs\transmetteurs, 12 : neutraliseur de charges, 13 : générateur d'aérosols, 14 : système de prélèvement.



**Figure 3 :** Efficacité de captage expérimentale (intervalle de confiance à 95 %) et modélisée d'un capteur à fente annulaire en fonction du diamètre aérodynamique pour deux vitesses d'air extérieur  $W$ . Courbe conventionnelle de la fraction inhalable EN481. Configuration du capteur :  $D_s = 30$  mm,  $h = 1,1$  mm,  $U_s = 2,08$  m/s.



**Figure 4 :** Valeurs des efficacités expérimentales  $E_C$  exp. en fonction des valeurs des efficacités calculées  $E_C$  mod. 1 : 1 : première bissectrice, représentation de la droite de régression linéaire.

# LA RADIOACTIVITE ATMOSPHERIQUE NATURELLE SON HISTOIRE - SES DECOUVERTES

André RENOUX

Laboratoire de Physique des Aérosols et  
de Transfert des Contaminations.  
Faculté des Sciences et Technologie  
UNIVERSITE PARIS XII  
61 avenue du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX

## ABSTRACT:

The discovery of the rare radioactive gas radon is attributed to P. and M. CURIE in 1898 and F. DORN in 1900. Thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ) was discovered by RUTHERFORD and OWENS in 1899 - 1900 and Actinon ( $^{219}\text{Rn}$ ) by DEBIERNE and GEISEL about the same time. The radon's radiotoxicity was studied in France since 1904 by BOUCHARD and BALTHAZARD and in 1924 it was formulated the hypothesis that the great mortality observed in the uranium miners of SCHNEEBERG in Germany and JOACHIMSTHAL in Czechoslovakia was maybe due to the radon. But, in fact, ELSTER and GEITEL was the first to see that radioactivity is present in the atmosphere in about 1901. After this date, many investigations were made (M. CURIE, for example), but it is during the fifties and, of course, until today that the most numerous works were developed.

In this paper, we speak about the researches of the after second war pioneers: EVANS, WILKENING, KAWANO, ISRAEL, JUNGE, SCHUMAN, BRICARD... RENOUX, BLANC - FONTAN, SIKSNA, CHAMBERLAIN - DYSON, NOLAN etc... and the works developed later. Finally, we reach to the nineties, period where the works are particularly directed in the aim of radon and radon progeny indoor.

## 1. Introduction.

C'est en 1896, par le plus grand des hasards du reste, que, travaillant sur les rayons X découverts un an plus tôt par l'Allemand RÖNTGEN, que le Français Henri BECQUEREL découvrit la radioactivité, dans un laboratoire qu'on peut encore voir au Jardin des Plantes, à Paris. En 1898, toujours à Paris, les Curie commençaient leurs monumentales séries d'expériences. En 1899, OWENS et RUTHERFORD découvraient le Thoron (qu'ils appelaient alors "émanation". La figure 1 montre le dispositif original utilisé, pour ce faire, par RUTHERFORD.

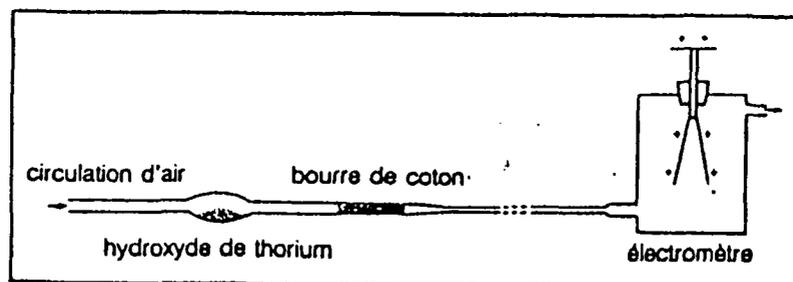


Fig. 1. L'appareil original utilisé par RUTHERFORD pour détecter le thoron.

Et en 1901, commence la grande aventure de la radioactivité atmosphérique. Nous pouvons distinguer trois périodes: 1900-1950; 1950-1980; 1980...

## 2. La période 1900-1950.

On observe un grand parallélisme entre les recherches concernant ce nouveau phénomène, la radioactivité, et les premiers travaux sur la radioactivité atmosphérique naturelle.

C'est en 1901 que, étudiant les petits ions atmosphériques et après avoir développé la théorie des ions initialement formulée par J.J. THOMSON, les Allemands ELSTER et GEITEL mirent en évidence le fait que la radioactivité est présente dans l'atmosphère.

Le tableau 1 donne les dates et les noms des découvreurs des différents radionuclides naturels présents dans l'air.

Série (4n)

Element	Découvreur	Date
Thorium	Mme Curie; Schmidt	1898
Mesothorium I	O. Hahn	1907
Mesothorium II	O. Hahn	1908
Radiothorium	O. Hahn	1905
Thorium X	Rutherford and Soddy	1899/1900
Thoron	Rutherford and Owens	1899/1900
Thorium B	Rutherford	1904
Thorium C	Rutherford	1904

Série (4n+2)

Elément	Découvreur	Date
Uranium	Becquerel	1896
Uranium X <sub>1</sub>	Crookes	1900
Uranium X <sub>2</sub>	Fajans and Göhring	1913
Ionium	Boltwood	1907
Radium	Mme Curie	1898
Radon	Mme and P. Curie; Dorn	1898/1900
Radium B + C	Mme Curie	1899
Radium D	Hoffmann and Strauss	1901
Polonium	Mme Curie	1898

Série (4n+3)

Elément	Découvreur	Date
Actino-Uranium	Dempster	1935
Uranium Y	Antonoff	1911
Protactinium	Hahn, Soddy, Meitner	1918
Actinium	Debiérne; Geisel	1899
Radioactinium	O. Hahn	1906
Actinium X	Geisel and Godlewsky	1904
Actinium K	Mlle Perey	1939
Actinen	Debiérne and Geisel	1899/1900
Actinium B + C	Geiger, Debiérne, Brooks and Rutherford	1899/1911

Tableau 1. Les éléments radioactifs naturels (dates et découvreurs).

Le tableau 2 montre, entre 1901 et 1908, l'évolution de l'estimation de la masse atomique du Radon  $^{222}\text{Rn}$ , dont on savait déjà qu'il est le gaz rare radioactif responsable de la plus grande partie de la radioactivité atmosphérique naturelle.

En 1930, la présence de radon dans l'air est bien connue. Mais les mesures directes du radon, du thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ) et plus encore de leurs descendants, sont freinées par la mauvaise sensibilité des détecteurs (le plus souvent, des électromètres). On citera les travaux de EVANS, ALIBERTI, BECKER sur le radon et le thoron.

### 3. La période 1950-1980.

C'est certainement la période qui a donné lieu au plus nombreuses découvertes concernant la radioactivité atmosphérique naturelle. Après la seconde guerre mondiale, l'utilisation des photomultiplicateurs permet d'utiliser la propriété qu'ont les radiations nucléaires d'exciter la fluorescence de certains corps ( $\alpha$  sur du sulfure de zinc, par exemple). On obtient alors des détecteurs extrêmement sensibles. Et à ce moment, deux types d'activité se développent.

#### 3.1. La radioactivité atmosphérique naturelle.

En 1950, les caractéristiques essentielles du radon et de ses descendants, masse atomique, période radioactive, énergie des rayonnements  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  émis, sont bien connues.

On sait, par exemple, piéger le radon sur du charbon actif. La Fig. 3 montre le dispositif utilisé par NAKATANI au Japon. Mais généralement,

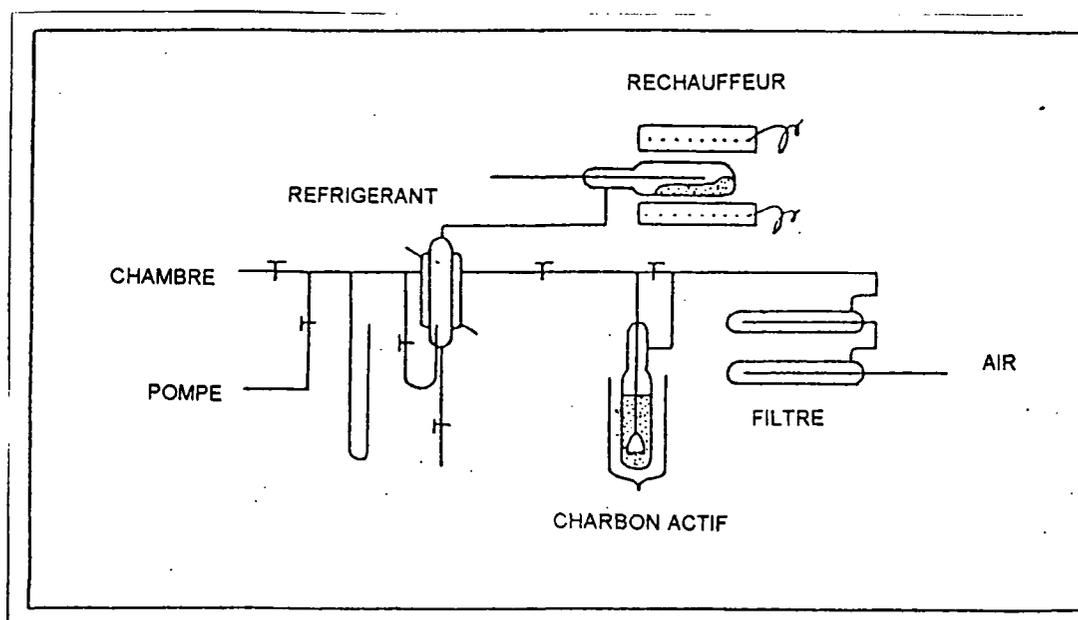


Fig. 3. Le dispositif de mesure du radon de NAKATANI.

entre 1950-1960, les concentrations du radon dans l'air étaient mesurées par des méthodes indirectes supposant que le radon est en équilibre radioactif avec ses descendants solides fixés sur les aérosols atmosphériques. En fait, les premières mesures directes de radon dans l'air étaient faites en 1961, par BLANC et FONTAN à Toulouse, inventant la méthode des deux filtres et de la chambre de désintégration. Reprise par ISRAEL en Allemagne, elle était perfectionnée par TYMEN-RENOUX à Brest, et permettait des mesures continues au cours d'une journée.

A partir de 1950, on assiste à l'essor d'une nouvelle discipline: la Science des Aérosols dont les théories et les techniques vont être appliquées à l'étude de la charge électrique et de la granulométrie de l'aérosol radioactif naturel atmosphérique. Les premières granulométries de cet aérosol sont obtenues aux États Unis par WILKENING en 1952. En 1959, l'Allemand JACOBI

Chercheur	Année	Poids moléculaire
Rutherford et Brooks	1901	40 à 100
Curie et Danne	1903	40 à 100
Bumstead et Wheeler	1904	180
Makower	1905	85,5 à 97
Perkins	1908	235

Tableau 2. Evolution de l'évaluation de la masse atomique du Radon 222.

La fig. 2 est la figure originale décrivant les éléments radioactifs naturels tels que les estimait J.J. THOMSON en 1906. On remarque quelques erreurs spectaculaires sur les périodes: 11 h au lieu de 0,145 s. pour le ThA ( $^{216}\text{Po}$ ), 36 min au lieu de  $1,83 \cdot 10^{-3}\text{s}$ . pour l'AcA par exemple. Egalement, pour THOMSON, un même radioélément pouvait être à la fois émetteur  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$ .

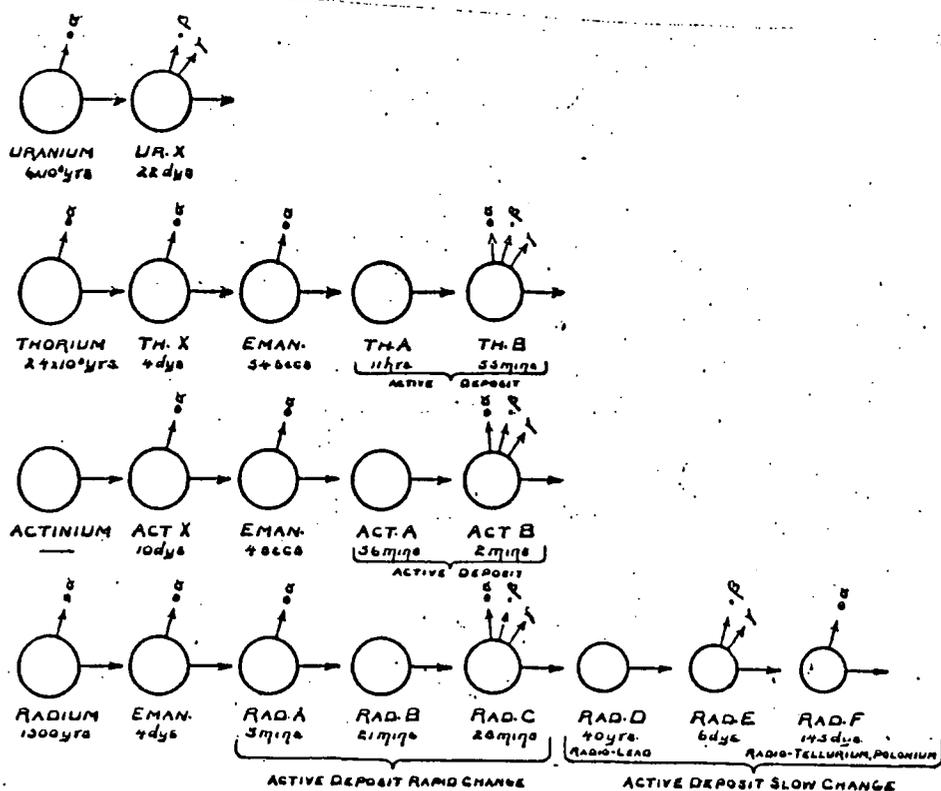


Fig. 2. Le tableau original de J.J. THOMSON.

N'oublions pas que ce n'est qu'en 1903 que RUTHERFORD montrait que les rayons  $\alpha$  sont des particules chargées positivement en mouvement, et que leur nature exacte n'a été confirmée qu'en 1909 par RUTHERFORD et ROY. En 1911 la nature électromagnétique des rayons  $\alpha$  était encore inconnue, et ce n'est qu'en 1932 que CHADWICK découvrait le neutron à partir d'expériences de F. et I. JOLIOT-CURIE mal interprétées par ces derniers.

### 3.2. La radioactivité naturelle de l'air des mines d'uranium.

Dès 1904, en France, BOUCHARD et BALTHAZARD envisageaient une radiotoxicité du radon. En 1932, aux Etats Unis, SACCOMANO établissait une corrélation entre une forte radioactivité atmosphérique et l'apparition de cancers du poumon.

Au commencement des années soixante, le développement des centrales nucléaires entraînait un accroissement de l'activité des mines d'uranium, conduisant à de nombreuses études, afin de protéger les mineurs, sur la radioactivité de l'atmosphère de mines d'uranium. Ainsi, dans les mines d'uranium françaises, PRADEL, en 1954, développait la méthode des fioles scintillantes (au SZn) pour mesurer le radon dans l'air (fig. 5.).

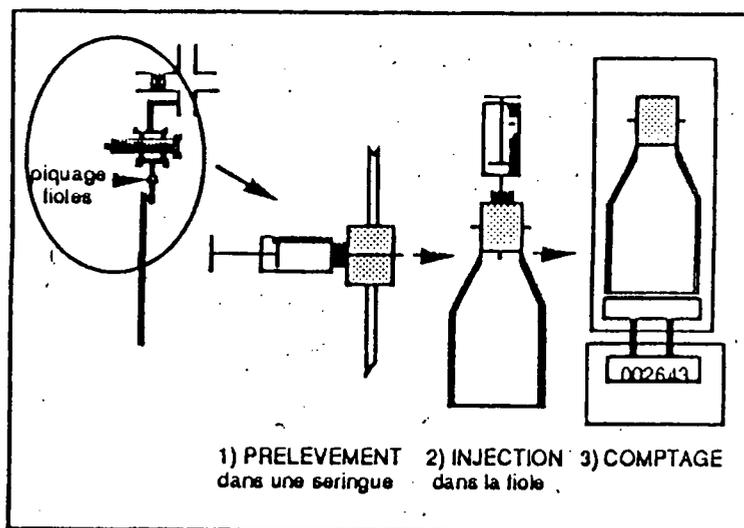


Fig. 5. La méthode des fioles scintillantes.

En France (équipe PRADEL-BRICARD-MADELAINE-BLANC-FONTAN, puis plus tard ZETWOOG-RENOUX-MADELAINE-DUPORT) et aux Etats Unis (GEORGE, PALMER), des mesures du radon et de la granulométrie de ses descendants étaient développées. La première détermination de la fraction libre (particules de  $^{218}\text{Po}$  (RaA) de l'ordre du nanomètre, non encore fixées sur l'aérosol atmosphérique) étaient faites par CHAMBERLAIN et DYSON en 1956. Leur estimation (10% de la radioactivité totale) devenait la définition de l'ICRP en 1959. En 1975, DUPORT mesurait cette fraction libre dans les mines d'uranium de LIMOGES pour le RaA,  $^{218}\text{Ra}$ (0,30), le RaB  $^{218}\text{Pb}$  (0,16) et le RaC  $^{214}\text{Bi}$  (0,15).

#### 4. De 1980 à aujourd'hui.

Au début des années soixante dix, on observe une lente décroissance du volume des recherche sur la radioactivité atmosphérique naturelle. Si, en 1965, le Symposium CACR de VISBY (Suède) sur la chimie et les aérosols atmosphériques réunissait plus de 40% des communications sur ce domaine, le congrès similaire de GALWAY (Irlande) sur les aérosols atmosphériques n'en avait plus qu'une seule sur une centaines de présentations.

Mais, au début des années 80, du fait de la crise mondiale de l'énergie des années 70-80, on prend en compte un nouveau phénomène: la pollution à l'intérieur des locaux. En effet, cette crise a nécessité, pour économiser l'énergie, de substantiels efforts d'isolation thermique des immeubles et des habitations. Il fallait donc confiner les logements et les

estimait que 50% de la radioactivité atmosphérique naturelle se trouvent sur des particules de dimensions inférieures à  $0,2\mu\text{m}$ .

En 1949, le Français J. BRICARD développait une théorie sur la fixation de petits ions sur des aérosols sphériques de dimensions connues. Ayant l'idée de l'adapter à l'étude des ions radioactifs naturels de l'air, il s'associait avec J. PRADEL du CEA. C'était le début des recherches françaises dans ce domaine et A. RENOUX, en 1958 et G. MADELAINE deux ans plus tard travaillaient sous leur direction. Ainsi, en 1963, A. RENOUX, découvrait la présence dans l'air de gros ions radioactifs naturels, chargés négativement, ce que confirmait G. MADELAINE en atmosphère artificielle. Les ions radioactifs faisaient alors l'objet de nombreux travaux, KAWANO et NAKATANI au Japon, WILKENING aux Etats Unis et, à Brest, TYMEN et RENOUX reprenaient ce type de recherches en 1971.

Parallèlement, POLLAK-METNICKS en 1957, TWOMEY en 1963 utilisaient des méthodes basées sur la diffusion pour déterminer le diamètre moyen de l'aérosol atmosphérique et, en 1956, CHAMBERLAIN et DYSON réalisaient les premières mesures du coefficient de diffusion du RaA et du ThB. Des théories expliquant la fixation des petits ions radioactifs positifs étaient développées, autour de 1960, par BRICARD, SIKSNA, FUCHS, LASSEN, HOLL et MUHLEISEN. La durée de vie d'un petit ion radioactif de l'air était mesurée par JUNGE (21 à 80 s.), CHAMBERLAIN et DYSON (9 à 44 s.), RENOUX (18 s.).

Finalement, dans les années 60, grâce en particulier aux travaux de JUNGE et SCHUMANN, on commençait à avoir une assez bonne idée de la distribution granulométrique de la radioactivité atmosphérique naturelle. En 1965, RENOUX montrait qu'environ 40% de cette dernière se trouvent sur des aérosols de dimensions inférieures à  $2.10^{-2}\mu\text{m}$ .

Avec l'apparition de micro-ordinateurs performants au milieu des années soixante dix, il devenait possible d'approfondir l'exploitation numérique des théories de la fixation des petits ions radioactifs sur l'aérosol atmosphérique et, entre 1975 et 1979, TYMEN et RENOUX développaient, à Brest, une théorie permettant d'expliquer la répartition granulométrique de l'aérosol radioactif naturel atmosphérique. La fig.4 illustre les granulométries théoriques et expérimentales obtenues à Brest par G. TYMEN, par vents de S.O. et N.E.

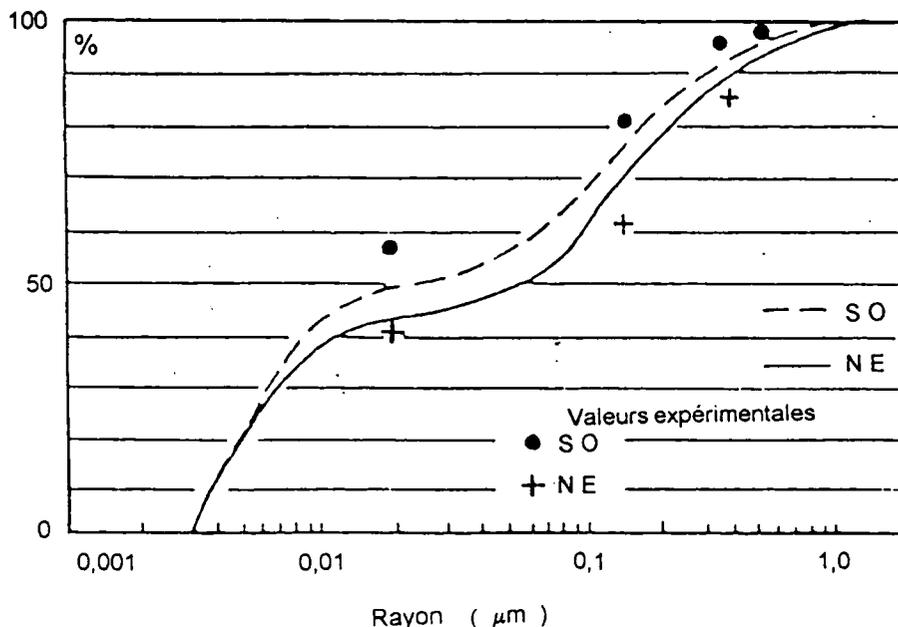


Fig. 4. Granulométries théoriques (courbes) et expérimentales (points) des descendants à vie courte du Radon 222 dans l'air.

locaux, augmentant ainsi la pollution intérieure et corrélativement le "risque radon". De sorte que, à partir de 1980, de nombreux pays se lancent dans des études sur le radon et ses descendants dans les habitations. Les concentrations mesurées sont beaucoup plus élevées ( $60 \text{ Bq. m}^{-3}$  à l'intérieur, en moyenne, contre  $4 \text{ Bq. m}^{-3}$  à l'extérieur), et peuvent atteindre des valeurs énormes ( $8000 \text{ Bq. m}^{-3}$  dans une cave de Bretagne, jusqu'à  $100000 \text{ Bq. m}^{-3}$  dans certaines caves de Hongrie!).

Bien entendu, certaines technologie mise au point pour l'air de mines d'uranium étaient adaptées à ces nouvelles études, comme, par exemple, le dosimètre de site mis au point par le CEA à la fin des années 70 et utilisant la détection des rayonnements  $\alpha$  par un détecteur solide de traces (nitrate de cellulose).

La détermination de la fraction libre des descendants du radon fait l'objet de nombreux travaux: TYMEN en France, MAC LAUGHLIN en Irlande, HOPKE aux Etats Unis, PORSTENDORFER en Allemagne.

De même, en 1972, l'Allemand JACOBI développait un modèle mathématique destiné à prédire la concentration du radon et de ses descendants à vie courte dans l'air des mines d'uranium. Ce modèle était adapté pour une pièce d'un appartement par PORSTENDORFER ("Room Model"). Et récemment, dans notre équipe, A.M. GOURONNEC étendait ce modèle "PRADDO" dont elle montrait qu'il est en bon accord avec ses mesures expérimentales développées, dans une cave de Bretagne, sur les descendants attachés du radon.

De la sorte, en ce début des années 90, on assiste, du fait de cette nécessité de maîtriser et de contrôler cette pollution intérieure, à un renouveau des recherches sur la radioactivité atmosphérique naturelle. Ainsi, l'"International Symposium ou the Natural Radiation Environment (NRE VI) qui s'est tenu en Juin 1995 à Montréal, a réuni près de 300 communications.

*Ce texte est le résumé d'un article plus détaillé qui paraîtra prochainement dans la Revue Pollution Atmosphérique. J'ai tenu à y joindre la bibliographie complète de mon article futur, en hommage à ceux qui, après les glorieux pionniers du début de ce siècle, ont contribué à mieux connaître cet aérosol radioactif naturel et son radon de père.*

- [1] H. BECQUEREL, C. R. Ac. Sc. Paris, 122, 1896, p.765.
- [2] OWENS Phil. Mag., 5ème série, 48, 1899, p.360
- [3] E. RUTHERFORD Phil. Mag. 5ème série, 49, 1900, p.161.
- [4] J. ELSTER, H. GEITEL. Terr. Magn. Atmos. Elec., 4, 1899, p.132.
- [5] J.J. THOMSON Discharge of Electricity through gases, Westminster.
- [6] J. ELSTER, H. GEITEL, Phys. Z. 2, 1901, p.590.
- [7] P. CURIE, M. CURIE, M. BÉMONT, C.R.AC. SC., PARIS, 127, 1898, P.1515.
- [8] P. CURIE, M. CURIE, Rapports présentés au Congrès International de Physique, t. III, 1900, p.108.
- [9] J.J. THOMSON, Conduction of Electricity through gases, Cambridge, 1906.
- [10] A.M. GOURONNEC, Thèse, Université PARIS XII, 1995.
- [11] E. RUTHERFORD Phil. Mag., 6ème serie, t. 5, 1903, p.177.
- [12] J.J. THOMSON Proc. Cambridge Phil. Soc., t. 13, 1904, p.49.
- [13] H. BECQUEREL C.R.Ac. Sc., Paris, t. 5, 1903, p.177.
- [14] C. ALIVERTI Nuovo Cimento 9, 1932, p.313.
- [15] R.D. EVANS Rev. Sci. Inst., 6, 1939, p.99.
- [16] R.D. EVANS, C. GOODMAN, J. of Industrial Hyg. and Toxicology, 22, n°3, 1940, p.89.
- [17] F. BECKER, Beitr. Geophys. 42, 1934, p.365.
- [18] S. NAKATANI Planetary Electrodynamics, Vol.1., 1969, p.173.
- [19] V.H. HESS, J. Atmos. Terr. Phys. 3, 1950, p.172.
- [20] E.S. COTTON, J. Atmos. Terr. Phys. 7, 1955, p.90.
- [21] M.H. WILKENING, J. Geophys. Res. 64, 1959, p.521.
- [22] A. RENOUX, J. R. A. 1, n°4, 1965, p.197.
- [23] J. FONTAN, D. BLANC, M. BONNAFOUS, A. BOUVILLE. Journal Physique Rad. 22, 1961, p.179.
- [24] H. ISRAEL, G.W. ISRAEL, Tellus, 18, n°: 2,3, 1966, p.557.
- [25] G. TYMEN, Thèse Université de Brest, Rapport CEA. R 4965-1979.
- [26] C. JUNGE Journ. Met. 12, 1955, p.13.
- [27] M.H. WILKENING Revi. Sci. Instr. 23, 1952, p.13.
- [28] W. JACOBI, A. SCHRAUB, K. AURAND, H. MÜTH, Beitr. Phys. Atmosphäre, 31, 1959, p.244.
- [29] J. BRICARD J. Geophys. Res. 54, 1949, p.39.
- [30] L. LASSEN, D. RAU, Z. Physik, 160, 1960, p.504.
- [31] J. BRICARD, J. PRADEL, A. RENOUX, Geofisica pura e applicata, 50, 1961, p.235.
- [32] A. RENOUX, C. R. Acad. Sc. Paris, 256, 1963, p.478.
- [33] G. MADELAINE, Rapport CEA-N 498, 1964.
- [34] J. ZELENY, Phys. Rev., A. 195, 1901, p.193.
- [35] M. KAWANO, The Met. Soc. Japan, II, 35 n°6, 1957, p.50.
- [36] M. WILKENING, M. KAWANO, C. LANE, Tellus, 18, n°2, 1966, p.679.
- [37] A. RENOUX, Thèse Fac. Sc. Paris, Rapport CEA-R 2771, 1965.
- [38] L.W. POLLAK, A.L. METNIEKS, Geof. pura e appl. 37, 1957, p.183.
- [39] S. TWOMEY, J. Franklin Inst. 275, 1963, p.121.
- [40] J. BRICARD, J. PRADEL, A. RENOUX Ann. de Geop. 18, n°4, 1962, p.4.
- [41] N.A. FUCHS, Geof. pura e appl. 56, 1963, p.185.
- [42] W. HOLL, R. MUHLEISEN Geof. pura e appl. 31, 1955, p.115.
- [43] R. SIKSNA Tellus, 18, n°: 2, 3, 1966, p.619.
- [44] A.C. CHAMBERLAIN, E.D. DYSON, Brit. J. Radiol., 29, 1956, p.317.
- [45] C. JUNGE Air Chemistry and Radioactivity. Academic Press, 1963.
- [46] G. SCHUMANN J. R. A., 1, n°3, 1963, p.145.
- [47] G. TYMEN, A. RENOUX, Chemosphere, n°7, 1977, p.393.
- [48] N.A. FUCHS Geofisica pura e applicata 5, 3, 1963, p.184.
- [49] J. BRICARD Problems of Atmospheric and Space Electricity, ELSEVIER, 1965, p.82.
- [50] D. KEEFE, P.J. NOLAN, J.A. SCOTT, Proc. R.I.A. 66, sect A, 1968, p.17.
- [51] D. SINCLAIR, A.C. GEORGE, E.O. KNUSTON Assessment of Airborne Radioactivity, Amer. Nuclear Soc. Ed., 1978.

- [52] A. PIRCHAN, H. SIKL *Am. J. Cancer* 16, 1932, p.681.
- [53] J. PRADEL, L. BENEIX B.I.S.T. CEA Saclay, 1956, p.2.
- [54] J.W. THOMAS, P.C. LE CLARE, *Health Physics*, 18, 1970, p.113.
- [55] A.C. GEORGE, A.J. BRESLIN *Health Physics*, 17, 1969, p.115.
- [56] A.C. GEORGE, L. HINCHLIFFE, R. SLADOWSKI *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.* 36, 1975, p.484.
- [57] H.E. PALMER, R.W. PERKINS, B.O. STEWART, *Health Phys.* 10, 1964, p.1129.
- [58] D. BLANC, J. FONTAN, A. CHAPUIS, F. BILLARD, G. MADELAINE, J. PRADEL Symposium on Instruments and Technics for the Assessment of Airborne Radioactivity in Nuclear Operations, I.A.E.A., Vienna Ed., 1968, p.229
- [59] A. RENOUX, J.Y. BARZIC, G. MADELAINE, P. ZETTWOOG, *Nuclear Technology* 37, 1978, p.313.
- [60] A. RENOUX, G. MADELAINE, P. ZETTWOOG, *Radioprotection*, 17, n°3, 1982, p.163.
- [61] I.C.R.P. Report of committee II on permissible dose for internal radioactin, Pergamon Press, Oxford, 1959.
- [62] B.F. CRAFT, J.L. OSER, F.W. NORRIS *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.* 27, 1966, p.154.
- [63] N. FUSAMARA, R. KUROSAWA, M. MARUYAMA Symposium on Instruments and Technics for the Assesement of Airborne Radioactivity in Nuclear Operations. I. A. E. A., Vienna, 1967, p.213.
- [64] M.J. DUGGAN, D.M. HOWELL *Health Phys.* 17, 1969, p.423.
- [65] A.C. JAMES, G.F. BRADFORD, D.M. HOWELL, *J. Aerosol Sci.*, 3, 1972, p.243.
- [66] A.C. GEORGE, L. HINCLIFFE, *Health Phys.* 23, 1973, p.791.
- [67] M. RAGHAVAYA, J.H. JONES, *Health Phys.* 26, 1974, p.417.
- [68] P. DUPORT, G. MADELAINE, A. RENOUX, *Chemosphere*, 5, 1975, p.283.
- [69] W. JACOBI, *Health Phys.* 22, 1972, p.441.
- [70] E. TóTH, D; BOROS, F. DEAK, G. MARKS, *Physica Scripta*, 50/6, 1994, p.760.
- [71] A. RANNOU, Thesis Brest, CEA R. 5378 Report, 1987.
- [72] P. DUPORT, A.M. CHAPUIS, J. PRADEL, IAEA Colloque International sur les progrès du contrôle radiologique aux fins de radioprotection, 1978.
- [73] A. MOUDEN, A. RENOUX, G. MADELAINE, *Solid State nuclear track detectors*, Pergamon Press, 1980, p.633.
- [74] G. TYMEN, M.C. ROBE, A. RANNOU, *Radiation Protection Dosimetry* 45, 1/4, 1992, p.319.
- [75] P.K. HOPKE, Technical Report Series of the U.S. Department of Energy, 1990.
- [76] P.K. HOPKE, *Health Physic*, 57, 1989, p.39.
- [77] D. KEROUANTON, G. TYMEN, D. BOULAUD, *Journal Aer. Sc.* 25/51, 1994, p.5249.
- [78] A. REINEKING, J. PORSTENDORFER *Health Phys.* 58, 6, 1990 p.715.
- [79] J. PORSTENDORFER, A. WICKE, A. SCHRAUB *Health Phys.* 34, 1978, p.465.
- [80] A.M. GOURONNEC, F. GOUTELARD, G. TYMEN, N. MONTASSIER, D. BOULAUD, A. RENOUX *Journal of Aerosol Sc.*, 25/51, 1994, p. s. 73.

# Détection de particules sphériques inhomogènes par Anémométrie Phase Doppler: particules à coeur

D. Blondel, F. Onofri, G. Gréhan, A. Garo, G. Gouesbet

Laboratoire d'Energétique des Systèmes et Procédés,  
INSA de Rouen, URA.CNRS.230, CORIA.  
BP08, 76131, Mont-Saint-Aignan Cédex, France

## Résumé

L'Anémométrie Phase Doppler est une technique employée pour la mesure de la taille et de la vitesse de particules en écoulement. Ces particules sont considérées sphériques et homogènes. Cependant, dans de nombreuses situations, les particules rencontrées ne satisfont pas ces hypothèses. Le laboratoire a donc été amené à étudier la possibilité d'étendre la technique phase Doppler aux particules non sphériques et inhomogènes. Dans un premier temps, l'étude a été limitée au cas des particules sphériques à coeur.

Pour l'étude numérique de ce problème, nous avons développé un code de calcul basé sur la Théorie de Lorenz Mie Généralisée. Ce code permet de calculer les caractéristiques de la lumière diffusée lorsqu'une particule multicouche traverse une sonde optique constituée de deux faisceaux laser. Des simulations intensives ont permis de mettre en évidence la possibilité de diagnostiquer les particules à coeur.

## 1 Introduction

L'Anémométrie Phase Doppler (PDA) est, à l'heure actuelle, une technique bien implantée aussi bien dans les milieux industriels que dans les laboratoires de recherche pour l'étude granulométrique des milieux diphasiques. Cette technique interférométrique est basée sur l'exploitation du signal lumineux diffusé par des particules sphériques, homogènes et isotropes, lors de leur traversée du volume de mesure défini par l'intersection de deux faisceaux laser. Dérivée de l'Anémométrie Doppler Laser (ADL), elle permet des mesures de taille, de vitesse ainsi que de flux massiques.

Dans de nombreuses situations, les particules rencontrées dans les milieux diphasiques ne sont cependant ni sphériques ni homogènes. C'est le cas par exemple, lors du séchage de brouillards ou lors de la combustion de certains sprays (fuels lourds, multicomposants) où les particules développent des gradients d'indice. Cette situation a donc amené le laboratoire à s'intéresser (dans le cadre d'une action incitative) à l'extension de la technique phase Doppler à cette classe de particules et plus particulièrement aux particules dont l'inhomogénéité respecte la symétrie sphérique: particules à coeur.

Cette communication est organisée en cinq parties. La technique phase-Doppler sous sa configuration "Double Bouffée" est présentée dans la seconde partie, les paramètres des simulations

sont détaillés dans la troisième partie, les résultats obtenus sont présentés dans la quatrième partie et la dernière partie est une conclusion.

## 2 Principe de l'anémométrie Phase Doppler sous sa configuration "Double Bouffées"

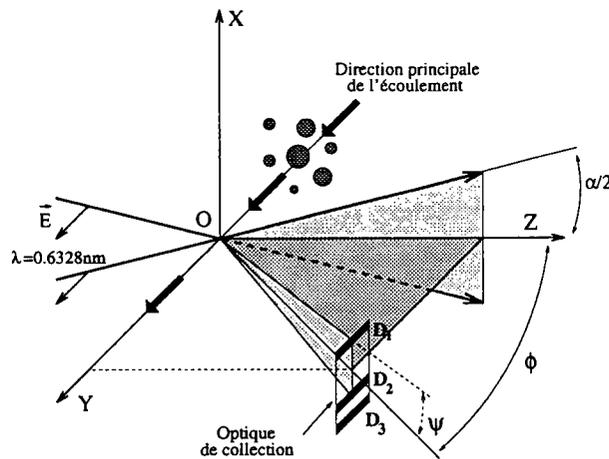


FIG. 1 - Géométrie de la technique Phase-Doppler sous sa configuration "Double Bouffées".  $\alpha$ : angle entre les faisceaux,  $\phi$ : angle de diffusion,  $\Psi$ : angle d'élévation.

Lorsqu'une particule traverse le volume de mesure créé par les deux faisceaux laser, elle diffuse un signal lumineux (fig. 1). Ce signal, est collecté par deux ou trois détecteurs qui enregistrent le même signal décalé dans le temps. Ce décalage en temps ou déphasage est relié à l'écart angulaire entre les détecteurs, à l'indice et à la taille de la particule.

La technique des "Doubles Bouffées" (fig. 2) qui utilise un volume de mesure réduit, a été développée à l'origine, pour obtenir une information supplémentaire sur la particule: son indice de réfraction [1] [2]. Comme l'indique la figure 2, la particule diffuse successivement par réflexion puis par réfraction. La première bouffée est donc associée à la réflexion et la seconde à

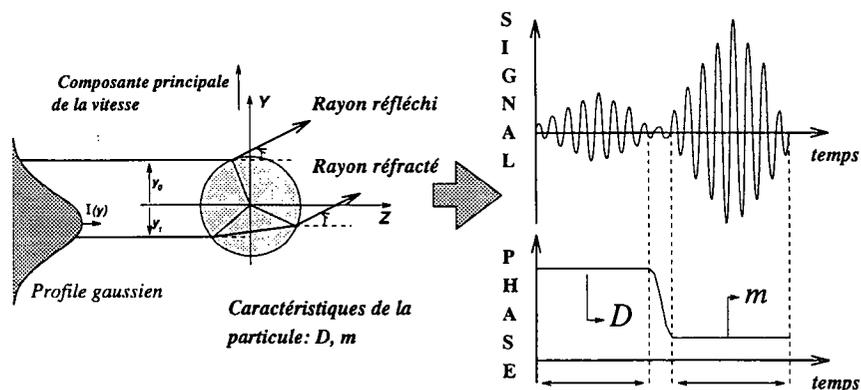


FIG. 2 - Principe de la technique "Double Bouffée"

la réfraction. A chacune de ces deux bouffées correspond une phase. L'information sur la taille de la particule est extraite de la partie réfléchie du signal et l'information sur son indice est extraite de la partie réfractée du signal. En fait si l'on connaît l'indice de la particule, on a deux mesures de tailles: la première en utilisant la réflexion et donc une information externe à la particule et la deuxième en utilisant la réfraction et donc une information interne à la particule.

### 3 Simulations numériques

#### 3.1 Paramètres des simulations

Le code développé permet de calculer la visibilité, l'intensité, l'évolution de phase du signal en fonction des caractéristiques optiques de la particule et de la géométrie du phase Doppler. Ce code est basé sur la Théorie de Lorenz Mie Généralisée [3] et permet l'étude de particules homogènes et multicouches [4]. Il n'existe pas de limites numériques en taille pour les particules homogènes et le domaine en taille des particules bicouches est  $[0.1 - 500] \mu m$ . Dans cette communication, nous nous sommes intéressés à l'évolution de la phase du signal et à son intensité (donnée par le produit piédestal visibilité) au cours du déplacement de la particule dans le volume de mesure suivant l'axe (Y).

Les faisceaux laser sont caractérisés dans ce code, par les paramètres suivants: leur intensité, leur longueur d'onde ( $\lambda$ ), la taille du col ("beam waist",  $2\omega_0$ ), leur polarisation. La polarisation est définie par convention, parallèle (resp. perpendiculaire) lorsqu'elle est parallèle (resp. perpendiculaire) au plan d'observation. La géométrie de l'optique de collection (fig. 1) est caractérisée par la position des détecteurs définie par  $\phi$  (angle de diffusion ou angle hors axe) et  $\psi$  (angle entre les détecteurs), leur forme (rectangulaire ou circulaire), leur taille définie par les demi-angles  $\delta\psi$  et  $\delta\phi$ , la taille du volume de mesure et par l'optique utilisée.

#### 3.2 Particules étudiées

Dans le but d'aller vers le diagnostic de particules bicouches, nous avons choisi comme modèle, les particules constituées d'un coeur absorbant et d'un manteau transparent (fig 3). Les particules étudiées ont un coeur de carbone ( $m = 1.59 - 0.66i$ ) et un manteau d'eau ( $m = 1.33$ ) ou un manteau de décane ( $m = 1.41$ ). Nous avons fait varier la taille extérieure des particules ( $d_{ext} = 30, 60, 120 \mu m$ ) ainsi que la taille de leur coeur. Le paramètre  $q$  a été introduit comme étant le rapport du diamètre du coeur sur le diamètre extérieur de la particule. Les valeurs de  $q$ : 0, 0.1, 0.3, 0.5, 0.7, 0.9, 1, ont été systématiquement étudiées.

### 4 Résultats obtenus

Après de nombreuses simulations [5], nous avons choisi pour des raisons de dynamique en intensité et de lisibilité des évolutions de phase, d'étudier la diffusion des particules dans la direction  $\phi = 60^\circ$ , éclairées par des faisceaux laser polarisés parallèlement.

Seuls les résultats obtenus pour des particules de diamètre 60 et 120  $\mu m$  sont présentés. En effet, pour des particules dont le diamètre est inférieur à environ trois fois la taille du volume de mesure, la séparation des phénomènes de diffusion est insuffisante pour permettre le diagnostic du coeur. Nous n'avons pas étudié de particules dont la taille est supérieure à 120  $\mu m$  en raison

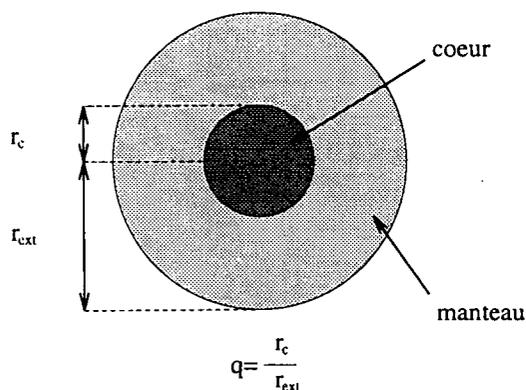


FIG. 3 - Modèle des particules étudiées

composant	reflexion	refraction
eau (m=1.33)	1.276	1.437
decane (m=1.41)	1.276	1.407

FIG. 4 - Coefficients de conversion phase-diamètre [ $^{\circ}/\mu m$ ].  $\lambda = 0.6328 \mu m$ ,  $\phi = 60^{\circ}$

de temps de calcul élevé mais il ne semble pas y avoir de limites, excepté la complexification de l'évolution de phase et d'intensité.

Les coefficients de conversion phase-diamètre calculés par l'optique géométrique, pour la géométrie choisie (fig. 4), permettent de passer de la phase du signal au diamètre de la particule ou au diamètre du coeur.

#### 4.1 Particules bicouches carbone-eau de diamètre $60 \mu m$

La figure 5 présente les évolutions d'intensité et de phase obtenues pour des particules de diamètre  $60 \mu m$  contenant des coeurs de différentes tailles. On observe pour le cas  $q = 0$ , la présence de deux bouffées d'intensité dues à la réflexion et à la réfraction auxquelles correspondent deux plateaux de phase. Pour le cas  $q = 0.3$ , on peut discerner quatre bouffées auxquelles on peut associer quatre plateaux de phase. L'utilisation de ces plateaux va nous permettre de déterminer la taille du coeur et la taille extérieure de la particule. L'écriture d'un code de "ray-tracing", basé sur l'optique géométrique, nous a permis de tracer le parcours des rayons lumineux dans la particule à coeur et de justifier l'emploi des coefficients de conversion phase-diamètre et des plateaux de phase [5].

La lumière réfléchie nous permet donc d'obtenir la **taille du coeur**. Pour cela, on calcule le coefficient de conversion phase-diamètre pour la réflexion (fig. 4) et on utilise la phase des plateaux (B)<sup>1</sup>.

Lorsqu'il n'y a pas de coeur (particule homogène), cette démarche nous permet d'obtenir la taille extérieure de la particule car seul le manteau contribue à la diffusion de la lumière par réflexion. Les résultats obtenus permettent de déterminer le diamètre du coeur avec une erreur inférieure à 10% si l'on ne tient pas compte du calcul du cas  $q = 0.1$  où l'erreur est de 30%.

La lumière réfractée nous permet d'obtenir la **taille extérieure** de la particule. Nous calculons le coefficient de conversion pour la réfraction et nous utilisons la phase des plateaux (D). Cette démarche permet de déterminer la taille extérieure des gouttes d'eau mais ne permet pas de déterminer celle des particules de carbone car celles-ci sont trop absorbantes. L'erreur sur le calcul du diamètre extérieur de la particule est inférieure à 2% sauf pour le cas  $q = 0.9$  où elle est de 3%. Le calcul de ce diamètre extérieur est plus délicat car le plateau de phase ne prête pas à une lecture aisée. La phase choisie est celle correspondant au début du

<sup>1</sup>pour des raisons de lisibilité, les valeurs négatives du déphasage sont tracées en ajoutant  $360^{\circ}$ .

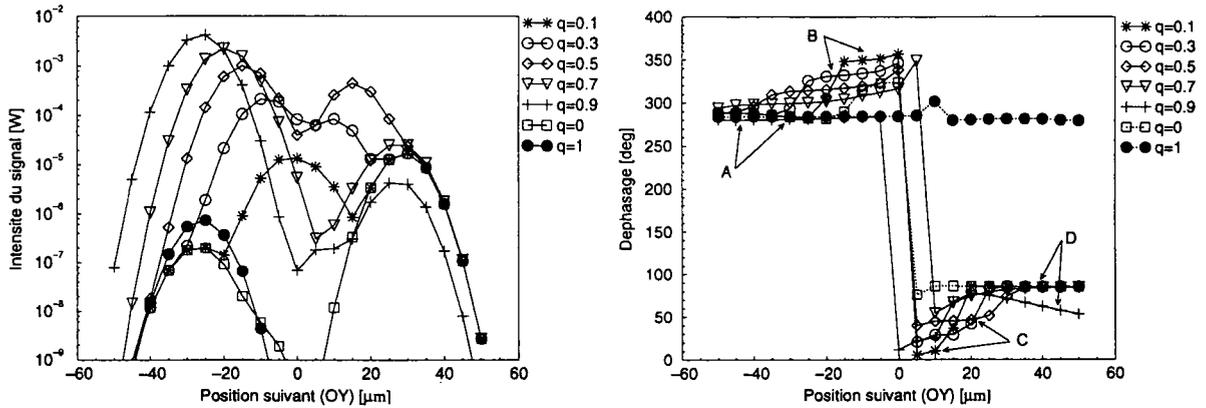


FIG. 5 - Signaux simulés pour une particule de  $60 \mu\text{m}$  avec un coeur de carbone et un manteau d'eau, éclairée par un faisceau laser polarisé parallèlement.  $\phi = 60^\circ$ ;  $\lambda = 0.6328 \mu\text{m}$ ;  $2\omega_0 = 20 \mu\text{m}$ .

valeurs théoriques		valeurs calculées			
q	$d_c [\mu\text{m}]$	phase coeur $[\circ]$	phase manteau $[\circ]$	$d_c [\mu\text{m}]$	$d_{ext} [\mu\text{m}]$
0.1	6	$360 - 350 = 10$	85	7.8	59.1
0.3	18	$360 - 335 = 25$	85	19.6	59.1
0.5	30	$360 - 318 = 42$	85	32.9	59.1
0.7	42	$360 - 300 = 60$	85	43.1	59.1
0.9	54	$360 - 282 = 78$	77?	61.1	53.6?
valeurs théoriques		phase refl.	phase refr.	taille extérieure	
0	0	$360 - 282 = 78$	85	refl: 61.1	refr: 59.8
1	0	$360 - 282 = 78$	absorption totale	refl: 61.1	refr: non

TAB. 1 - Résultats pour une particule de  $60 \mu\text{m}$  avec un coeur de carbone et un manteau d'eau, éclairée par un faisceau laser polarisé parallèlement.  $\phi = 60^\circ$ ;  $\lambda = 0.6328 \mu\text{m}$ ;  $2\omega_0 = 20 \mu\text{m}$ .

plateau (D).

Les signaux des particules à coeur ont été traités comme les signaux de deux particules distinctes. En effet la taille du coeur (resp. du manteau) est obtenue indépendamment de la présence du manteau (resp. du coeur). Cela est rendu possible par le fait que l'intensité diffusée par réflexion sur le coeur est beaucoup plus élevée que celle diffusée par réflexion sur le manteau. De plus la lumière réfractée ne voit pas toujours la présence du coeur (fig. 7).

Les calculs montrent que les informations sur la taille du coeur et sur la taille du manteau sont contenues dans les signaux. Toutefois, la dynamique des signaux obtenus demeure un problème. En effet, pour obtenir simultanément la taille du coeur et du manteau d'une particule de 60  $\mu\text{m}$ , il faut pouvoir détecter les plateaux de phase (B) et (D). Dans le cas étudié ici, la gamme d'intensité, si l'on considère les particules homogènes et à coeur, est  $[5e-3 \text{ W}, 2e-7 \text{ W}]$ , soit une dynamique de 25000 qui est une dynamique très élevée pour la technique phase Doppler.

#### 4.2 Particules bicouches carbone-décane de diamètre 120 $\mu\text{m}$

Dans le but d'étudier le rôle de l'indice du manteau, nous avons calculé les signaux que produiraient une particule dont le manteau est composé de décane ( $m=1.41$ ) et le coeur de carbone. Les des tailles du coeur et du manteau sont obtenues de la même façon que précédemment (tab. 2).

La précision de ces résultats est plus irrégulière que dans le cas des particules avec un manteau d'eau et atteint 30% pour le calcul du coeur ( $q = 0.3$ ). En revanche, la précision est plus fine en ce qui concerne le calcul de la taille du manteau: inférieure à 6% quelque soit le  $q$  étudié. Elle est même inférieure à 2.5% pour  $q \leq 0.5$ .

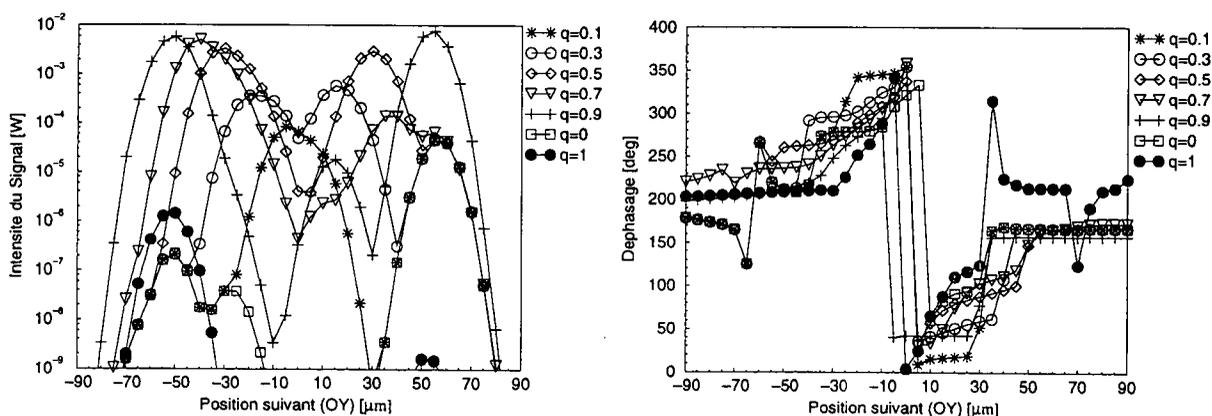


FIG. 6 - Signaux simulés pour une particule de 120  $\mu\text{m}$  avec un coeur de carbone et un manteau de décane, éclairée par un faisceau laser polarisé parallèlement.  $\phi = 60^\circ$ ;  $\lambda = 0.6328 \mu\text{m}$ ;  $2\omega_0 = 20 \mu\text{m}$ .

#### 4.3 Influence du coeur

Pour les particules d'eau présentées, on remarque que pour le cas  $q = 0.9$ , la phase lue sur les graphes pour déterminer la taille du manteau n'est pas la même que pour les autres valeurs de  $q$ . Une explication peut être donnée à l'aide de la figure 7. Un rayon lumineux qui traverse

valeurs théoriques		valeurs calculées			
q	$d_c$ [ $\mu m$ ]	phase coeur [ $^\circ$ ]	phase manteau [ $^\circ$ ]	$d_c$ [ $\mu m$ ]	$d_{ext}$ [ $\mu m$ ]
0.1	12	$360 - 345 = 15$	165	11.8	117
0.3	36	$360 - 305 = 55$	165	47	117
0.5	60	$360 - 270 = 90$	165	74.5	117
0.7	84	$360 - 240 = 120$	170	94	120.8
0.9	108	$360 - 216 = 144$	160	117.6	113.7
valeurs théoriques		phase refl.	phase refr.	taille extérieure	
0	0	$360 - 207 = 153$	165	refl: 119.9	refr: 117
1	0	$360 - 207 = 153$	absorption totale	refl: 119.9	refr: non

TAB. 2 - Résultats pour une particule de  $120 \mu m$  avec un coeur de carbone et un manteau de décane éclairée par un faisceau laser polarisé parallèlement.  $\phi = 60^\circ$ ;  $\lambda = 0.6328 \mu m$ ;  $2\omega_0 = 20 \mu m$ .

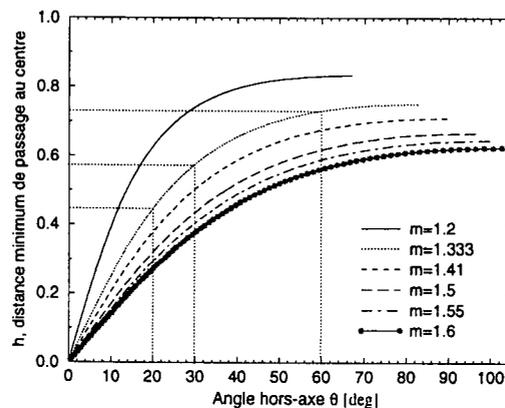


FIG. 7 - Distance (addimensionnée par le rayon de la particule) du rayon réfracté au centre d'une particule homogène. Calcul effectué 'a l'aide de l'optique géométrique.

une goutte d'eau ( $m = 1.33$ ) de rayon  $R$  et qui sort dans la direction  $\phi = 60^\circ$ , ne "voit" pas un coeur inférieur à  $0.72R$ . Dans les calculs obtenus, on peut donc penser que le coeur n'influence pas la réfraction dans le manteau pour les cas  $q \leq 0.7$ . On obtient donc une phase identique pour ces cas mais différente pour  $q = 0.9$ . Le phénomène est donc perturbé par la présence du coeur. Pour les particules de décane, l'optique géométrique (fig. 7) prévoit que la taille du coeur minimale détectable est  $q = 0.68$ . On retrouve cette taille d'après les calculs TLMG. En effet la phase lue pour le manteau donne  $d_{ext} = 120.8 \mu m$  tant que  $q \leq 0.5$  et devient  $124.2 \mu m$  pour  $q = 0.7$ .

## 5 Conclusion

Les calculs effectués à l'aide de la TLMG, ont montré que les signaux diffusés par une particule à coeur et collectés par un système phase Doppler sous sa configuration "Double Bouffée", contiennent une information sur la taille du coeur ainsi que sur la taille extérieure de la particule. Toutefois, les signaux calculés présentent une forte dynamique en intensité et sont complexes à analyser. Ce code permet aussi le calcul de diagrammes de diffusion de la lumière par des particules multicouches.

## Références

- [1] F. Onofri, G. Gréhan, G. Gouesbet, T.-H. Xu, G. Brenn, and C. Tropea. Phase-Doppler Anemometry with Dual Burst Technique for particle refractive index measurements. In *7 th Int. Symposium on Applications of Laser Techniques to Fluid Mechanics, Lisbon, July 11-14, 1994*. paper 21.4.
- [2] F. Onofri. *Prise en compte des dimensions finies des faisceaux d'éclairage en granulométrie optique: Anémométrie Phase Doppler, Applications aux Diagnostics des Milieux Diphasiques*. PhD thesis, Université de Rouen, URA CNRS 230 (FRANCE), 1995.
- [3] G. Gouesbet, G. Gréhan, and B. Maheu. In *Combustion measurements edited by N. Chigier*, chapter 10, Generalized Lorenz-Mie theory and applications to optical sizing, pages 339-384. Hemisphere Publishing Corporation, 1991.
- [4] F. Onofri, D. Blondel, G. Gréhan, and G. Gouesbet. On the Optical Diagnosis and Sizing of Coated and Multilayered Particles with Phase Doppler Anemometry. submitted to Part. Part. Syst. Charat., 1995.
- [5] D. Blondel. Détection de particules sphériques inhomogènes par anémométrie phase doppler: particules à coeur. Rapport de D.E.A, LESP URA CNRS 230 Université de Rouen (FRANCE), 1995.

# Réfractométrie d'Arc-en-ciel: Mesure de la taille et de l'indice de sphères et de cylindres multicouches.

J.P Pagès, F. Corbin, F. Onofri, A. Garo, G. Gouesbet et G. Gréhan  
Laboratoire d'Energétique des Systèmes et Procédés,  
URA CNRS n°230, CORIA, INSA de Rouen B. P. 08,  
76130 Mont-Saint-Aignan, FRANCE  
Tel: (33) 35 52 83 87 , Fax: (33) 35 52 83 90

December 4, 1995

## Abstract

L'Arc-en-ciel monochromatique dépend de la taille et de l'indice des particules diffusantes. Ce phénomène est à la base d'une technique de mesure, la réfractométrie d'Arc-en-ciel, dont le but est de mesurer la taille et l'indice (c'est à dire la température ou la composition) des gouttes dans un écoulement. Son extension à la mesure de corps cylindriques et sa sensibilité à la présence d'un gradient d'indice à l'intérieur de la particule diffusante sont discutées.

## 1 Introduction

Dans de nombreux domaines fondamentaux et/ou appliqués, le chercheur se trouve confronté à l'étude de particules constituées du mélange de différents composés ayant des propriétés physiques différentes, c'est à dire une évolution complexe dans le temps. Le suivi in situ de l'évolution de tels nuages est un défi.

L'indice de réfraction d'un corps dépend de sa composition et de sa température. Les propriétés de la lumière diffusée aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel dépendent fortement de l'indice de réfraction. Le but de cette présentation est de décrire les potentialités de cette technique pour suivre l'évolution de la composition de nuages de gouttes non-homogènes.

Cet article s'organise comme suit:

- La section 2 rappelle les caractéristiques de la lumière diffusée aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel pour une sphère et un cylindre homogènes.
- La section 3 décrit la diffusion de la lumière aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel pour une particule multicouches.
- La section 4 introduit une réalisation expérimentale et présente quelques résultats préliminaires.
- La section 5 conclut le travail présenté et introduit les perspectives de cette approche.

## 2 L'arc-en-ciel Monochromatique

### 2.1 Principe de base

L'histoire de la compréhension de l'arc-en-ciel, un des phénomènes naturel le plus observé, suit les progrès de la physique, et de nombreux articles théoriques ont été dédiés à ce sujet (voir [1, 2, 3, 4] entre autres).

De nos jours, à partir de la lumière diffusée à l'angle d'arc-en-ciel, des chercheurs dans le domaine de la combustion des brouillards tentent d'extraire la taille et la température des gouttes de combustible [5, 6, 7, 9, 10]. La figure 1 montre la distribution angulaire de la lumière diffusée aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel pour une goutte d'eau homogène ( $m=1.33+0.0i$ ), d'un diamètre de 250  $\mu\text{m}$ , éclairée avec une longueur d'onde de 0.5145  $\mu\text{m}$ .

La lumière diffusée aux alentours de 128° correspond à l'arc-en-ciel de deuxième ordre (les rayons subissent 2 réflexions dans la goutte avant de la quitter) entre 132° et 137° se situe la bande noire d'Alexander, l'arc-en-ciel principal existe pour des angles de diffusion supérieurs à 138°.

En suivant l'approche développée par van Beeck et Reithmuller [9], l'indice de réfraction de la goutte (qui dépend de sa composition et de sa température) est extrait de la position angulaire du premier maximum de l'arc-en-ciel

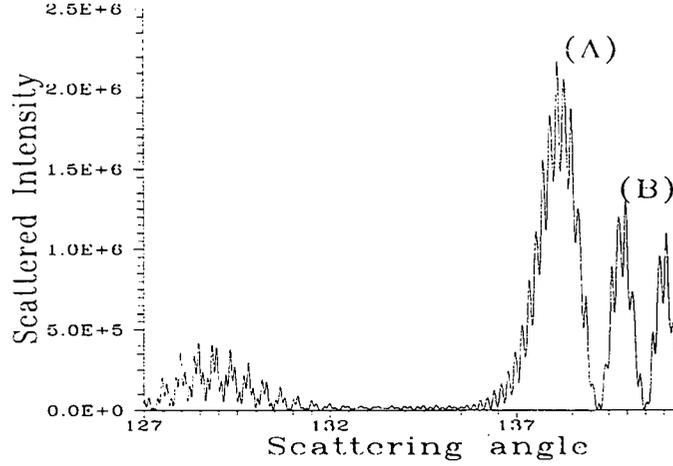


Figure 1: Diagramme de diffusion aux alentours de l'angle d'Arc-en-ciel pour une goutte d'eau d'un diamètre de  $250 \mu\text{m}$ , éclairée à  $0.5145 \mu\text{m}$

principal (A) tandis que la taille de la particule est extraite de la différence angulaire entre les deux premiers pics de l'arc-en-ciel principal (A)-(B). La position de l'arc-en-ciel et le diamètre  $d$  de la particule sont donnés par:

$$\theta = -2 \left( \sqrt{\frac{1}{3}m^2 - \frac{1}{3}} \right) + 4 * \arccos \left( \frac{\cos\left(\frac{m^2}{3} - \frac{1}{3}\right)^{1/2}}{m} \right) \quad (1)$$

$$d = \frac{\lambda}{4} \left( \frac{\cos(\rho_{rg})}{\sin^3(\rho_{rg})} \right)^{1/2} \left( \frac{\alpha_i - \alpha_j}{\theta_i - \theta_j} \right)^{(3/2)} \quad (2)$$

où les  $\alpha_i$  sont les angles de déviation normalisés, correspondant aux maxima de l'intégrale d'Airy [11, 9],  $\theta_i$  la position angulaire des pics, exprimée en radian,  $\lambda$  est la longueur d'onde du flux incident,  $\rho_{rg}$  s'exprime comme:

$$\sin \rho_{rg} = \left( \frac{m^2 - 1}{3} \right)^{(1/2)} \quad (3)$$

où  $m$  est le rapport des parties réelles de l'indice complexe de la particule et du milieu extérieur.

La Figure 2 représente l'évolution de la position de l'arc-en-ciel principal en fonction de l'indice de la particule diffusante. Cette loi d'évolution est biunivoque et dépend fortement de l'indice.

En appliquant la procédure précédemment décrite au fichier de données correspondant à la figure 1, l'indice de réfraction est estimé être de 1.3360, et le diamètre de la particule à  $224 \mu\text{m}$ .

Le désaccord sur la valeur de l'indice est dû au fait que la position de l'arc-en-ciel prédite par la formule 1 n'est valable que dans la limite d'une particule dont le diamètre tend vers l'infini. Lorsque la dimension de la particule n'est pas très grande devant la longueur d'onde, l'arc-en-ciel glisse vers les grands angles. Ce glissement de l'arc-en-ciel est prédit par la théorie d'Airy comme valant:

$$\theta - \theta_0 = \frac{z\lambda}{4} \left( \frac{h}{3\lambda d^2} \right)^{1/3} \quad (4)$$

où  $h$  est défini comme  $h = \frac{3}{4\sin^2 \rho_{rg} \tan \rho_{rg}}$ ,  $z$  est le paramètre de l'intégrale d'arc-en-ciel  $\int_0^\infty \cos 1/2\Pi(zt - t^3)dt$ .

La figure 3 représente le glissement du maximum d'intensité diffusée aux alentours de l'angle d'arc en ciel en fonction du diamètre de la particule. L'indice de réfraction est de 1.33 ou de 1.50. En réinterprétant la figure 1, l'indice de réfraction mesuré est de 1.3305.

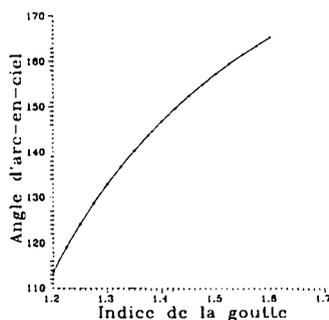


Figure 2: Evolution de l'angle d'arc-en-ciel en fonction de l'indice de la particule, prédiction basée sur l'optique géométrique

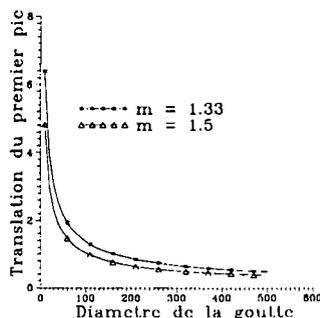


Figure 3: Translation du premier pic de l'Arc-en-ciel en fonction du diamètre de la particule. Prédiction basée sur la théorie d'Airy

## 2.2 Particules cylindriques

La figure 4 présente le diagramme de diffusion aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel pour un cylindre d'eau de  $250 \mu\text{m}$  diamètre éclairé en incidence normale. Cette figure est à comparer avec la figure 1. De cette comparaison nous concluons que l'interprétation des diagrammes de diffusion aux alentours de l'angle d'arc en ciel est principalement identique pour la sphère et le cylindre.

La figure 5 présente l'évolution du diagramme de diffusion aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel, avec comme paramètre l'angle d'incidence du faisceau sur le cylindre. Les caractéristiques de la lumière diffusée, à l'angle d'arc-en-ciel, restent identiques lorsque l'angle d'incidence du faisceau est dans la gamme  $90 \pm 2^\circ$ .

Les résultats issus de nos expériences avec des cylindres s'appliqueront directement aux sphères.

## 3 Particules multicouches

Cependant, la sensibilité de l'arc-en-ciel, quand les particules étudiées ne sont pas parfaitement sphériques et que l'indice de réfraction n'est pas constant dans la particule, doit être étudiée.

Van Beeck et Reithmuller [10] ont proposé de détecter la nonsphéricité des gouttes en comparant les dimensions obtenues à partir des franges d'Airy (due aux rayons réfractés) et à partir de la fréquence des oscillations superposées sur la structure d'Airy (due aux rayons réfléchis).

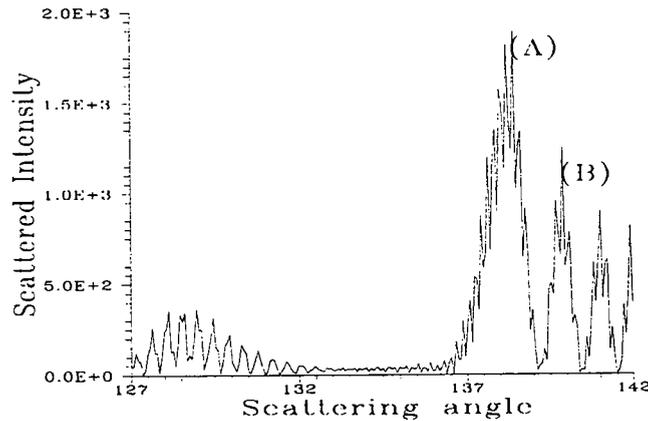


Figure 4: Diagramme de diffusion aux alentours de l'angle d'Arc-en-ciel pour un cylindre d'eau d'un diamètre de  $250 \mu\text{m}$ , éclairé à  $0.5145 \mu\text{m}$

La sensibilité à une évolution radiale de l'indice de réfraction a été étudiée par Roth et al [12] en utilisant l'optique géométrique, laquelle ne peut pas parfaitement décrire l'arc-en-ciel (voir van de Hulst, page 240-249 [11]).

Grâce à un nouvel algorithme de calcul pour des sphères multicouches [13], une réponse exacte à ce problème peut être donnée.

La série de figures 6 présente la distribution de la lumière diffusée aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel pour une goutte de  $250 \mu\text{m}$  de diamètre avec une variation linéaire de son indice de réfraction. Celui-ci est de 1.33 au centre de la particule et de 1.36 à la surface. La particule est discrétisée en 2, 4, 8, 16, 32, 64 et 128 couches d'égales épaisseurs. La longueur d'onde incidente est de  $0.5145 \mu\text{m}$ .

Quelques particularités de la lumière diffusée à l'angle d'arc-en-ciel par une sphère multicouches doivent être soulignées:

- de la lumière est diffusée dans la bande noire d'Alexander (voir figs (6-a)-(6-d))
- les pics secondaires ne sont pas d'intensité régulièrement décroissante comme pour l'arc-en-ciel d'une particule homogène, excepté pour la Fig 6-f.
- Les diagrammes de diffusion sont identiques pour les particules discrétisées par 64 et 128 couches (Fig 6-f)

En suivant la procédure de van Beeck et Reithmüller, précédemment introduite, les fichiers de valeurs des Figures 6 sont filtrés pour supprimer les oscillations hautes fréquences. Le maximum de chaque pic est alors facilement déterminé. La colonne (b) de la Table (1) compile la position angulaire du pic le plus puissant pour chaque cas. La position de ce pic peut être interprétée comme correspondant à l'arc-en-ciel géométrique. La colonne (c) compile la valeur de l'indice de réfraction correspondant à la position du pic de la colonne précédente obtenu à partir de l'équation 1. Ensuite, de la séparation angulaire entre le pic le plus puissant et le maximum local suivant, le diamètre de la particule est calculé en appliquant la formule 2 (colonne (d)). La colonne (e) compile l'angle de glissement de l'arc-en-ciel calculé par la théorie d'Airy (formule (4)). Colonne (f) la valeur de l'indice de réfraction obtenue en tenant compte de l'angle de glissement de l'arc-en-ciel est donné. Finalement, la colonne (g) donne la valeur du diamètre de la particule prédite par la relation 2, pour la valeur de l'indice de réfraction donnée colonne (f).

Il est important de noter que pour un tel gradient linéaire, la valeur de l'indice "mesuré" colonne (f) correspond à celle d'un point localisé près du centre de la particule. Ainsi, pour la particule discrétisée en 128 couches qui représente le mieux un gradient continu, à l'indice de 1.3364 correspond un point situé à  $25 \mu\text{m}$  du centre. Si ce gradient d'indice est créé par gradient de température, la technique de l'arc-en-ciel donne accès à une température fortement dépendante de la valeur du coeur tandis que les techniques optiques pyrométriques, basées sur l'émission, donnent une température de surface.

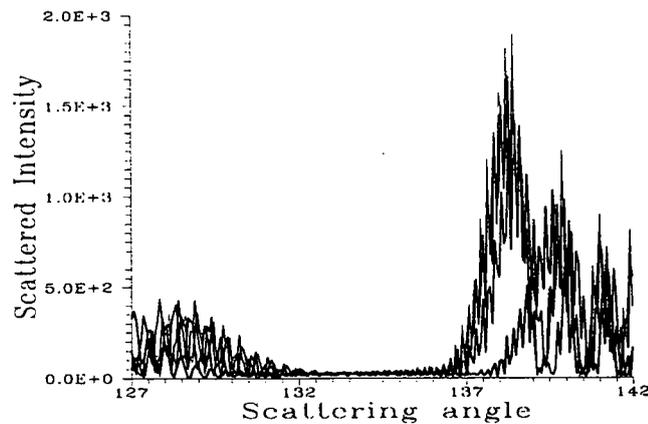


Figure 5: Evolution du diagramme de diffusion aux alentours de l'angle d'Arc-en-ciel pour un cylindre d'eau d'un diamètre de  $250 \mu\text{m}$ , éclairée à  $0.5145 \mu\text{m}$ . Le paramètre est l'angle d'incidence du faisceau sur le cylindre ( $90, 89, 88, 85$  et  $80^\circ$ )

(a) Particule	(b) Position du pic	(c) indice de réfraction	(d) Diamètre déduit	(e) glissement de l'arc-en-ciel	(f) Indice de réfraction	(g) diamètre
eau	138.36	1.3360	224 $\mu\text{m}$	0.79	1.3305	227 $\mu\text{m}$
alcool	142.44	1.3656	260 $\mu\text{m}$	0.68	1.3605	263 $\mu\text{m}$
2-couches	142.63	1.3670	327 $\mu\text{m}$	0.58	1.3628	330 $\mu\text{m}$
4-couches	139.85	1.3465	280 $\mu\text{m}$	0.67	1.3417	283 $\mu\text{m}$
8-couches	140.63	1.3522	415 $\mu\text{m}$	0.51	1.3485	419 $\mu\text{m}$
16-couches	138.02	1.3337	245 $\mu\text{m}$	0.75	1.3285	248 $\mu\text{m}$
32-couches	139.02	1.3406	122 $\mu\text{m}$	1.18	1.3324	124 $\mu\text{m}$
64-couches	139.07	1.3410	268 $\mu\text{m}$	0.69	1.3361	271 $\mu\text{m}$
128-couches	139.10	1.3412	276 $\mu\text{m}$	0.68	1.3364	280 $\mu\text{m}$

Table 1: Simulation de l'importance du nombre de couches de la particule dans la technique de réfractométrie d'arc-en-ciel sur la mesure de l'indice moyen et du diamètre de la particule

## 4 Résultats expérimentaux

Cette section présente le montage expérimental réalisé à Rouen, ainsi que quelques résultats illustratifs.

### 4.1 Schéma expérimental

La figure 7 décrit le montage expérimental. Un faisceau laser polarisé (He-Ne  $\lambda = 0.6328 \mu\text{m}$ ) est incident sur un corps cylindrique. Le cylindre diffusant se situe au foyer objet d'une lentille (L1), de focal 150 mm. Derrière la lentille, la lumière est détectée par une caméra CCD linéaire (1024 éléments de 7 par  $15 \mu\text{m}$ ). Le signal est enregistré, puis exploité par un PC.

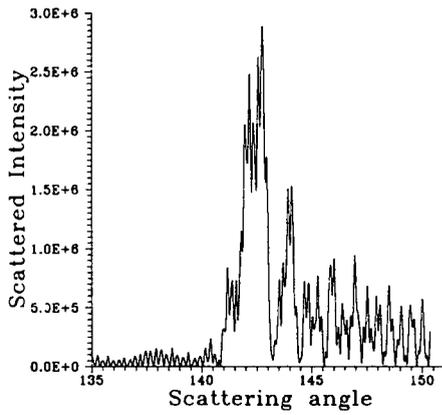
### 4.2 Exemples de résultats

La figure 8 est l'enregistrement expérimental de la distribution de la lumière diffusée aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel, lorsque le faisceau laser est incident sur un jet d'eau issu d'une seringue de  $600 \mu\text{m}$  de diamètre. Les résultats obtenus sont en accord avec nos prédictions (voir section 2).

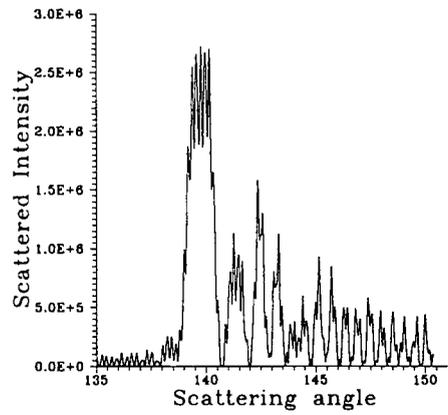
## 5 Conclusion

L'identité de la distribution de la lumière diffusée aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel pour une sphère ou un cylindre a été montrée.

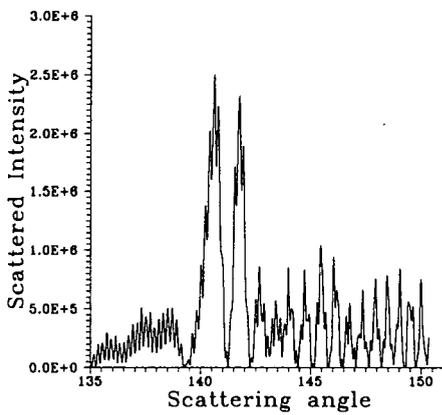
L'étude de la sensibilité de l'arc-en-ciel à un gradient d'indice a été étudié rigoureusement. Ce travail a permis de démontrer qu'une mesure d'indice par réfractométrie d'arc-en-ciel est fortement pondérée par le coeur de la particule



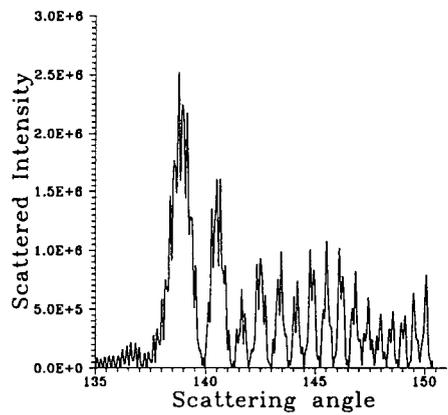
(a) Particule à 2 couches



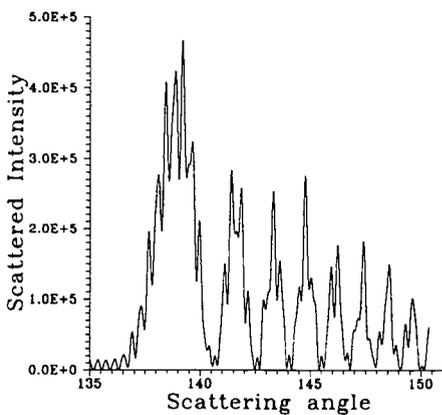
(b) Particule à 4 couches



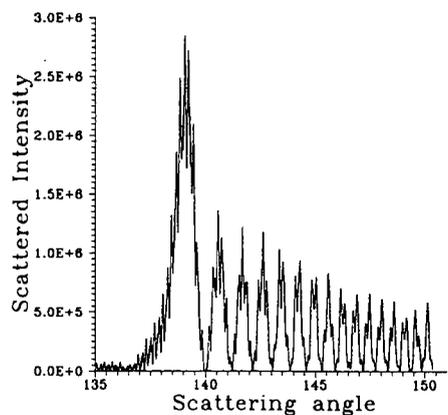
(c) Particule à 8 couches



(d) Particule à 16 couches



(e) Particule à 32 couches



(f) Particule à 64 et 128 couches

Figure 6: Evolution de l'intensité diffusée aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel pour une particule de  $250\mu$  de diamètre avec un indice de réfraction évoluant linéairement de 1.33 au centre à 1.36 à la surface. La goutte est discrétisée en  $n$  couches d'égalles épaisseurs.

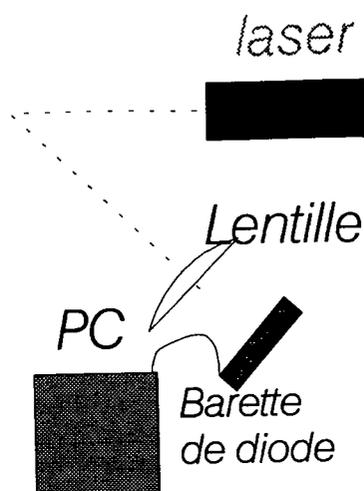


Figure 7: Schéma de la réalisation expérimentale.

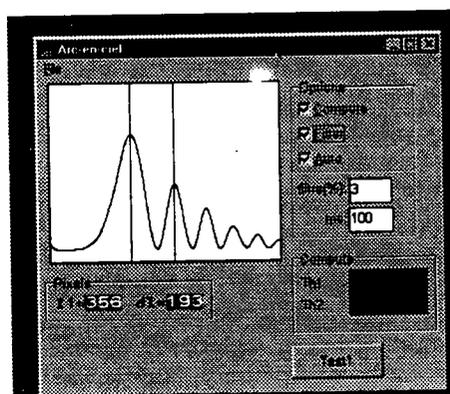


Figure 8: Exemple d'un enregistrement expérimental

diffusante.

Un montage expérimental a été réalisé, dont le coeur est une barette CCD linéaire. Ce montage a permis la mesure du diamètre et de l'indice de cylindre de verre solide ou de jet liquide (eau, alcool). Actuellement, l'effort porte sur la mise au point du chauffage de ces corps cylindriques afin de créer des gradients concentriques d'indice.

## 6 Remerciements

Ce travail est soutenu par l'action incitative dans le cadre du programme DSPT.8.

## References

- [1] H. M. Nussenzveig, High-frequency scattering by a transparent sphere II. Theory of the rainbow and the glory *J. Math. Phys.* 10, 125, 1969
- [2] V. Khare and H. M. Nussenzveig Theory of the rainbow *Phys. Rev. Lett.* 33, 976, 1974

- [3] J. A. Lock Theory of the observations made of high-order rainbows from a single water droplet *Applied Optics*, 26, 24, 5291-5298, 1987
- [4] H.M. Nussenzveig, Diffraction effects in semiclassical scattering, *Cambridge University Press*, 1992
- [5] N. Roth, K. Anders, and A. Frohn *Simultaneous measurement of temperature and size of droplets in micrometer range* J. of Laser Appl., 2, 1, 1991
- [6] N. Roth, K. Anders, and A. Frohn *Simultaneous determination of refractive index and droplet size using Mie theory* In Sixth International Symposium on Application of Laser Techniques to Fluid Mechanics, Lisbon (PORTUGAL), July 20-23, page 15.5, 1992
- [7] S.V. Sankar, K.M. Ibrahim, D.H. Buermann, M.J. Fidrich, and W.D. Bachalo *An integrated phase Doppler/rainbow refractometer system for simultaneous measurement of droplet size, velocity, and refractive index* In 3 rd Int. Cong. on Optical Particle Sizing, Yokohama (Japan), pp. 275-284, 1993
- [8] M. Schneider, E.D. Hirleman, H. Saleheen, D.Q. Chowdhury, and S.C. Hill *Rainbows and radially-inhomogeneous droplets* In 3 rd Int. Cong. on Optical Particle Sizing, Yokohama (Japan), pp. 323-326, 1993
- [9] J.P.A.J. van Beeck, and M.L. Reithmuller *Non intrusive measurements of temperature and size of raindrops* *Applied Optics*, 34, pp. 1633-1639, 1995
- [10] J.P.A.J. van Beeck, and M.L. Reithmuller *Congres de Poitiers*
- [11] H.C. van de Hulst *Light scattering by small particle* Dover Publication, N.Y., 1957, 1981
- [12] K. Anders, N. Roth, and A. Frohn *Theoretical and experimental studies of the influence of internal temperature gradients on rainbow refractometry* PARTEC95, Nuremberg (GERMANY), 419-428, 1995
- [13] Z.S. Wu, L.X. Guo, K.F. Ren, and G. Gréhan *Electromagnetic scattering by a multilayered sphere: a recursive algorithm with a large computational domain* *Proposé à Appl. Opt.*

11èmes JOURNEES D'ETUDES SUR LES AEROSOLS  
(COFERA, 5-6 décembre 1995, Paris)

\* \* \*

**ETUDE D'UN DISPOSITIF DE COMPTAGE  
EN CONTINU DES AEROSOLS FLUORESCENTS**

**C.PREVOST\*, A.SEIGNEUR\*\*,J.VENDEL\***

\*Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire  
Département de Protection de l'Environnement et des Installations  
IPSN/CEA, 91191 GIF-SUR-YVETTE Cédex, France

\*\*LETI (Direction des Techniques Avancées)  
Département d'Electronique et d'Instrumentation  
CEA, 91191 GIF-SUR-YVETTE Cédex, France

**RESUME**

Les compteurs optiques de particules disponibles aujourd'hui sont basés sur la diffusion de lumière par ces particules; ils ne permettent donc leur différenciation que par la taille. Les techniques de traçage particulaire, notamment dans le domaine de la caractérisation des ventilations, requièrent des dispositifs de détection plus spécifiques.

La propriété de fluorescence dont on peut doter un aérosol liquide est mise en oeuvre dans une nouvelle technique permettant le comptage en temps réel et en continu de tels aérosols.

Les particules fluorescentes sont acheminées vers une chambre de mesure via une buse de prélèvement spécialement dimensionnée; l'utilisation d'un débit d'air de gainage concentrique à l'écoulement confine l'aérosol prélevé à l'intérieur d'un jet en sortie de buse.

L'interception de ce jet avec un faisceau LASER permet la détection et la caractérisation de l'aérosol, particule par particule.

Les signaux optiques sont dus à l'émission de fluorescence de particules de glycérol marquées à la fluorescéine sodée lorsqu'elles sont excitées par un faisceau LASER de longueur d'onde adaptée (LASER à argon ionisé). Ils sont transmis au photo-détecteur du système par une optique brevetée, à grand pouvoir de collection.

Les données acquises au cours de cette étude démontrent l'aptitude d'un tel dispositif pour la détection en continu et en temps réel d'aérosols fluorescents. Dans les études par traçage particulaire, cette technique de détection spécifique permet de s'affranchir de la présence des aérosols ambiants.

**ABSTRACT**

Optical particles counters available today are based on light diffusion by these particles; we can distinguish them only with their size. technicals of particulate marking, specially in the range of ventilation characterization, require detection's device more specific.

Fluorescence property that we can provide to a liquid aerosol is used in a new real-time monitor we have developed to count this particles.

Fluorescent particles pass through a sampling nozzle up to measurement chamber specially designed; sheath flow rate is used to contain the aerosol test into the sample flow rate at nozzle outlet.

The intercept of this stream with a LASER beam allow aerosol detection and characterization, particle by particle.

Optical signals are produced by fluorescence emission of glycerol particles tagged with fluorescein sodium when they are excited by a LASER beam emitting at an adapted wavelength (ionised argon LASER). These signals are transmitted to a photodetector by a patented optical arrangement.

Data obtained in this study prove the faisability of our system in order to detect fluorescent particles in real time. In the particulate tracers applications, this technique based on specific detection allows to get rid of the atmospheric aerosols background.

## INTRODUCTION

Les aérosols marqués artificiellement par une substance fluorescente sont un puissant outil pour le suivi spécifique d'un polluant dans un milieu naturellement exempt de telles particules. La plupart des essais réalisés dans le cadre d'études d'aérocontamination, de confinement ou bien d'épuration sollicitent ces aérosols tant dans certains milieux industriels que dans des laboratoires spécialisés.

La détection de telles particules peut ainsi aider à la compréhension de différents phénomènes complexes produits à l'intérieur d'un local et alors permettre la maîtrise de ceux-ci. En effet, le couplage ventilation-polluant est une préoccupation majeure lors de la conception ou de la remise aux normes d'une installation de ventilation.

Ainsi, le suivi en temps réel du transfert de contamination d'un polluant inoffensif injecté en lieu et place d'une source de contamination permet d'optimiser l'emplacement de balises de détection et de déterminer le taux d'homogénéisation du polluant dans le local. L'optimisation du taux de renouvellement est alors concevable lors de la réalisation d'une cartographie de concentration de polluant à l'intérieur du local. Celle-ci décèle la présence de "zone morte", lieu d'accumulation du polluant et permet ainsi d'en prévoir l'élimination.

Cette technique de traçage particulière peut également être mise en oeuvre lors d'études concernant, en particulier, le confinement dynamique, la validation de codes de calcul aérauliques, la modélisation d'écoulements d'air chargé en particules ou bien encore la qualification de matériel de filtration.

Le principe de la mesure de tels aérosols spécifiques autorisait jusqu'alors, uniquement une mesure intégrale en temps différé de leur concentration par le biais de prélèvements sur filtres, conditionnés ensuite pour une analyse par fluorimétrie.

La nécessité, telle qu'on l'a décrite précédemment, de suivre en temps réel la concentration d'un traceur dans l'air nous a conduit à montrer la faisabilité d'une nouvelle technique de détection d'aérosols fluorescents.

Dans cette communication, nous présentons le principe de détection que nous appliquons, le dispositif expérimental réalisé et les principaux résultats acquis au cours de notre étude.

## PRINCIPE DE LA MESURE

L'objectif principal de notre étude réside dans la conception d'une technique de caractérisation et de comptage d'aérosols, basée sur la détection en temps réel de leur fluorescence.

Lorsqu'un aérosol liquide fluorescent intercepte un faisceau de lumière monochromatique de longueur d'onde incluse dans son spectre d'absorption, celui-ci réemet une lumière de longueur d'onde supérieure due à la fluorescence

A éclaircissement constant, l'intensité de celle-ci est proportionnelle à la quantité de substance fluorescente contenue dans la particule. Il s'agit de collecter cette lumière de fluorescence par un système optique approprié sur un détecteur photosensible afin de quantifier la teneur en fluorochrome.

$$Q_f \propto k \cdot \Phi \cdot \varepsilon \cdot I_0 \cdot t \cdot Q$$

- $Q_f$  : quantité de fluorescence,
- $k$  : coefficient de proportionnalité,
- $\Phi$  : rendement quantique de fluorescence,
- $\varepsilon$  : coefficient d'absorption molaire,
- $I_0$  : intensité de lumière incidente,
- $t$  : temps de présence de la particule dans le flux lumineux,
- $Q$  : quantité de fluorophore

Un dispositif de focalisation aérodynamique (*figure 1*) aligne les particules les unes derrière les autres. La finesse de focalisation de la lumière d'excitation permet l'éclairement au vol d'une particule.

L'utilisation d'une source lumineuse LASER (Light Amplification of Stimulated Emission Radiation) facilite la concentration de la puissance d'excitation du faisceau en un spot lumineux étroit.

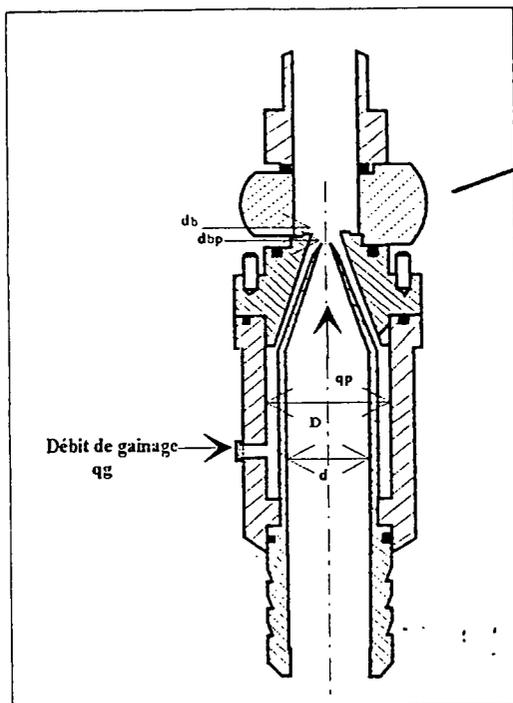
On peut estimer le volume de mesure à environ  $3 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^3$ : la concentration maximale, détectable avec un taux de coïncidence inférieur à 5%, ne doit pas excéder  $10^5$  particules/  $\text{cm}^3$ .

### Cellule de mesure et optique associée.

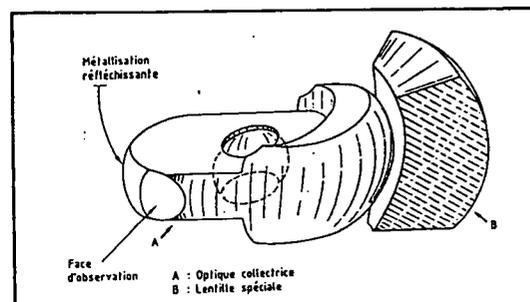
Elle est essentiellement composée:

- d'un système de prélèvement (*figure 1*) en laiton à faible indice de rugosité pour la surface interne, dont l'extrémité est une buse de petit diamètre ( $d = 0.6 \text{ mm}$ ), ce qui permet d'acheminer les aérosols dans la chambre de mesure à l'intérieur d'un jet centré. Un circuit d'air de gainage permet l'amélioration du centrage aérodynamique du jet de sortie dans le même temps qu'il évite tout dépôt de gouttelettes sur les parois de l'optique collectrice.

- d'une chambre de mesure (*figure 2*) dont la géométrie particulière permet de collecter un maximum de la lumière fluorescente émise. Le rendement de collection de fluorescence est de l'ordre de 19 %. Cette optique collectrice a fait l'objet d'un brevet (réf 1). Sa face postérieure, centrée sur le jet est métallisée, ce qui permet de renvoyer la lumière émise vers l'arrière, à l'endroit d'émission où elle vient s'additionner au flux émis vers l'avant.



*figure 1*  
Système de prélèvement



*figure 2*  
Chambre de mesure  
(réf 2)

La lentille B capte le flux lumineux et renvoie l'ensemble sur le reste du montage optique.

#### Caractéristiques de la buse

$D = 10.6 \text{ mm}$   
 $d = 6.0 \text{ mm}$   
 $d_{bp} = 0.6 \text{ mm}$   
 $db = 2.6 \text{ mm}$

### Choix du fluorophore

Le fluorophore choisi pour mener nos essais est la fluorescéine sodée ( $C_{20}H_{10}O_5Na_2$ ); elle est un produit de prédilection dans les études de traçage du fait, essentiellement, de sa non toxicité aux concentrations usuelles mais aussi de sa solubilité dans l'eau et dans le glycérol, souvent mis en oeuvre lors de la production de gouttelettes calibrées.

Elle est en outre, utilisée dans une méthode de mesure normalisée (NF X 44.011) pour les tests d'efficacité de filtres à air à très haute efficacité.

Ce traceur possède de très bonnes qualités de fluorescence en solution dans le glycérol (rendement quantique évalué à 92 % dans les meilleures conditions) et peut aisément être détecté par toute technique fluorimétrique.

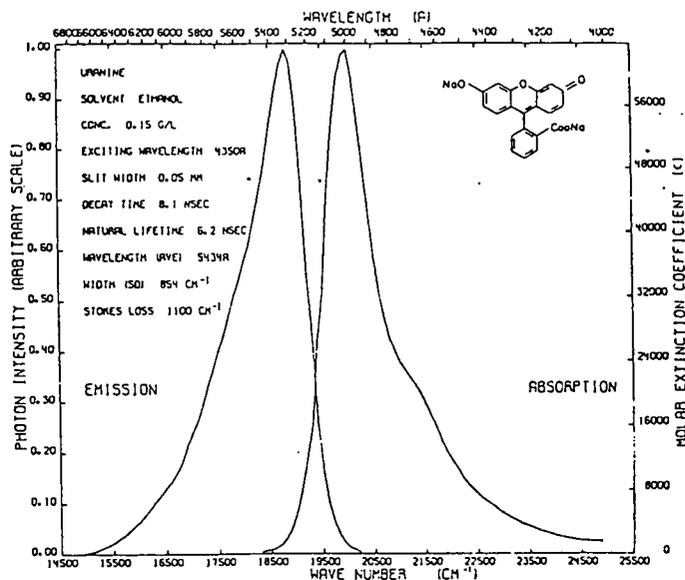


figure 3  
Spectre d'absorption/émission de la fluorescéine (réf 3)

### MONTAGE EXPERIMENTAL

Deux parties principales peuvent illustrer le principe de fonctionnement de notre dispositif (figure 4):

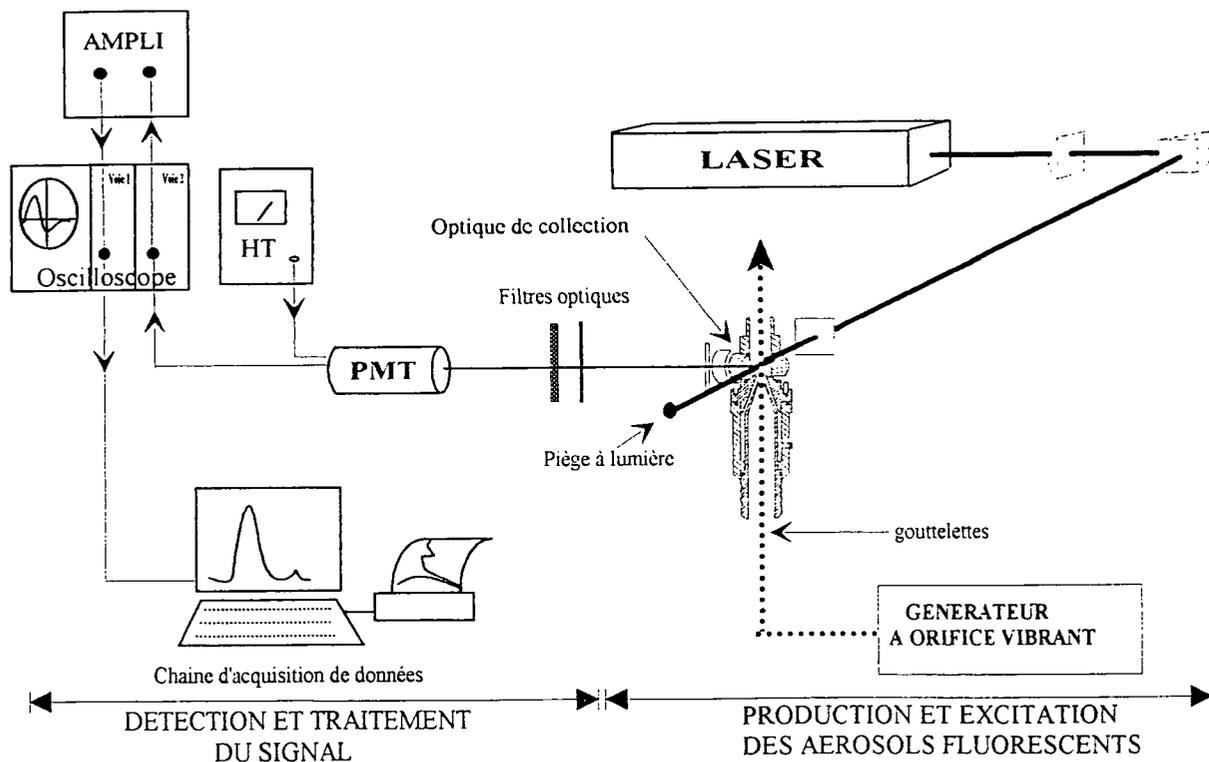


figure 4  
Vue d'ensemble du dispositif expérimental

### Production de gouttelettes

Un générateur à orifice vibrant (TSI Inc, modèle 3050) assure la production des gouttelettes monodispersées de glycérol marquées à la fluorescéine sodée à des concentrations de 1 à 10 g/l. La gamme des diamètres d'aérosols produits s'étend de 1 à 10  $\mu\text{m}$  (diamètre aérodynamique), soit des quantités de fluorochrome contenues par particule comprises entre  $3.10^{-16}$  et  $3.10^{-12}$  g/particule (soit  $6.10^5$  à  $6.10^9$  molécules/particule).

Les caractéristiques de granulométrie des aérosols test ont pu être vérifiées grâce à un analyseur de taille d'aérosols APS (Aerodynamic Particle Sizer, modèle 3310, TSI Inc)

Le spectre illustré en *figure 5* est obtenu lors de la production de gouttelettes de diamètre 5 $\mu\text{m}$ .

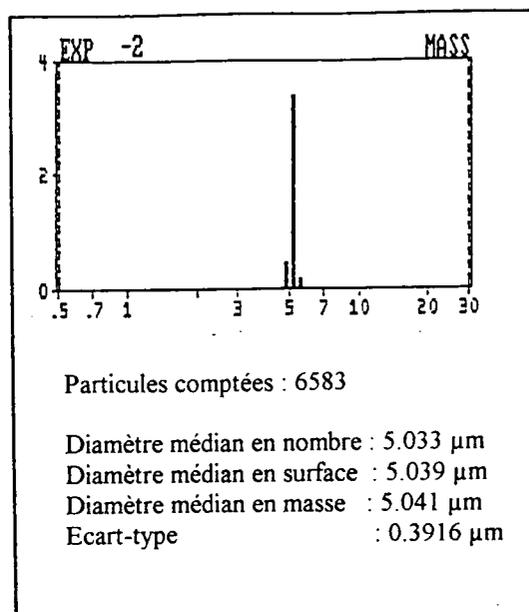


figure 5

### Dilution et prélèvements

Le débit du prélèvement de référence est assuré par un éjecteur dont le débit est imposé par un col sonique calibré (SAPELEM) pour la valeur souhaitée (5 l/min).

Le débit de prélèvement total ( débit d'air de gainage ajouté au débit de prélèvement des particules) est réalisé par deux pompes à palettes montées en série (Rietschle).

Les débits de gainage et prélèvement total sont contrôlés par des débitmètres massiques calibrés (DM) dans la gamme des débits utilisés (Contrôleurs de débit massique BROOKS, modèles 5851), leur différence correspond au débit de prélèvement des particules.

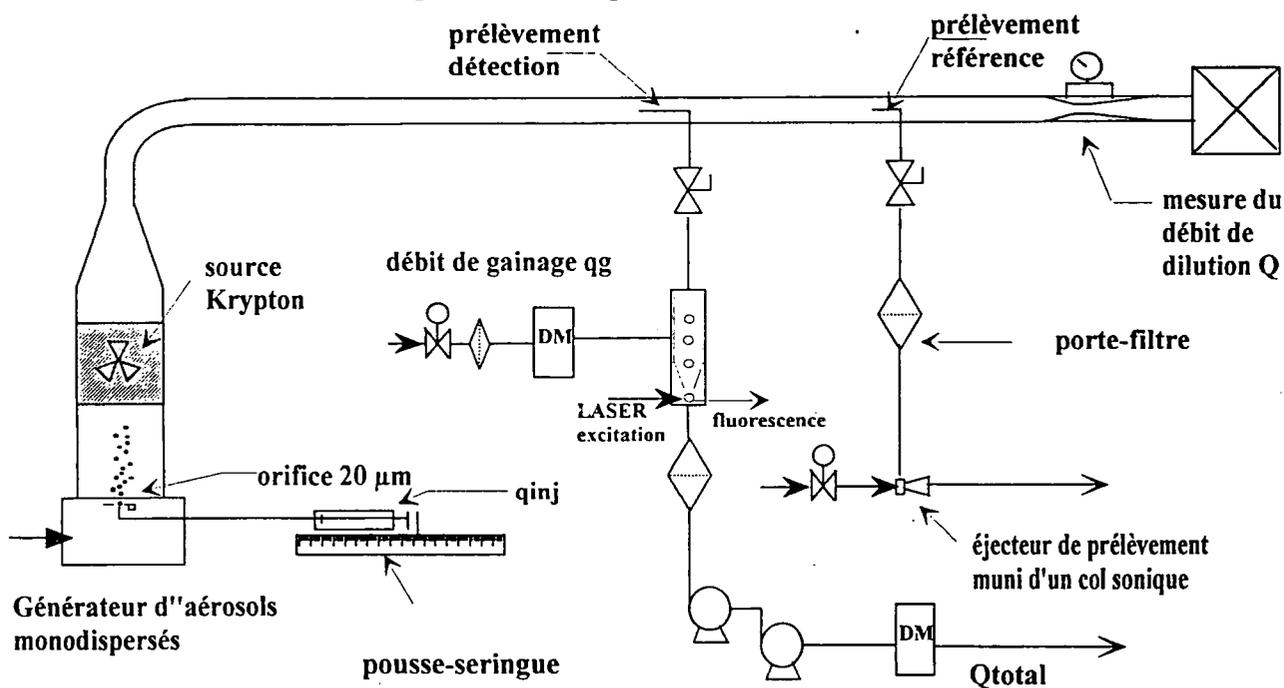


figure 6  
Schéma aéraulique

## Détection des aérosols

### Source LASER

La volonté de réaliser un dispositif de mesure de grande sensibilité nous a conduit à adopter un LASER en tant que source lumineuse de très grande brillance, monochromatique, de focalisation aisée et de plus, stable.

Ainsi, nous utilisons un LASER à argon ionisé (Spectra Physics, Series 2000) qui émet à la longueur d'onde de 488 nm en accord avec la longueur d'onde d'absorption de la fluorescéine sodée. La puissance est volontairement limitée de 15 à 500 mW. Il fournit un faisceau en mode TEM<sub>00</sub>, c'est à dire que son profil d'intensité est gaussien.

La figure 7 représente la distribution de l'intensité du faisceau LASER au niveau du jet d'air chargé en particules.

### Focalisation du faisceau

Le dispositif de focalisation est tel que sa largeur est grande devant le diamètre des particules les plus grosses à analyser; l'intensité d'excitation de la particule est ainsi uniforme, même pour des positions de particules légèrement fluctuantes dans la zone éclairée.

La combinaison de lentilles spéciales permet au faisceau de prendre l'aspect d'une nappe lumineuse au niveau du flux des particules, dont l'épaisseur de focalisation est fine afin de n'éclairer qu'une seule particule défilante (cf Principe de la mesure).

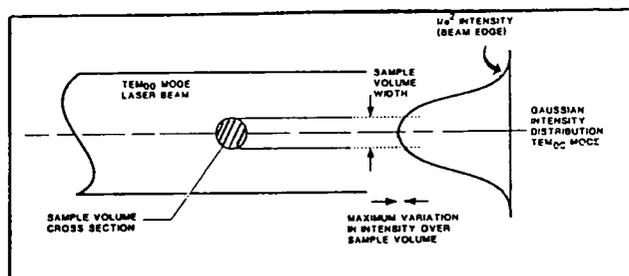


figure 7  
Distribution de l'intensité LASER  
au niveau du jet en sortie de buse (réf 4)

### Filtrage chromatique sur la voie d'analyse de la lumière de fluorescence

L'association en série d'un filtre interférentiel (CORION, LL500) et d'un filtre coloré (OG 515) donne une bonne discrimination des longueurs d'onde transmises par rapport à la lumière d'excitation; seuls les signaux de fluorescence provenant des particules atteignent le détecteur. On s'affranchit ainsi de la lumière parasite réfléchiée principalement par les parois de la cellule et de la lumière de diffusion également produite par les particules.

### Détection et acquisition des données

Un photomultiplicateur (HAMAMATSU, type R928) collecte les photons de fluorescence et les convertit, selon le rendement de la photocathode et son gain, en courant électrique; le signal en sortie de ce détecteur est directement observable sur l'une des deux voies d'un oscilloscope avant qu'il ne soit transmis à l'amplificateur (Schlumberger, type 7129) où il est mis en forme et amplifié.

La sortie de l'amplificateur est reliée à la seconde voie de l'oscilloscope montée en parallèle avec la chaîne d'acquisition de données.

La chaîne d'acquisition de données est constituée d'un ordinateur (PC 386) muni d'une carte interface de type ACCUSPEC NAI (CANBERRA); le codage est effectué sur 2048 canaux.

On dispose ainsi d'un analyseur d'impulsions performant qui reconstitue le spectre des quantités de photons fluorescents détectés: il délivre des histogrammes élaborés en totalisant le nombre d'événements classés selon leur amplitude.

Ce montage nous permet de suivre en temps réel la détection des signaux de fluorescence émis par les particules, simultanément sur le cadran de l'oscilloscope et celui de l'ordinateur. Il est alors aisé d'ajuster correctement la focalisation du faisceau LASER sur le jet des particules en jouant sur les réglages micrométriques de la cellule (déplacement XY). On optimise ainsi l'interaction faisceau LASER-flux de particules en recherchant un signal d'amplitude maximale qui offre la meilleure résolution.

## PRINCIPAUX RESULTATS

### ◆ Estimation du taux de rétention dans la cellule de mesure

L'une des principales étapes dans la qualification de notre dispositif est de valider la représentativité de la détection LASER par rapport à un prélèvement de référence effectué en parallèle. Pour cela, nous avons estimé le taux de rétention  $R$  des gouttelettes à l'intérieur même du dispositif.

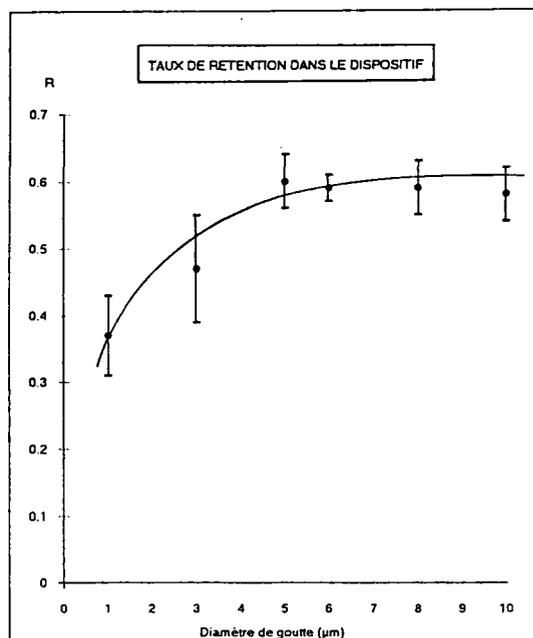
Trois séries de dix essais avec prélèvements simultanés (de référence et en aval du dispositif de détection LASER, cf figure 6) effectuées pour chaque diamètre de particules compris entre 1 et 10  $\mu\text{m}$  nous permettent de tracer une courbe de rétention caractéristique du dispositif (figure 8) après analyse en fluorimétrie classique des filtres de prélèvement.

Les barres d'erreur associées aux résultats correspondent à une incertitude sur les résultats donnée à la probabilité de 95 %.

$$R = \frac{Créf - Cprél}{Créf}$$

$Créf$  = concentration de référence (g/L)  
 $Cprél$  = concentration mesurée en aval du dispositif (g/L)

figure 8  
 Taux de rétention en fonction du diamètre des particules



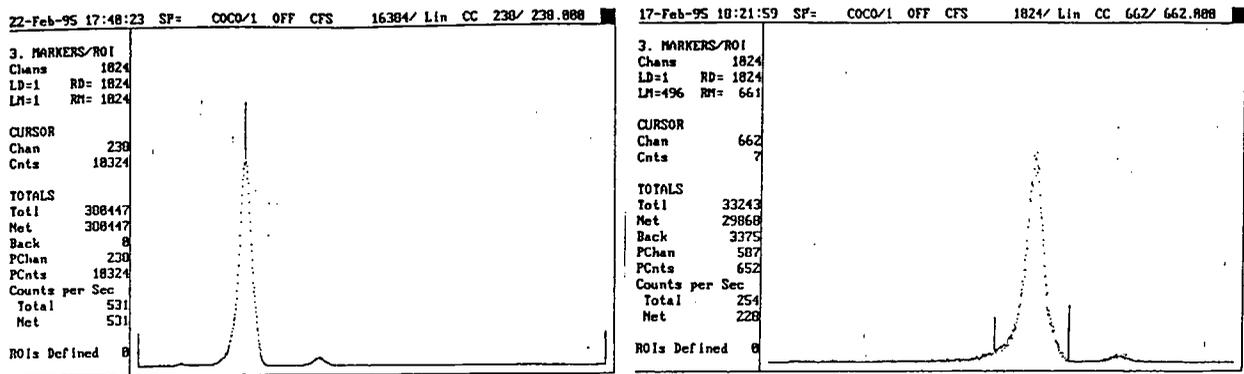
### ◆ Analyse du signal obtenu

Le spectre caractéristique obtenu lors de la détection de particules fluorescentes est illustré par quelques résultats enregistrés lors de la détection de particules de diamètres différents (figure 9).

L'échelle des abscisses est directement proportionnelle à la quantité de fluorescéine mesurée par particule décomptée soit au volume de la particule pour une concentration en fluorescéine dans le solvant (glycérol) constante.

L'échelle des ordonnées totalise quant à elle le nombre de particules détectées par unité de temps.

Dans de bonnes conditions d'essais, c'est à dire une focalisation du faisceau LASER optimale sur le jet de particules et une population de gouttelettes monodispersées, l'histogramme obtenu prend une allure gaussienne, centré sur la valeur moyenne de l'intensité de fluorescence mesurée. L'intégration sous le pic permet de déterminer le nombre total de particules détectées pendant le temps d'analyse.



dae = 5 µm

dae = 10 µm

figure 9

Exemples de spectres enregistrés

### ◆ Influence de différents paramètres

Plusieurs paramètres peuvent modifier l'allure des spectres enregistrés pour un diamètre de particule donné de concentration en fluorochrome fixe, ils sont principalement:

- la puissance du faisceau LASER (donc de l'éclairement d'excitation),
- la haute tension appliquée au photomultiplicateur (PMT),
- la vitesse de passage de la particule dans le faisceau,
- l'alignement du faisceau d'excitation sur le jet de particules,
- l'homogénéité de l'intensité d'excitation,
- le centrage du flux de particules (action du débit d'air de gainage),

Les trois premiers paramètres cités agissent essentiellement sur la limite de détection du dispositif, quant aux trois autres, ils peuvent empêcher une interprétation correcte du spectre lorsqu'ils ne sont pas réalisés.

Les figures 10 et 11 montrent que les valeurs de la puissance délivrée par le LASER et de la haute tension appliquée au PMT doivent être optimisées pour maintenir la linéarité du signal de détection avec la fluorescence des particules standards.

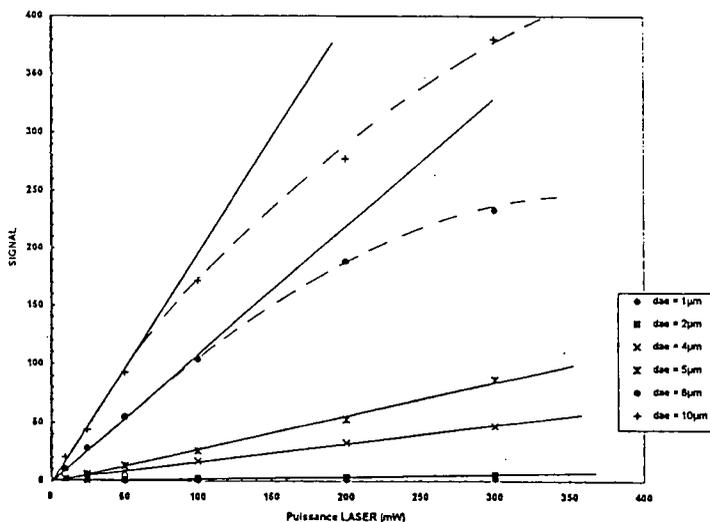


figure 10

Influence de la puissance LASER sur le signal de fluorescence

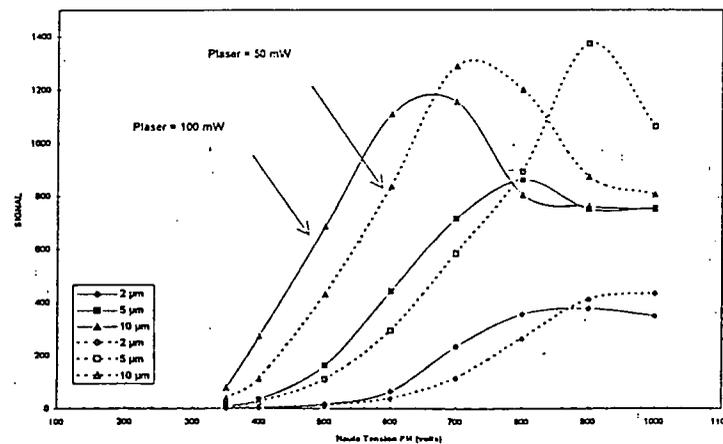


figure 11

Influence de la Haute Tension du PMT sur le signal de fluorescence

### ◆ Essai de calibration

Il est envisageable de tracer une courbe de calibration dès lors qu'on travaille avec des gouttelettes marquées à la même concentration en substance fluorescente.

Les signaux de fluorescence émis sont fonction de la masse de fluorochrome contenue par particule. Par conséquent, ils doivent varier comme le volume (proportionnel à  $d^3$ ) de la gouttelette, ce que nous avons vérifié (figure 12).

Toutefois, au delà de certaines conditions de puissance LASER, de haute tension du PMT, de taille de gouttelettes ou bien encore de concentration en fluorescéine, nous sommes confrontés à des problèmes, soit de limite de détection, soit de saturation électronique du système. Effectivement, lorsque l'un ou l'autre de ces différents paramètres augmente, la linéarité du signal n'est maintenue que dans un certain domaine.

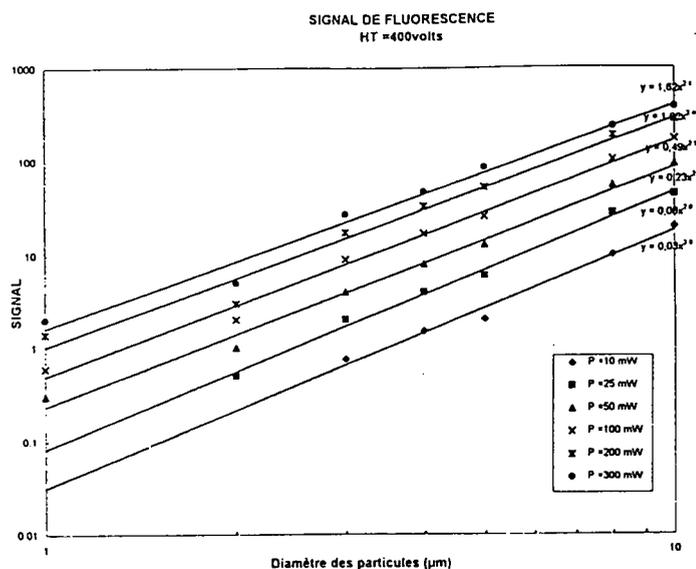


figure 12  
Signal de fluorescence en fonction  
du diamètre de particule

### ◆ Comparaison de résultats avec la fluorimétrie classique

Différents essais nous ont permis d'estimer l'efficacité de comptage de notre dispositif en comparant les résultats acquis par la détection LASER avec ceux obtenus en fluorimétrie classique lors de la mesure d'une concentration particulaire identique, pour différents diamètres de gouttelettes. Nous obtenons des résultats tout à fait comparables entre les deux techniques puisque l'écart reste inférieur à 10 % dans tous les cas où les spectres obtenus sont exploitables (séparation du signal de fluorescence avec celui correspondant au bruit électronique).

Les durées d'analyse par la méthode de comptage LASER sont réduites et ne dépendent que de la concentration particulaire présente, pour un débit constant: il est souhaitable d'attendre la détection d'un minimum de  $10^4$  événements au total pour atteindre une statistique de comptage satisfaisante (précision de 1%), ce qui peut entraîner, selon la concentration mesurée, des temps de comptage inférieurs à une minute.

Notre dispositif permet une grande sélectivité de détection puisqu'il ne compte que les particules fluorescentes. Des spectres présentant des taux de comptage nuls sont obtenus lorsqu'on prélève directement dans l'air ambiant.

## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

L'utilisation d'une source LASER adaptée, associée à une optique à grand rendement de collection contribuent à la réalisation d'un dispositif de détection d'aérosols fluorescents performant pour le suivi en temps réel et en continu d'une concentration particulaire test injectée dans un local ou banc d'essai.

La technique permet, par les données acquises, d'accéder directement à des taux de comptage de particules tout en contrôlant la granulométrie des aérosols produits.

L'estimation de la totalité de la masse de fluorochrome détectée est facilitée pour l'analyse de particules monodispersées dès lors que l'on connaît le contenu de chacune d'elles.

Les limitations de cette technique sont directement liées au niveau de bruit (optique et électronique) délivré par le dispositif ainsi que par les propriétés physico-chimiques du fluorophore utilisé.

La fabrication à terme d'un appareil portatif, pour des mesures sur site, impose une technologie qui soit très peu encombrante et d'un poids réduit, ce qui limite essentiellement la taille de la source LASER utilisée. Malgré l'existence sur le marché de LASERs à argon ionisé délivrant des puissances de l'ordre de 10 à 100 mW, il serait judicieux de s'intéresser à de nouveaux colorants excitables dans le rouge qui permettraient l'utilisation de diodes LASER, de très petite taille et de faible coût.

Cependant, les colorants utilisés doivent être tout à fait inoffensifs pour l'homme, ce qui restreint considérablement leur choix. Une recherche bibliographique est actuellement en cours sur ce sujet.

## BIBLIOGRAPHIE

[1]GAUCHER J.C. : Dispositif optique à rendement de collection élevée et Cytofluorimètre en faisant l'application. Brevet n° 84-09676, France, 20 juin 1984.

[2]SEIGNEUR A : Cytométrie en flux : conception d'un appareil et validation expérimentale. Thèse- Université de Paris-sud. Centre d'Orsay - février 1987.

[3]BERLMAN I.B : Handbook of fluorescence spectra of aromatic molecules. Academic Press (1971).

[4]KNOLLENBERG R.G, VEAL D.L : Optical particle monitors, counters, spectrometers : performance characterization, comparison and use. *Journal of the IES*, V35, pp 64-81 (1992).

## Détermination de l'orientation et de la concentration de fibres dans un nuage

F. Le Meur, D. Wysoczanski<sup>°</sup>, J.N. Le Toulouzan,  
T. Girasole, G. Gréhan, G. Gouesbet

Laboratoire d'Energétique des Systèmes et Procédés,  
INSA de ROUEN, URA.CNRS.230, CORIA.  
BP08, 76131, Mont-Saint-Aignan Cédex, France.

<sup>°</sup> Institute of Electrical Metrology,  
Technical University of Wroclaw,  
ul. B. Prusa 53/55,  
50-317 Wroclaw, Poland.

### Résumé

La détermination de l'orientation et de la concentration de fibres dans un volume est un problème important dans de nombreux domaines. Notre laboratoire s'est attaché aux potentialités que peut apporter la diffusion de la lumière à l'étude de ce problème. L'approche a été double : modélisation sous l'aspect de la diffusion multiple par code de Monte-Carlo et expérimentation grâce à un montage basé sur deux caméras CCD à polarisation croisée. Les études effectuées sur des échantillons tests ont montré un bon accord théorie-expérience et la potentialité de diverses méthodes pour extraire l'orientation et la concentration en fibres de la distribution de la lumière diffusée.

## 1 Introduction

Dans de nombreux domaines d'activité, les chercheurs sont confrontés aux problèmes de la détermination de l'orientation et de la concentration de fibres. Citons, sans être exhaustif, les filtres à fibre, l'étude de tissus biologiques, ... Dans le cas particulier des matériaux composites polymériques, leurs caractéristiques mécaniques dépendent fortement de l'orientation et de la concentration des fibres qui les composent. Il est donc nécessaire de connaître les directions de ces fibres, si possible, sans détruire le polymère.

Dans le cadre d'un contrat Brite-Euram, notre Laboratoire a étudié les potentialités et les limites de méthodes basées sur la diffusion par un faisceau laser focalisé pour déterminer l'orientation et la concentration des fibres.

Pour atteindre cet objectif, l'approche a été double, théorique et expérimentale :

- La modélisation consiste à simuler la diffusion par un ensemble de fibres, avec une orientation spatiale en fonction de la profondeur en utilisant un code de Monte-Carlo permettant la prise en compte des effets de la diffusion multiple.
- Un montage expérimental qui permet l'enregistrement de cartes d'intensité pour deux polarisations orthogonales.

Le présent article est organisé de la façon suivante. La partie 2 traite de l'aspect théorique décomposé en l'étude de la diffusion simple par une fibre et de la diffusion multiple par un groupe de fibres basée sur la méthode de Monte-Carlo. La partie 3 traite du montage expérimental basé sur des caméras CCD à polarisation croisée. La partie 4 donne des exemples de résultats sur les échantillons test VE-10L et L fournis par ISIRIM. Enfin, la section 5 est une conclusion.

## 2 Aspect théorique

### 2.1 Diffusion simple par une fibre

La théorie de la diffusion d'un faisceau focalisé par un cylindre infini est analytiquement terminée [1, 2, 3], mais son incorporation dans un code numérique n'est, quant à elle, qu'en cours de développement.

Ainsi, l'outil le plus complet utilisable actuellement décrit la diffusion d'une onde plane par une fibre infinie [4, 5, 6]. L'utilisation de cette théorie impose à la matrice contenant les fibres d'être transparente et homogène. De plus, on fait l'hypothèse que les fibres ont une longueur très grande par rapport à la longueur d'onde du faisceau incident et un rapport longueur/diamètre plus grand que 1.

La géométrie est décrite sur la Fig. 1-a : Une onde plane (caractérisée par sa longueur d'onde  $\lambda$ ) rencontre un cylindre infini (diamètre  $d$ , indice complexe de réfraction  $m = n - ik$ ). L'angle  $\Phi$  entre le faisceau incident et l'axe principal de la fibre varie entre 0 et 90° (90° correspond à une incidence normale en comparaison avec l'axe longitudinal de la fibre  $z$ ). La lumière diffusée est donnée en fonction de l'angle de diffusion  $\theta$  qui varie de 0 à 180°.

La relation entre les champs électriques incident (indice  $i$ ) et diffusé (indice  $s$ ) donne la forme de matrice suivante [4]:

$$\begin{pmatrix} E_{\parallel s} \\ E_{\perp s} \end{pmatrix} = e^{i3\pi/4} \sqrt{\frac{2}{\pi k r \sin \phi}} e^{ik(r \sin \phi - z \cos \phi)} \begin{pmatrix} T_1 & T_4 \\ T_3 & T_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{\parallel i} \\ E_{\perp i} \end{pmatrix} \quad (1)$$

où  $T_1, T_2, T_3, T_4$  dépendent de la longueur d'onde, de l'indice de la fibre et de  $\theta$ . Cette théorie a été introduite dans un code FORTRAN de façon à simuler numériquement l'interaction entre une onde plane et diverses fibres.

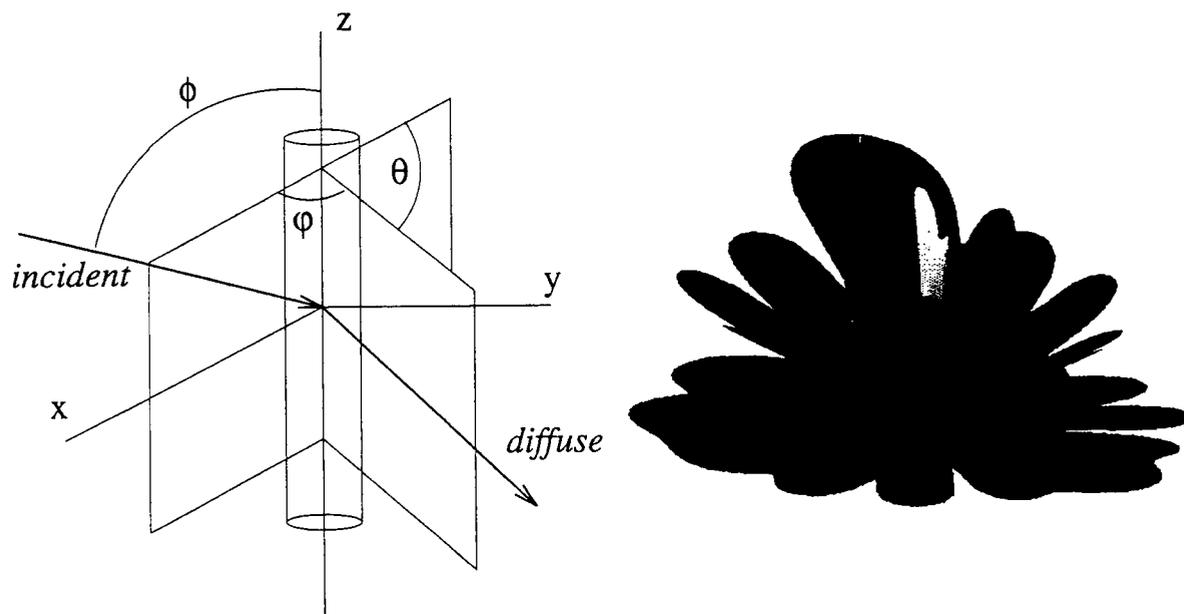
L'intensité diffusée dans la direction  $(\theta, \Phi)$  est (à une constante près):

$$I_{\Phi}(\theta) = E_{\parallel s} \cdot E_{\parallel s}^* + E_{\perp s} \cdot E_{\perp s}^* \quad (2)$$

La Fig. 1-b montre la lumière diffusée en fonction de l'angle de diffusion  $\theta$  et pour quatre angles  $\Phi$  entre le faisceau et la fibre. La lumière est diffusée sur un cône au contraire du cas d'une sphère qui elle diffuse dans tout l'espace. Le demi-angle du cône est égal à l'angle d'incidence entre le faisceau et la fibre.

### 2.2 Diffusion multiple par un nuage de fibres

La méthode de Monte-Carlo appliquée aux fibres fait suite à nos travaux concernant la diffusion multiple sur des nuages de sphères [7, 8], et des applications sur les évaluations de visibilité dans les brouillards [9, 10]. La diffusion simple n'est utilisable que pour de faibles concentrations. Dans le cas de nuage, la lumière est souvent recueillie après un phénomène de diffusion multiple. Ainsi, le modèle précédent pour une fibre est introduit comme une entrée dans le code de diffusion multiple. L'objectif principal de cette méthode est de simuler un processus complexe par une succession d'événements élémentaires. Chaque événement est décrit par un nombre aléatoire associé à la loi physique qui lui correspond.



(a) *Cylindre infini illuminé obliquement par une onde plane*

(b) *Figures de diffusion pour 4 angles de faisceau incident différents*

FIG. 1 - *Géométrie et diagrammes de diffusion pour une fibre*

Les positions, les formes et les caractéristiques des sources de lumière, des interfaces contenant les milieux d'étude, du milieu diffusant et des détecteurs sont de choix libre. Le code a ainsi un aspect très généraliste et adaptable à toutes les situations physiques (voir [11, 12] pour plus de détails).

### 3 Aspect expérimental

Le montage expérimental (Fig. 2) consiste en un système de caméras à polarisation croisée ([13]).

- La source est un laser argon polarisé linéairement (5W, 514 nm) suivi d'atténuateurs uniformes et de densité optique variable pour obtenir un régime laser stable et prévenir la saturation des caméras CCD. Un rotateur de polarisation nous permet de choisir l'orientation de la polarisation linéaire du faisceau incident. Un système afocal (trou de 100  $\mu\text{m}$  de diamètre et deux objectifs de microscope de 50 mm) épure le faisceau.
- La sonde laser est focalisée dans l'échantillon juste après le système afocal grâce à une lentille de focale  $f = 10 \text{ mm}$  qui donne un diamètre au col de 8  $\mu\text{m}$  et une longueur de Rayleigh de 0.1 mm.
- Une unité de translation 3D permet une sélection précise du point d'étude.
- Pratiquement, pour un échantillon test, la résolution spatiale transverse est d'environ 1 mm<sup>2</sup>, ceci permet de vérifier l'homogénéité de l'orientation et de la concentration en fibres dans le plan de l'échantillon.

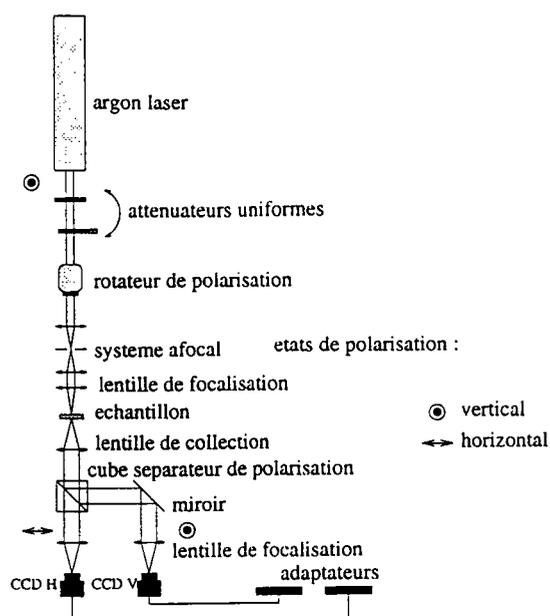


FIG. 2 - Description du montage

- L'ensemble de collection est composé d'une lentille qui collecte la lumière diffusée et d'un cube séparateur de polarisation qui décompose les états de polarisation vertical et horizontal. La lentille de focalisation forme une image de l'échantillon sur chaque caméra (8.8 mm x 6.6 mm) connectée sur une station SPARC IPX via une carte d'acquisition S2200.

La difficulté principale de ce montage expérimental est d'ajuster les caméras de telle façon que les deux images correspondent exactement au même objet.

Les images sont capturées par l'intermédiaire du logiciel VisionTool avec une configuration de source vidéo RGB (Red-Green-Blue) pour une acquisition simultanée de l'image. Les fichiers sont conservés sous SunRasterfile. La taille des fichiers est de 768 x 576 pixels x 3 octets et peut être réduite en ne sélectionnant qu'une couleur unique (ou 512 x 512 pixels pour avoir une image carrée).

L'image est traitée par un programme qui calcule des ellipses pour approximer la répartition de la lumière des séries expérimentales par  $n$  ellipses de différentes orientations, ellipticités et niveaux d'intensité. La position du centre de l'ellipse, son orientation, ses petit et grand axes pour les différents niveaux étudiés, sont mesurés.

## 4 Exemples de résultats

### 4.1 échantillons VE-10L

L'échantillon VE-10L fourni par ISIRIM [14] (Fig.3) est composé de fibres de verre de diamètre moyen 14  $\mu\text{m}$  et d'indice de réfraction 1.54 noyées dans une matrice polymérique d'indice 1.65 et d'épaisseur 1.3 mm. Il est composé 9 échantillons comportant chacun 10 couches de fibres croisées 1v/9h, 2v/8h, ..., 9v/1h. Ici, le premier chiffre est le nombre de couches de fibres verticales et le second est le nombre de couches de fibres horizontales. Ces différentes valeurs sont utilisées dans le code de simulation pour permettre une comparaison entre les résultats théoriques et expérimentaux (Fig. 4).

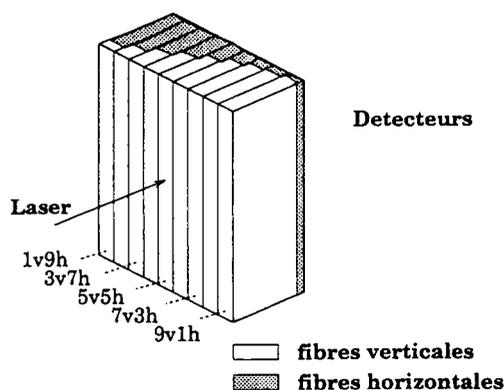


FIG. 3 - échantillon VE-10L d'ISRIM

Un bon accord est observé entre les cartes de distribution de la lumière simulées et expérimentales. Les figures évoluent entre deux cas limites : toutes les fibres dans l'échantillon sont horizontales (la figure de diffusion est alors une ellipse d'axe principal vertical et orthogonal à la direction des fibres). La distribution de la lumière diffusée est bien approximée par une croix formée d'ellipses orthogonales.

La répartition de la lumière pour chaque figure peut être analysée par deux ellipses orthogonales. Ainsi, la Fig. 5 montre le rapport moyen d'ellipticité (ellipticité de l'ellipse horizontale/ellipticité de l'ellipse verticale) pour différents niveaux d'intensité en fonction du nombre de sous-couches verticales dans l'échantillon (ici, pour une lumière incidente polarisée verticalement). Le rapport augmente avec le nombre de sous-couches verticales, allant de valeurs plus petites que 1 quand le nombre de sous-couches verticales est inférieur au nombre de sous-couches horizontales (ellipticité de l'ellipse verticale plus grande que celle de l'ellipse horizontale), vers des valeurs plus grandes que 1 quand le nombre de sous-couches horizontales est inférieur au nombre de sous-couches verticales (ellipticité de l'ellipse horizontale supérieure à celle de l'ellipse verticale). La valeur du rapport est sensiblement égale à 1 pour un même nombre de sous-couches horizontales et verticales. Cette méthode nous donne la possibilité d'extraire l'orientation moyenne des fibres dans l'échantillon.

Une autre méthode basée sur un rapport de polarisation permet de constater une biunivocité entre ce rapport et la concentration en fibres jusqu'à une concentration de  $10^9 \text{ m}^{-3}$  (Fig. 6).

## 4.2 échantillon L

L'échantillon L d'ISRIM est composé de fibres courtes (5 mm) injectées et moulées dans une matrice en polycarbonate. Les dimensions sont de 200 mm x 100 mm et 3.1 mm d'épaisseur et les différents points de mesure sont indiqués sur la Fig. 7.

La concentration volumique des fibres varie de 5% à 40% et les échantillons correspondants sont nommés L5, L10, L15, L20, L25, L30, L35 et L40.

L'angle theta entre l'axe horizontal et le grand axe principal de l'ellipse en fonction des points de mesure est présenté sur la Fig. 8-a pour l'échantillon L5, sur la Fig. 8-b pour l'échantillon L20 et sur la Fig. 8-c pour l'échantillon L40. On peut observer que l'orientation principale des fibres est perpendiculaire à l'axe principal de l'ellipse :

- l'angle theta est proche de 0 pour le point 5.
- la pente de theta est sensiblement linéaire en fonction des points de mesure dans la gamme de points 2-8.

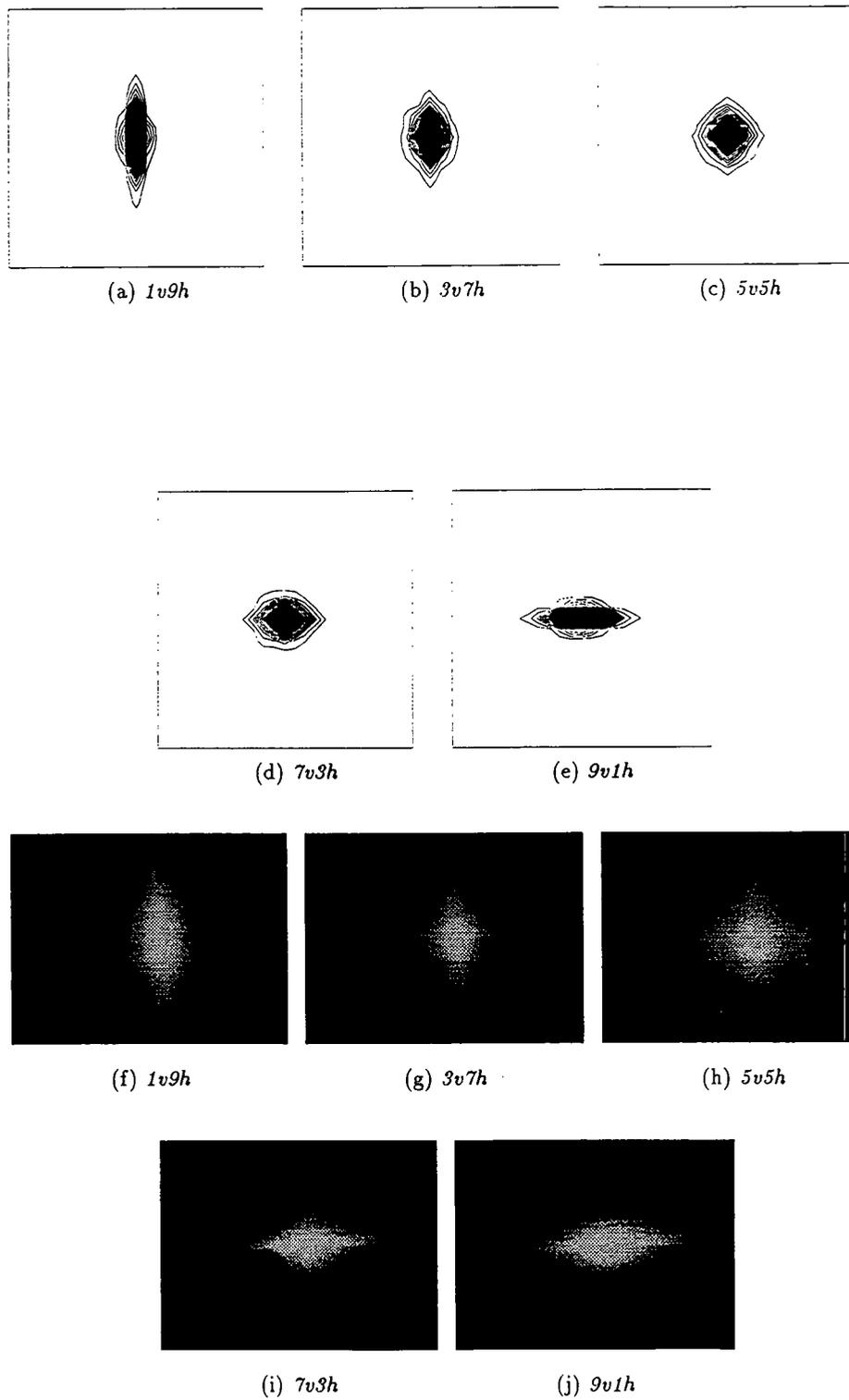


FIG. 4 - Comparaison entre les distributions d'intensité simulées (a-e) et expérimentales (f-j)

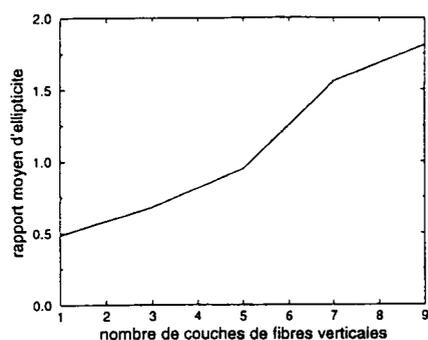


FIG. 5 - Rapport moyen d'ellipticité pour différents niveaux d'intensité pour les différentes couches dans l'échantillon

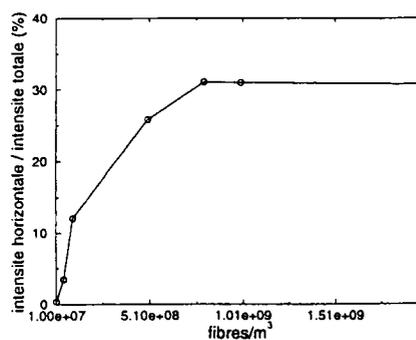


FIG. 6 - Rapport intensité polarisée horizontalement/intensité totale en fonction de la concentration des fibres pour le cas 5v5h

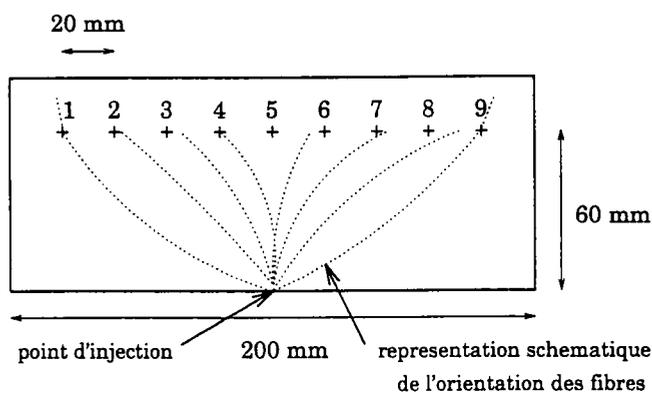


FIG. 7 - échantillon ISRIM L5-L40: mesure en différents points

- aux extrémités de l'échantillon, l'angle theta décroît car les fibres sont influencées par les bords de l'échantillon.

Ces résultats sont en accord avec l'orientation réelle des fibres dans les échantillons à ces points, induite par les conditions d'injection.

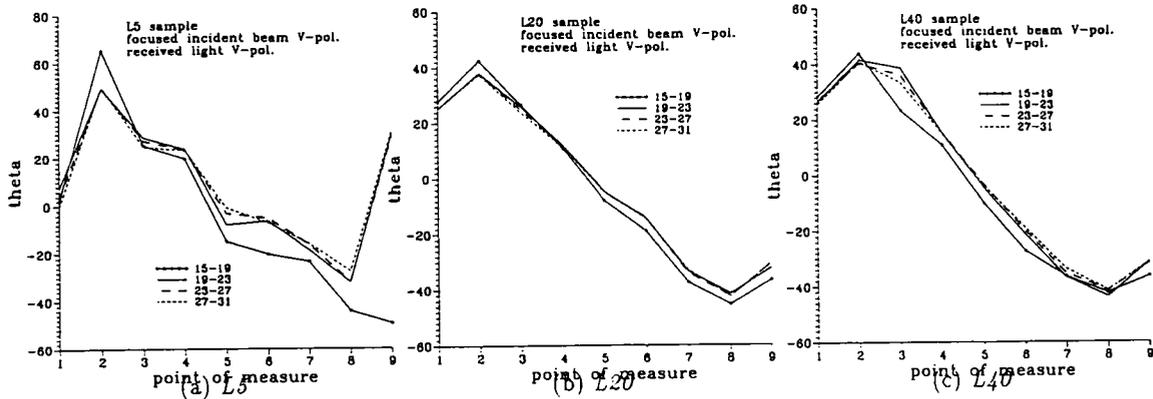


FIG. 8 - Angle theta en fonction des points de mesure avec le niveau d'intensité comme paramètre

La Fig. 9 montre les longueurs moyennes du grand axe de l'ellipse en fonction de la concentration en fibre dans les échantillons. Les mesures sont effectuées au point central de chaque échantillon (point 5). Il est clair que la mesure du grand axe moyen de l'ellipse permet d'identifier l'échantillon L, donc la concentration.

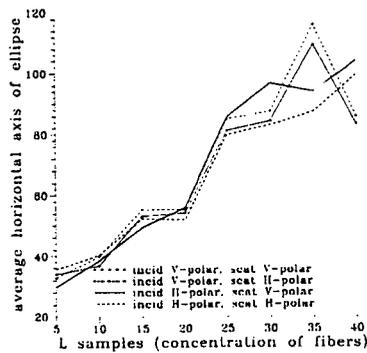


FIG. 9 - échantillon ISRIM L : longueur du grand axe de l'ellipse en fonction de la concentration en fibres

La Fig. 10-a montre l'ellipticité en fonction des échantillons L pour différents niveaux d'intensité. Pour chaque niveau, l'ellipticité décroît quand la concentration augmente. L'explication est la suivante : quand la concentration est nulle, l'ellipticité de la lumière transmise est d'environ 1 (pour un faisceau laser gaussien à symétrie de révolution). Pour les petites concentrations (diffusion simple), l'ellipse est très allongée. Lorsque la concentration augmente, les effets de la diffusion multiple réduisent l'ellipticité de 1.9 à 1.

La simulation de ces échantillons amène (Fig. 10-b) à un accord qualitatif avec l'expérience (la partie montante correspond à de faibles concentrations qui sont indisponibles au niveau des échantillons expérimentaux).

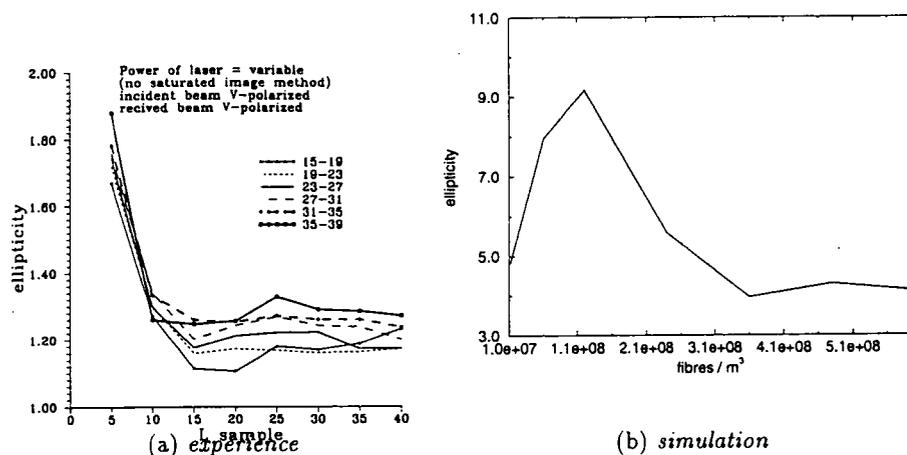


FIG. 10 - échantillon ISIRIM L : ellipticité en fonction de la concentration en fibres

## 5 Conclusion

Ce travail montre une approche originale de nuages de particules fibreuses par une méthode de diffusion de la lumière. Elle est directe (sans inversion), séparée (concentration et orientation) et en ligne (permettant une étude en un temps rapide). La principale limite est le fait d'avoir des milieux transparents. Nous n'avons présenté ici que deux types d'échantillons, mais notre étude a porté sur de nombreux autres échantillons de différentes provenances (ISIRIM, BAYER, ...), variés et complexes. Il est important de noter que la même technique s'applique à tout ensemble de fibres.

## 6 Remerciements

Ce travail s'est inscrit dans le cadre d'un contrat Brite-Euram II n° BRE2-CT92-0139 (Proposition 5081-91) et c'est un plaisir de remercier la communauté européenne pour son soutien.

## Références

- [1] G. Gouesbet and G. Gréhan. Interaction between shaped beams and an infinite cylinder, including a discussion of Gaussian beams. *Part. Part. System Charac.*, 11:299-308, 1994.
- [2] G. Gouesbet and G. Gréhan. On the interaction between a Gaussian beam and an infinite cylinder, using non sigma-separable potentials. *JOSA A*, 11(12):3261-3273, 1994.
- [3] G. Gouesbet. Interaction between Gaussian beams and infinite cylinders, by using the theory of distributions. Accepted by *J. of Optics*.
- [4] C. F. Bohren and D. R. Huffman. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. Wiley-Interscience, New York, 1983.
- [5] M. Kerker. *The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation*. Academic Press, New York, 1969.
- [6] J.R. Wait. Scattering of a plane wave from a circular dielectric cylinder at oblique incidence. *Canadian Journal of Physics*, 33:189-195, 1955.
- [7] J.P. Briton, B. Maheu, G. Gréhan, and G. Gouesbet. Monte-Carlo simulation of multiple scattering in arbitrary 3-d geometry. *Part. Part. Syst. Charact.*, 9:52-58, 1992.
- [8] B. Maheu, J.P. Briton, and G. Gouesbet. Four-flux model and a Monte-Carlo code: comparisons between two simple and complementary tools for multiple scattering calculations. *Applied Optics*, 28(1):22-24, 1989.
- [9] C. Rozé, B. Maheu, and G. Gréhan. Evaluations of the distance of visibility in a foggy atmosphere by Monte-Carlo simulation. In *Conference on Visibility and fine particles, Vienna, Sept. 15 to 18, 1992*.
- [10] C. Rozé, B. Maheu, G. Gréhan, and J. Ménard. Evaluations of the sighting distance in a foggy atmosphere by Monte-Carlo simulation. *Atmospheric Environment*, 28(5):769-775, 1994.
- [11] T. Girasole, H. Bultynck, G. Gouesbet, G. Gréhan, F. Le Meur, J.N. Le Toulouzan, J. Mroczka, K.F. Ren, C. Rozé, and D. Wysoczanski. Cylindrical fibre orientation analysis by light scattering - part 1: Numerical aspects. In preparation for *Part. Part. Syst. Charac.*
- [12] T. Girasole, G. Gouesbet, G. Gréhan, J.N. Le Toulouzan, J. Mroczka, K.F. Ren, and D. Wysoczanski. On fiber orientation diagnosis by light scattering: simulations and experimental results. In *PARTEC, editor, 4th International Congress Optical Particle Sizing*, pages 429-438. Nurenberg, Germany, 21-23 March, 1995.
- [13] T. Girasole, G. Gouesbet, G. Gréhan, F. Le Meur, J.N. Le Toulouzan, J. Mroczka, K.F. Ren, and D. Wysoczanski. Cylindrical fibre orientation analysis by light scattering - part 2: Experimental aspect. In preparation for *Part. Part. Syst. Charac.*
- [14] ISIRI Scarl Istituto Superiore di Ricerca e Formazione sui materiali Speciali per le tecnologie Avanzate. *Loc. Pentima Bassa 21 05100 TERNI. ITALY*, 1994.

# Détermination de la taille de particules submicroniques par analyse de la polarisation d'un rayonnement diffusé.

Philippe HERVE

Laurent AZIZI

Laboratoire d'Energétique et d'Economie d'Energie

Université Paris X, 1 Chemin Desvallières 92410 Ville d'Avray

## INTRODUCTION

Le but de cette étude est de déterminer une image spatiale représentant les diamètres de particules submicroniques présentes dans l'air. La méthode proposée est une méthode optique. Elle consiste à mesurer le rapport des deux composantes parallèle et perpendiculaire de la lumière polarisée diffusée par un laser sur une particule.

### I- Principe physique

La lumière diffractée par une particule supposée sphérique est polarisée. Pour un angle donné, le rapport des polarisations dépend de la taille des particules (Fig. 1 et 2) et de l'indice complexe. On constate que ces rapports dépendent peu de l'indice. L'indice moyen des particules en suspension est connu avec cependant une certaine imprécision. Ce faible taux de dépendance entre le rapport de polarisation et l'indice permet cependant de déterminer sans ambiguïté la taille des particules à partir de ce rapport de polarisation.

#### I.1- Rappels sur la théorie de Mie

L'intensité diffusée par une particule sphérique qui reçoit un rayonnement d'intensité  $I_0$  dans les angles polaires sphériques  $(\theta, \phi)$  est appelée  $I_{diff}(\theta, \phi)$ .

La puissance totale diffusée dans un angle solide  $d\Omega$  est:

$$P_{diff} = \int_{4\pi} I_{diff}(\theta, \phi) \cdot r^2 d\Omega$$

$r$  est la distance de la source au détecteur.

Une particule sphérique de diamètre  $(d)$ , d'indice de réfraction complexe  $n$ , placée en  $(o)$ , sommet d'un trièdre direct, interagit avec une onde plane, se propageant vers les  $(z)$  positifs, définie par le champ électrique  $E // ox$ , de longueur d'onde  $\lambda$ . Le rayonnement diffusé est observé en  $(P)$ , à la distance  $r \gg \lambda$ , il est décomposé en deux composantes, l'une dont le

vecteur champ électrique vibre dans le plan formé par la direction de propagation  $z'z$  et la direction d'observation  $OP$ ; le vecteur champ électrique de l'autre vibrant dans le plan perpendiculaire [8][9].

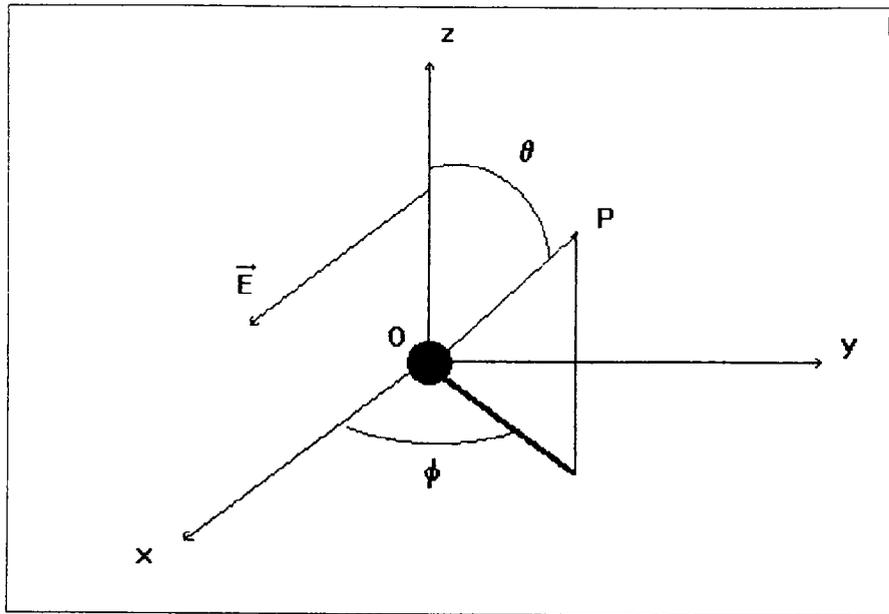


FIGURE 1: Diffusion de la lumière par une particule sphérique

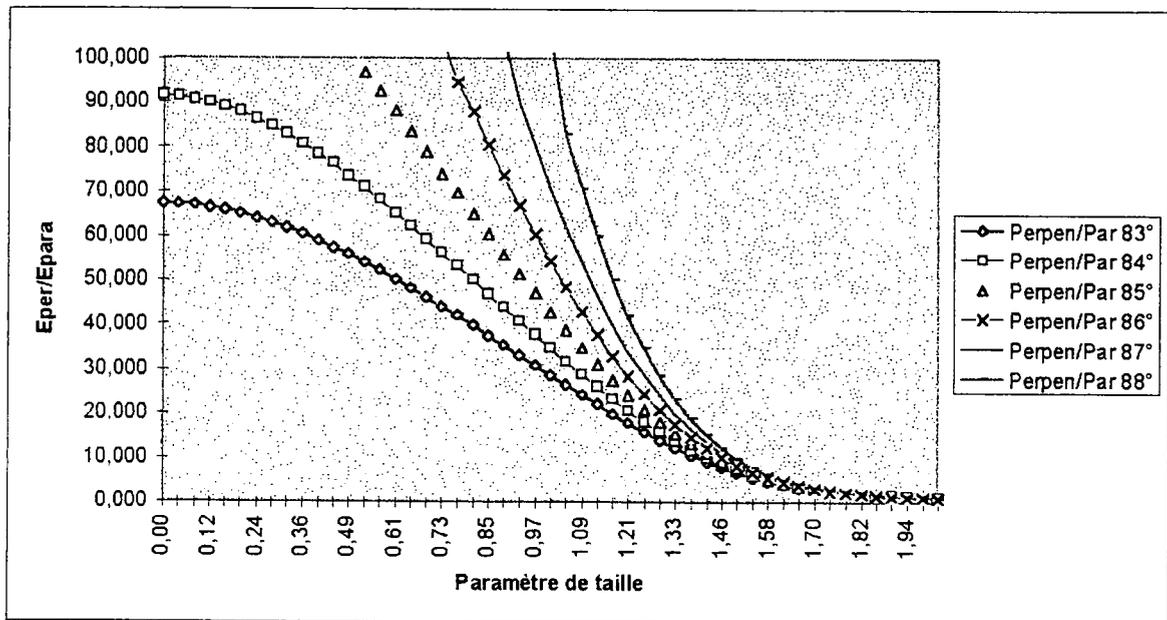


FIGURE 2: Rapport de polarisation en fonction du paramètre de taille et de l'angle de diffusion (Particules sphériques)

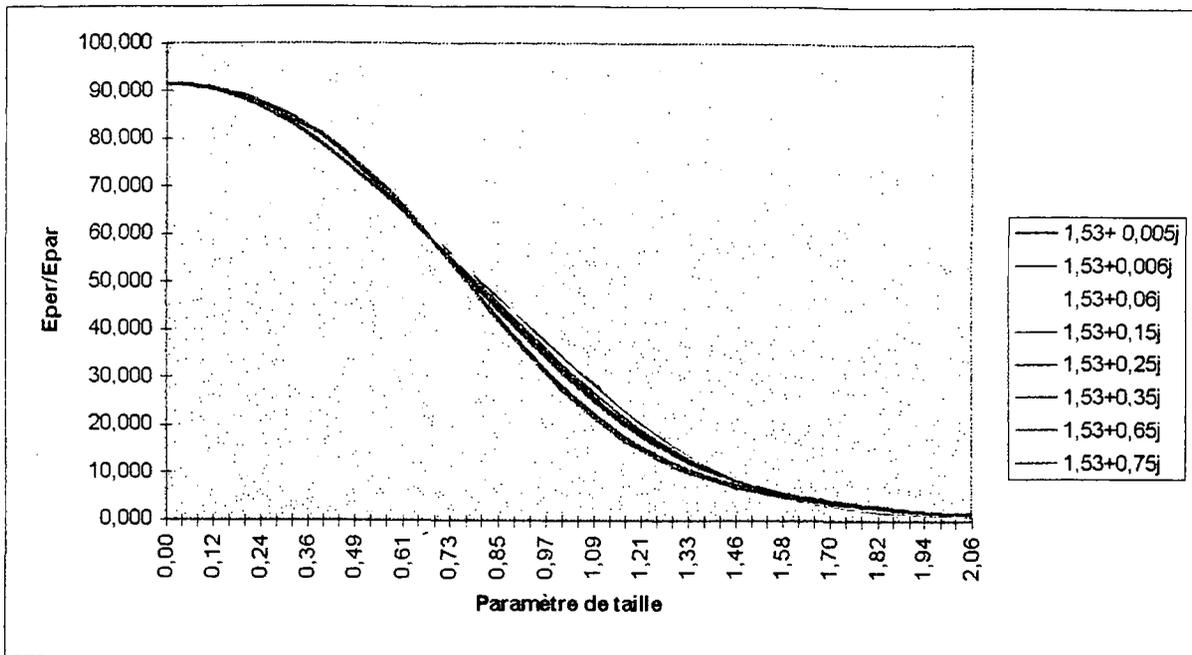


FIGURE 3: Rapport de polarisation en fonction du paramètre de taille et de l'indice complexe des particules. Sensibilité à la variation de la partie imaginaire de l'indice. Angle de diffusion de  $84^\circ$

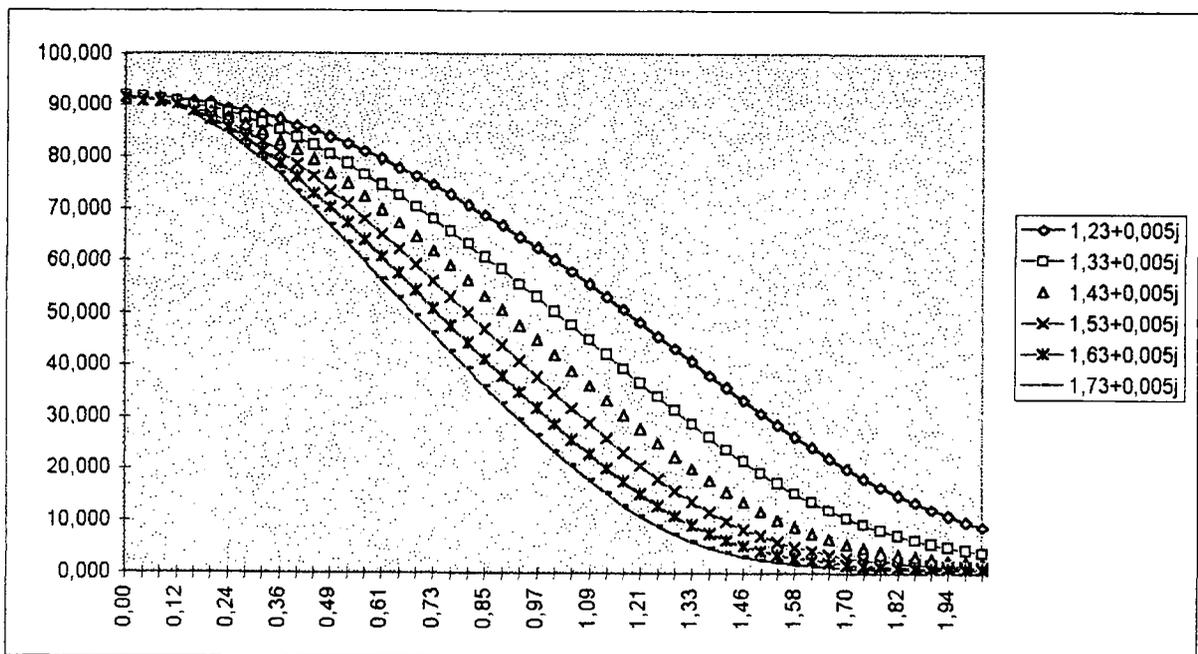


FIGURE 4: Rapport de polarisation en fonction du paramètre de taille et de l'indice complexe des particules. Sensibilité à la variation de la partie réelle de l'indice. Angle de diffusion de  $84^\circ$

Les valeurs de l'indice des particules atmosphériques sont tirées du livre « Handbook of Optics » de W.G. Driscoll édité par Macgraw-Hill (p. 14.10 Tableau ci-dessous) [11].

Wave-length, $\mu\text{m}$	Refractive index	
	Water-soluble	Dusklake
0,20000	1,530-0,070j	1,530-0,070j
0,25000	1,530-0,030j	1,530-0,030j
0,30000	1,530-0,008j	1,530-0,008j
0,33710	1,530-0,005j	1,530-0,008j
0,48800	1,530-0,005j	1,530-0,008j
0,51450	1,530-0,005j	1,530-0,008j
0,63280	1,530-0,006j	1,530-0,008j
0,69430	1,530-0,007j	1,530-0,008j
0,86000	1,520-0,012j	1,520-0,008j
1,06000	1,520-0,017j	1,520-0,008j
1,53600	1,510-0,023j	1,400-0,008j
2,00000	1,420-0,008j	1,260-0,008j
2,50000	1,420-0,012j	1,180-0,009j
2,70000	1,400-0,055j	1,180-0,013j
3,00000	1,420-0,022j	1,160-0,012j
3,20000	1,430-0,008j	1,220-0,010j
3,39230	1,430-0,007j	1,260-0,013j
3,50000	1,450-0,005j	1,280-0,011j
3,75000	1,452-0,004j	1,270-0,011j
4,00000	1,455-0,005j	1,260-0,012j
4,50000	1,460-0,013j	1,260-0,014j
5,50000	1,440-0,018j	1,220-0,021j

**FIGURE 5: Indice complexe des particules de l'atmosphère en fonction de la longueur d'onde.**

A la longueur d'onde de 488 nm utilisée, l'indice complexe des particules de l'atmosphère est approximativement de  $1,530-0,005i$ . Les figures 3 et 4 montrent que le taux de polarisation mesuré est très peu sensible aux variations de la partie imaginaire de l'indice et peu sensible aux variations de sa partie réelle [10][11].

## II- Appareillage

Le système de mesure comporte comme source illuminatrice un laser Argon 5 Watts. La polarisation de la lumière diffusée à l'angle  $\theta$  est analysée par un cube séparateur de polarisation. Le système, représenté sur la figure 6, permet de décaler spatialement l'image « parallèle » de l'image « perpendiculaire ». Ces images sont analysées sur une caméra intensifiée PHILIPS IP 800 obturable de 100 ns à 16 ms.

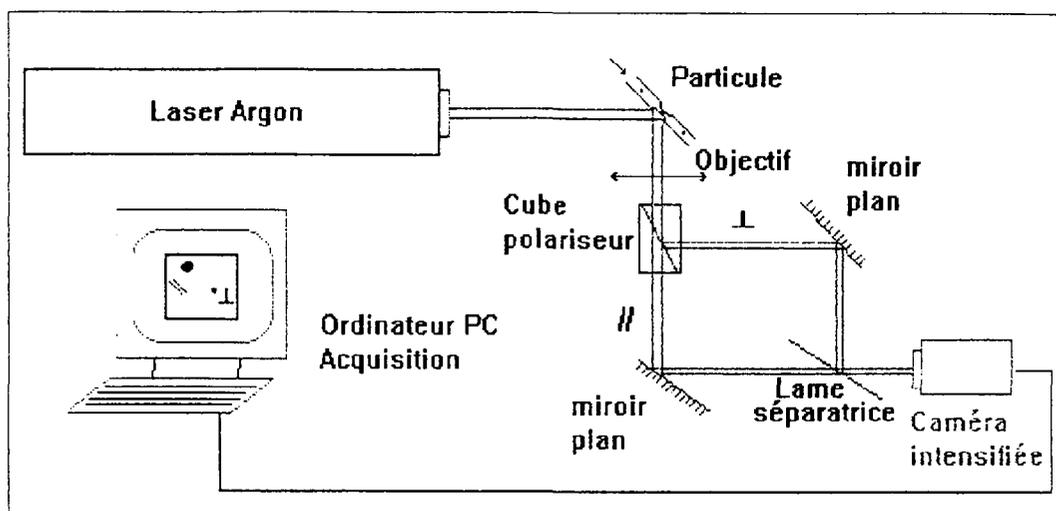


FIGURE 6: Appareillage réalisé

### III- Résultats obtenus

Les résultats ont été obtenus sur les particules de l'atmosphère du laboratoire. Le système d'acquisition utilisé est composé du micro-ordinateur PC 486 muni d'une carte d'acquisition IMAGINA VLB. Le logiciel d'acquisition et de traitement ayant été développé au laboratoire. L'image brute capturée derrière la caméra intensifiée est présentée sur la figure 8. Après avoir filtré le bruit, nous obtenons figure 9 une image composée de points verts et de points rouges (correspondant respectivement à la composante perpendiculaire et parallèle de la lumière diffusée). Il est alors possible de calculer le vecteur translation reliant une composante parallèle à son homologue perpendiculaire par calcul de la fonction d'autocorrélation. Nous déterminons alors figure 11 le taux de polarisation en fonction du nombre de particules. Connaissant la longueur d'onde utilisée de 488 nm, on en déduit figure 12 la granulométrie. Nous reconstruisons finalement l'image virtuelle composée de particules sphériques.

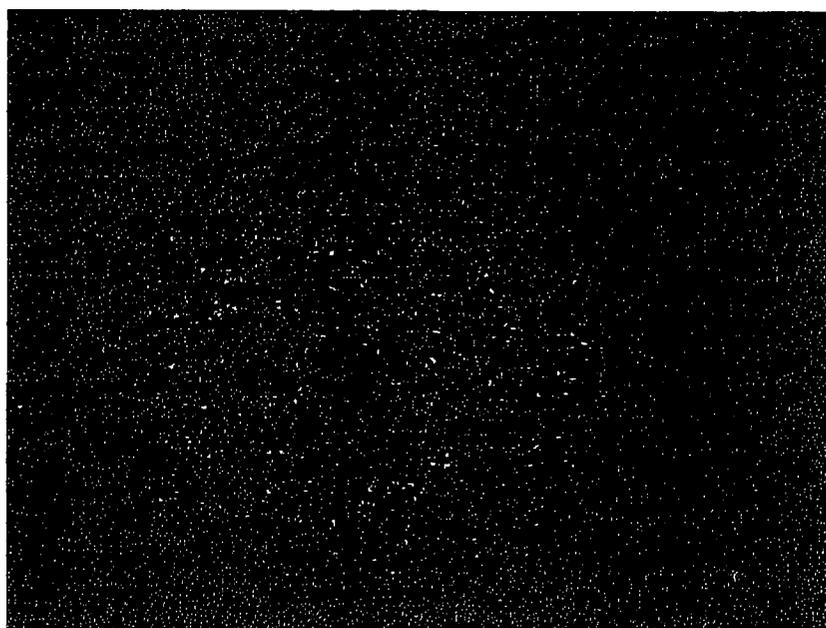
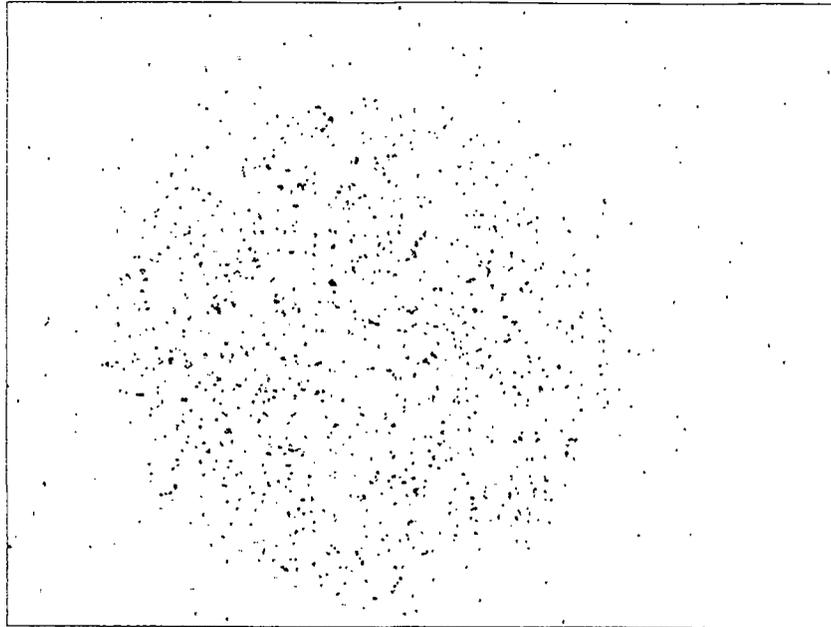
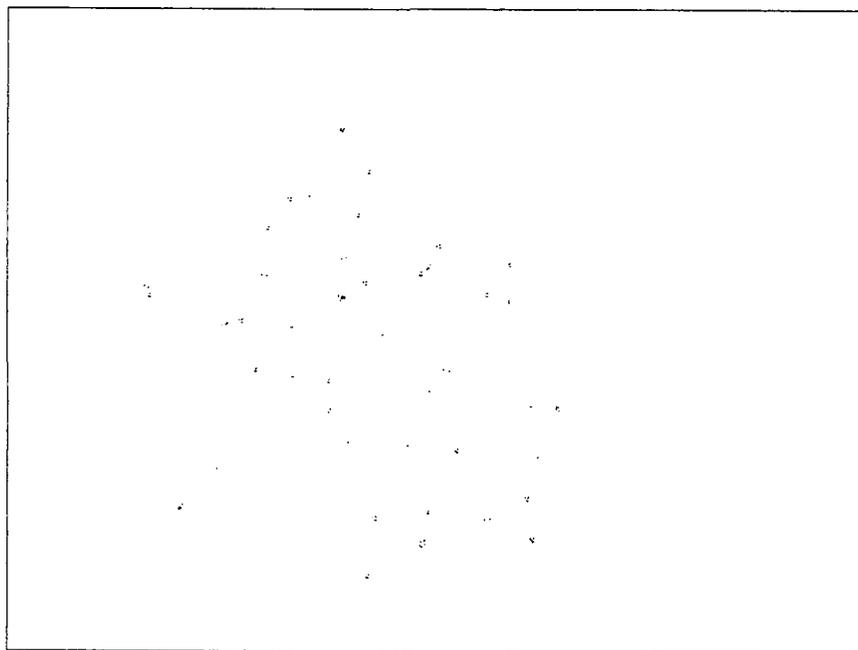


FIGURE 8: Superposition des composantes parallèles et perpendiculaires décalées spatialement (Image des particules de l'atmosphère du laboratoire).  
Image brute en fausses couleurs.



**FIGURE 9: Superposition des composantes parallèles (en vert) et perpendiculaires (en rouge) décalées spatialement (Image des particules de l'atmosphère du laboratoire). (Le fond noir a été transformé en blanc pour avoir une meilleur qualité d'impression).  
Image restaurée**



**FIGURE 10: Contours des particules appariées de l'image restaurée**

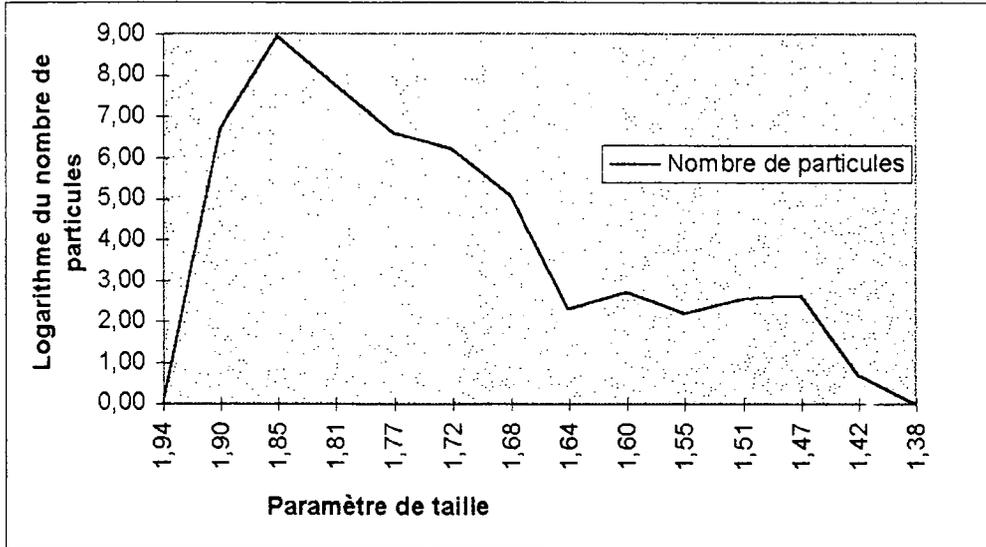


FIGURE 11: Nombre de particules en fonction du taux de polarisation.

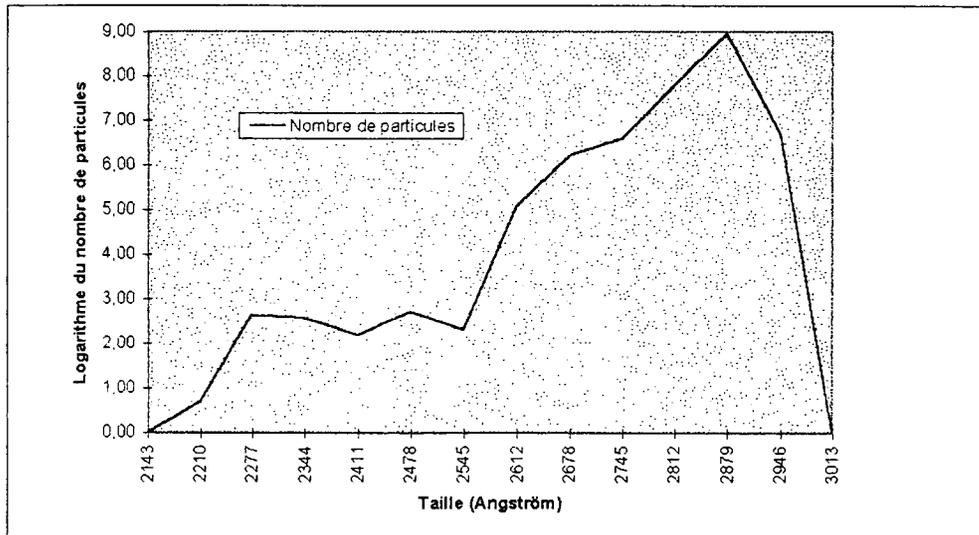


FIGURE 12: Granulométrie de l'atmosphère du laboratoire

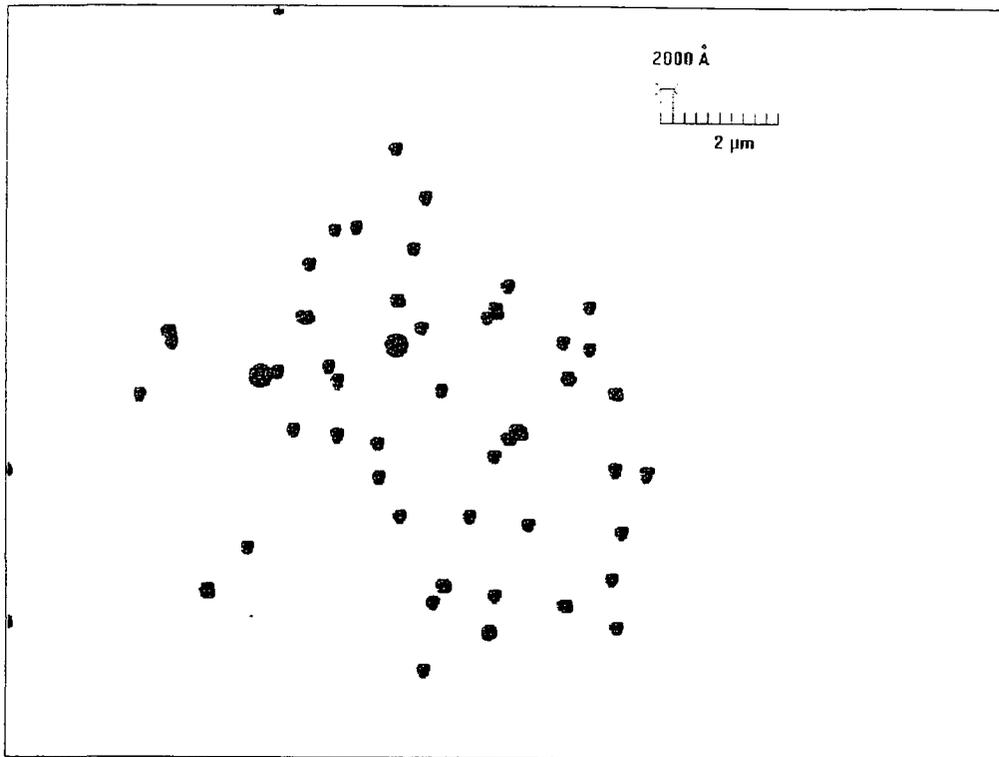


FIGURE 13: Image virtuelle reconstruite

#### IV- Conclusion et perspectives

Le système de mesure mis au point permet d'obtenir une vue spatiale de la granulométrie de particules submicroniques. Autrement dit le système est équivalent à un microscope qui aurait un pouvoir de résolution de l'ordre de  $100 \text{ \AA}$  ce qui évidemment est impossible à cause de la diffraction de la lumière.

La limite inférieure de granulométrie est actuellement de l'ordre de  $200 \text{ \AA}$ .

En choisissant l'angle de mesure entre  $80^\circ$  et  $89^\circ$ , on peut optimiser la précision des mesures sur une gamme de diamètres compris entre  $2000 \text{ \AA}$  et  $200 \text{ \AA}$ .

Les mesures effectuées sur des particules atmosphériques du laboratoire à un angle de diffusion de  $84^\circ$  montrent la présence de particules submicroniques dont la taille est approximativement  $2800 \text{ \AA}$ .

Les développements portent sur une acquisition et un traitement rapide des données afin de voir évoluer le diamètre des particules en temps réel [1 à 7].

**BIBLIOGRAPHIE:**Techniques de traitement numérique:

- [1] Techniques modernes de traitement numérique des signaux (1991)  
M. Kunt (Presses polytechniques et universitaires romandes)
- [2] Traitement numérique des images (1993)  
M. Kunt (Presses polytechniques et universitaires romandes)
- [3] Optimum classification of correlation-plane data  
by Bayesian decision theory  
B.F. Draayer, G.W. Carhart, M.K. Giles  
APPLIED OPTICS / Vol. 33, N° 14, 10 May 1994
- [4] Digital image restoration  
H.C. Andrews, B.R. Hunt  
Prentice-Hall, Englewood Cliffs  
New Jersey - Signal processing series (1977)
- [5] Survey of estimation techniques in image restoration  
H. Kaufman, A.M. Tekalp  
IEEE Control Systems Magazine, 11, 1, 16-24 (1991)
- [6] The mathematical theory of communication  
C.E. Shannon  
Bell. Syst. Tech. J., 27, July 1948,  
pp.379-423 and Oct. 1948, pp. 623-656
- [7] Communication in the presence of noise  
C.E. Shannon  
Proc. IRE, 37, Jan. 1949 pp. 10-21

Diffusion de la lumière:

- [8] Aerosol Measurement  
Principles Techniques and Application  
Klaus Willeke, Paul A. Baron  
Van Nostrand Reinhold
- [9] Light Scattering by Small Particules  
H.C. van de Hulst  
DOVER

[10] Light Scattering by Particules: Computational Methods  
P.W. Barber, S.C. Hill  
Advanced series in applied physics  
World Scientific

[11] Handbook of Optics  
Optical society of America  
Mac Graw Hill

Physique générale et polarisation:

[12] Cours de physique générale: Optique  
A. Kastler  
MASSON

[13] Berkeley cours de physique: Onde Vol. 3  
Collection Universitaire. Armand Colin

# Sur la Physique, la Chimie et la Toxicologie des aérosols atmosphériques fortement dispersés.

Première Part

## LES PROBLÈMES ENVIRONNEMENTELS

ON THE PHYSICAL, CHEMICAL, AND TOXIC PROPERTIES OF  
HIGHLY DISPERSED ATMOSPHERIC AEROSOLS

K.R. SPURNY

Aerosol Chemist, Eichenweg 6, 57392 Schmallenberg  
Germany

---

### ABSTRACT

Several chemical and epidemiological investigations have been done during the last decade showing that correlations do exist between ambient air concentrations of aerodisperse (particulate) pollutants and the health risk for the general population. Based on these recently published results there are on-going discussions and considerations proposing changes in air particulate pollution definitions, measurement, analysis and air quality standards. We summarize in this review the "chemical standpoint" of this problem and its impact on the measurement strategy and air quality standards.

### RÉSUMÉ

Dans plusieurs investigations chimiques et épidémiologiques, on a trouvé une corrélation positive entre la concentration des aérosols atmosphériques anthropogéniques (AAA) et le risque pour la santé de la population générale. Ce risque peut être bien observé aussi depuis des concentrations des AAA, qui sont plus basses que les limites -  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (la moyenne annuelle).

Cette problématique est actuellement discutée intensément parmi les environmentalists dans les États-Unis et en Europe.

Des aspects de la chimie et de la physique des aérosols sont décrits et discutés dans cette revue.

### INTRODUCTION

Recent epidemiological studies indicate health effects on general population at air particulate mass concentrations laying below the existing air quality standards. They indicate that increases in human mortality and morbidity have been associated with levels of air particulate pollution significantly lower than these previously thought to affect human health (1 - 6). Despite of some uncertainties, these new epidemiological data are considered sufficiently coherent for being considered as a serious basis for the re-evaluation of existing air particulate pollution philosophy and strategy.

In the majority of published papers, concentrations of the total aerosol (TSP-total suspended particulates) and/or the PM-10 fraction (air suspended particulates with an aerodynamic particle diameter less than 10  $\mu\text{m}$ ) were correlated to the observed health effects (Fig. 1) (7).

The detailed chemical compositions of the TSP or PM-10 were not considered (4). Nevertheless, this fact is a crucial point and deficiency of these studies. The air particulate mass, both TSP and PM-10, are in the matter of fact an insufficiently defined and obscure air pollution standard. It is the only ambient air standard that is not chemically specific (4).

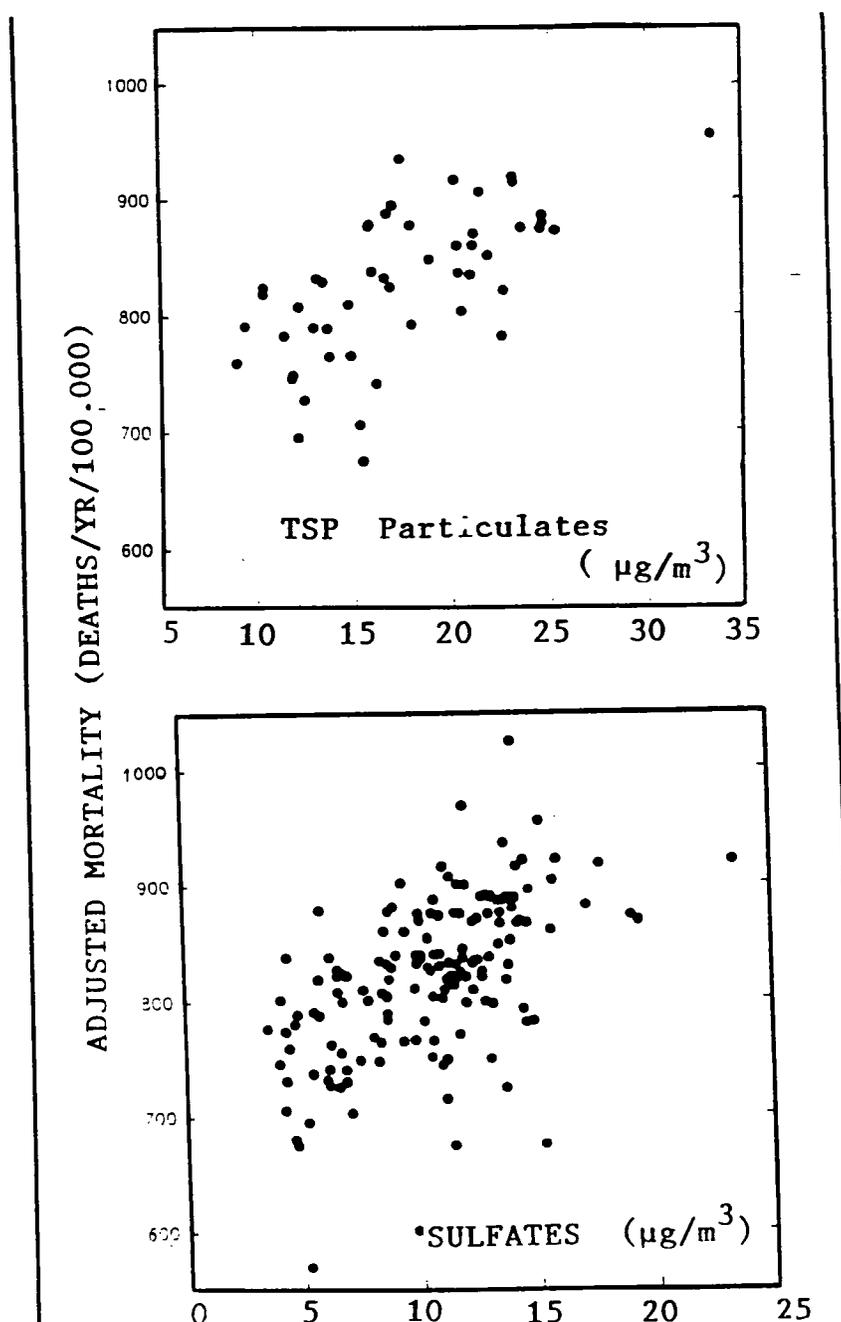


Fig. 1 : Examples of epidemiological data (8) showing correlations between the mortality and ambient air concentrations of TSP and sulfate aerosols.

Over the past few years a number of epidemiological studies have concluded that ambient air particulate exposure is associated with increased mortality and morbidity among the general population. The health effects were more aggravated for children, elderly and vulnerable sequences of populations (6).

These effects were observed at particulate mass concentrations as small as  $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (Fig.1, Tab. 1).

The involving mechanisms of these adverse effects are, nevertheless, practically unknown. There is toxicological evidence (animal inhalation experiments) for adverse health effects from polluted air and animal inhalation experiments with atmospheric particulates are in preparation. Numerous controlled toxicological investigations of individual chemical species have clearly shown that specific constituents of ambient air particulate matter are associated with adverse biological effects, including carcinogenicity.

**Table 1.**

Combined Effect Estimates <sup>1)</sup> of Daily Mean Exposure to Particulate Matter		
Health endpoint	# of studies	Attributive Risk per 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ PM10 [95% CI]
<b>Premature mortality:</b>		
- total deaths	8	1.0% [0.7% : 1.4%]
- respiratory deaths	4	3.3% [1.5% : 5.0%]
- cardiovascular deaths	4	1.4% [0.7% : 2.0%]
<b>Increase in hospital use (all respiratory):</b>		
- admissions	4	1.5% [0.2% : 2.8%]
- emergency department visits	3	1.8% [0.0% : 3.6%]
<b>Exacerbation of asthma<sup>2)</sup>:</b>		
- asthmatic attacks	3	4.4% [-2.0% : 11%]
- bronchodilator	3	7.0% [0.6% : 13%]
- emergency department visits	1	3.4% [0.9% : 6.9%]
- hospital admissions	3	1.9% [0.8% : 3.1%]
<b>Increase in respiratory systems reports<sup>2)</sup>:</b>		
- lower respiratory	8	3.8% [0.3% : 7.1%]
- upper respiratory	8	2.0% [-0.1% : 4.1%]
- cough	7	5.4% [-1.1% : 12%]
<b>Decrease in lung function<sup>2)</sup>:</b>		
- FEV <sub>1</sub>	3	0.20% [0.02% : 0.38%]
- PEF	7	0.12% [0.05% : 0.19%]

<sup>1)</sup> Adapted from: Dockery, D.W. and Pope III. Acute respiratory effects of particulate air pollution. *Annu Rev Public Health* (1994) 15: 107-132

<sup>2)</sup> among primary school children

## AIR PARTICULATE CHEMISTRY

The atmospheric anthropogenic aerosol (AAA) is a aerodispersed system of solid and liquid particles with different sizes, particle forms and shapes, and chemical compositions. Only few part

of these particles, mainly the primary ones, are single inorganic or organic compounds. The majority of these particles represent chemical mixtures. Also the chemical composition of single particles can be anisotropic—it means, the chemical composition is different on the surface and inside of particles.

The very fine particles form agglomerates and can adsorb or absorb volatile substances or gases. The AAA are produced in the atmosphere and undergo during their residence time to several physical, physico-chemical and chemical processes. Their resulting product is a polydisperse system of chemically heterogeneous particles with a complex toxic and carcinogenic potential. Biochemically active components may have been present at the particle surface or inside the particles (Table 2) (4).

The total AAA is a mixture of the primary and secondary aerosol and have a bimodal mass size distribution. As both components are of different origin, they have also different chemical composition (Fig. 2). The fine fraction of the AAA is associated with the most toxic, inorganic and organic air pollutants. This AAA fraction could be also designated as the "LUNG Toxic Mode Fraction" (LTMF) and could serve as a possible marker for the dosage of toxic and carcinogenic components of particulate air pollutants. For this reason, a standardized sampling of two mass fractions, e.g. PM-2.5 and PM-(2.5-10) seems to be necessary.

Very completed and accurate chemical analysis of the AAA samples is now well possible and useful for several basic studies in the atmospheric environment and in the toxicological research. Nevertheless, practical applications of such results in the health risk assessment is difficult.

For routine measurements and evaluation of the PM-2.5, the analysis or identification of some special markers could be a better and more useful approach for solving this problem. Besides the total mass of the PM-2.5, e.g. a continuous, in situ and online real time monitoring of carbon black and PAH-aerosols could be a complementary method. Another possibility could be the determination of free radical (hydroxyl radical) activity associated with PM-2.5. Last not least, the "in vitro" toxicity (mutagenicity) tests represent some other complementary method for the evaluation of the general and integrated biological activity of the PM-2.5 fraction.

### PARTICULATE AIR QUALITY STANDARDS

The existing air quality standards (AQS) were settled for the PM-10 particulate fraction (Table 3). These standards will need to be probably revised, because of the newest epidemiological data. Additionally a standard for PM-2.5 will be necessary.

Based on the existing data of recent epidemiological studies, the future AQS should be decreased. The AQS for PM-10 should be maybe as low as 10 to 20  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (annual mean) and the AQS for PM-2.5 could lay in the range of 5 to 10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . The additional AQS for e.g. carbon black could lay between 3 and 6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  and for the PAH-aerosol an annual value less than 50  $\text{ng}/\text{m}^3$  (and of about 5  $\text{ng}/\text{m}^3$  for BaP). Nevertheless, such proposals and their legislation will need still more scientific support, motivation and economic consideration.

Table 2.

<u>WHAT IS IN PM10?</u>	
TRACE METALS & METAL IONS	
CARBON PARTICLES	
PRODUCTS OF INCOMPLETE COMBUSTION	
PHOTOCHEMICAL REACTION PRODUCTS	
NITRATES	
SULFATES	
ROAD DUST & FINE SOIL	
BIOLOGICAL MATERIALS	
<u>PLUS CO-POLLUTANTS</u>	
OZONE	
SULFUR DIOXIDE	
NITROGEN OXIDES	
ORGANIC VAPORS	
CARBON MONOXIDE	
ACIDS	
FREE RADICALS	
FORMALDEHYDE	

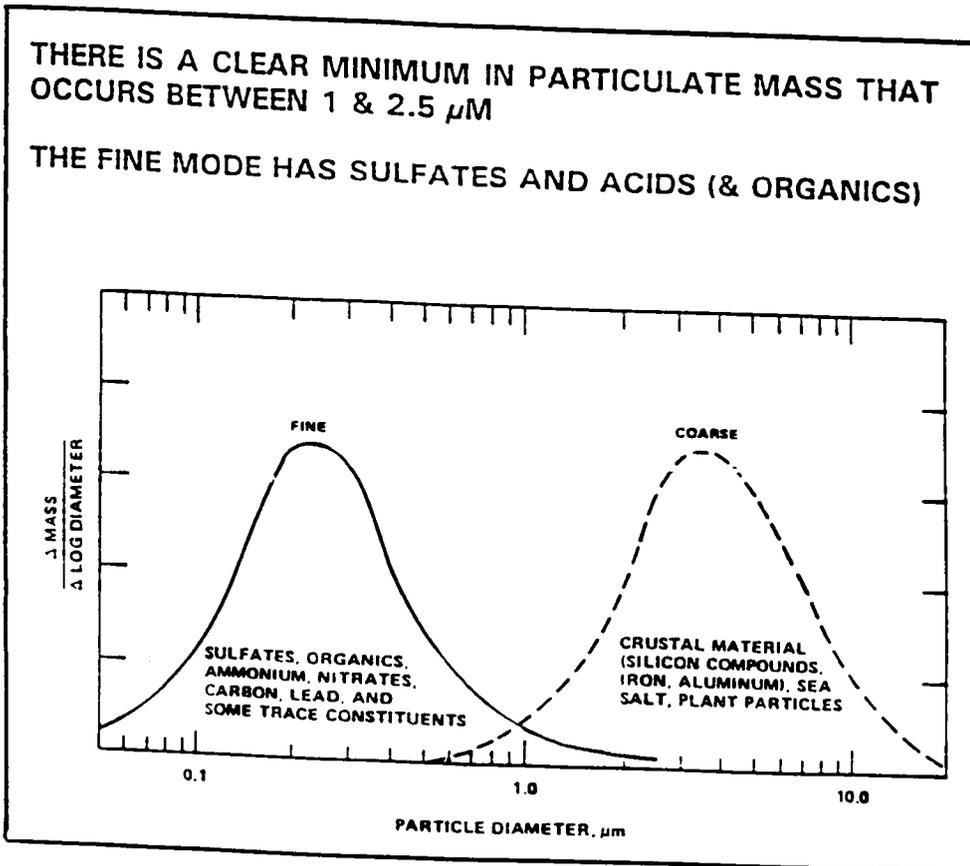


Fig. 2 :Bimodal characterization of the AAA and the size dependent chemical composition(3).

Table 3.

<u>AIR QUALITY STANDARDS FOR PM10 USA</u>		
<b>NATIONAL AMBIENT AIR QUALITY STANDARDS (NAAQS)</b>		
24 HR	PM10	150 $\mu\text{G}/\text{M}^3$
ANNUAL	PM10	50 $\mu\text{G}/\text{M}^3$
<b>CALIFORNIA AMBIENT AIR QUALITY STANDARDS</b>		
24 HR	PM10	50 $\mu\text{G}/\text{M}^3$
ANNUAL	PM10	30 $\mu\text{G}/\text{M}^3$

### CONCLUSIONS

The results of several recent published epidemiological studies report increases in human mortality and morbidity associated with levels of particulate air pollution significantly lower than thought previously to affect human health. Results of these studies suggest new definitions for atmospheric particulate pollutants, new sampling and measurement methodology and revision of the existing AQS.

### REFERENCES

1. J.R.Withey(1989).A Critical Review of the Health Effects of atmospheric Particulates.Toxicol.Ind.Health 5,519-554.
2. K.R.Spurny(1993). Atmospheric Anthropogenic Aerosols and their Toxic and Carcinogenic Components.Wissenschaft und Umwelt,ISU 2,139-151.
3. R.F.Phalen(1994)PM-10 Health Effects.Scientific Issues and Uncertainties.4 th Int.Aerosol Conference.Los Angeles 964-965.
4. S.K.Friedlander and M.Lippmann(194).Revising the Particulate Ambient Air Quality Standards.Enviroin.Sci.Technol. 28,148A-150A.
5. R.B.Schlesinger(1995).Toxicological Evidence for Health effects from Inhaled Particulate Pollution.Inhalation Toxicology 7,99-109.
6. J.Schwartz(1993)Particulate Air Pollution and Chronic Respiratory Disease.Enviroin.Res.62,7-13.
7. C.A.Pope III(1995)Review of Epidemiological Evidence of Health Effects of Particulate Air Pollution. Inhalation Toxicol. 7,1-18.
8. C.A.Pope III.,M.J.Thun,M.M.Namboodiri,D.W.Dockery,J.S.Evans, F.E.Speizer and C.W.Heath(1995).Particulate Air Pollution as Predictor of Mortality in a Prospective Study of US Adults. Am.J.Respir.Crit.Care Med. 151,669-674.

# GENERALISATION DE L'ANALYSE MULTIELEMENTAIRE PAR FLUORESCENCE X DES FILTRES EN FIBRE PAR LA METHODE DE TRANSMISSION (AFNOR X 43027)

J.P. QUISEFIT, J.B. CREPIN et P. De CHATEAUBOURG

Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA)

Université Paris 7 et Paris 12 - URA CNRS 1404

61, avenue du Gal de Gaulle - 94010 Créteil Cedex- France

Téléphone : (1) 45 17 15 22 - Télécopie : (1) 45 17 15 20 - Mail : quisefit@univ-paris12.fr

**Résumé :** les normes AFNOR, de prélèvement (X43021) et d'analyse par SAA (X43026) régissent le contrôle du plomb des poussières atmosphériques depuis une vingtaine d'années. Le nombre croissant d'échantillons à analyser et les contraintes et inconvénients liés à la mise en solution, destructrice, ont incité l'AFNOR à mettre en place la norme X43027 pour l'analyse du plomb par SFX, méthode rapide, économique et surtout conservatrice. L'utilisation de filtres en fibre de cellulose donnent lieu à divers effets perturbateurs X qui doivent être potentiellement corrigés. Les éléments polluants sont généralement dans des particules fines pénétrantes alors que les éléments des poussières crustales sont plus grosses et restent plus en surface. Un effet d'écran et d'absorption X, variable, peut se produire d'autant plus que le signal X mesuré est d'énergie faible et que la charge globale de poussière est importante. De plus, de nombreux éléments sont aujourd'hui d'intérêt. Cette étude illustre la généralisation du protocole de correction par la méthode de transmission.

**Abstract :** the procedures to collect and analyse by AAS the particulate Lead in atmosphere are described in normative text AFNOR X43021 and X43026. To solve the problems of analytical cost and the definite loss of sample, AFNOR create recently the normalised X-ray Fluorescence analytical procedure X 43027. As now, many elements are of interest, this study illustrates the generalisation of the correction method which is needed to solve a few matrix problems : screen effect between coarse and fine particles which penetrate differently in the structure of the cellulose filters and absorption effect in relation with the total collected particulate matter. We use for that the transmission method and check this ability to measure these perturbing effects.

## 1. INTRODUCTION

L'analyse chimique élémentaire des filtres de poussières atmosphériques par Spectrométrie de Fluorescence X a été effectuée ces dernières années en utilisant préférentiellement des filtres en film, de type polycarbonate. Ces films ont la particularité de ne pas présenter de ségrégation interne de la matière et donc d'effet de matrice. Ils sont donc dosés strictement selon la méthode de la couche mince [1, 2].

Un des avantages particulièrement intéressant de ce type de filtre réside dans l'excellente qualité des seuils de détection élémentaires que l'on peut atteindre : de 0,1 à 50 ng par élément sur le filtre, pour une minute d'analyse avec une source standard rhodium, liés à la faible quantité de matière diffusante du support donnant lieu à des bruits de fond particulièrement bas.

Notre laboratoire a récemment développé, pour doser ce type de supports filtrants, une méthodologie d'étalonnage et de re-calibrage basée sur l'utilisation d'échantillons massifs définis comme "équivalents filtres" [3, 4]. Cette méthode est intégrée à la norme AFNOR X43027 de l'analyse par SFX du plomb particulaire.

Par contre, un de ces inconvénients réside dans le prix de l'échantillon, près de 25 francs par membrane montée sur support Fil-Clip [5]. Historiquement, la membrane en fibre de cellulose a été privilégiée pour les échantillonnages (AFNOR X43021 et X43022) car économique et permettant une mise en solution (AFNOR X43026) pour une analyse par Spectrométrie d'Absorption Atomique.

De plus, ce type de filtre permet un échantillonnage d'une plus grande quantité de poussière et donc d'un grand volume d'air grâce à la très faible perte de charge initiale du média filtrant. Il permet donc de satisfaire à la norme d'échantillonnage qui impose 36 m<sup>3</sup> d'air journalier.

La mise en place, en 1994, de la norme d'analyse par Spectrométrie de Fluorescence X du plomb particulaire (AFNOR X43027) a en partie résolu les problèmes inhérents à la SAA, notamment le handicap de destruction de l'échantillon, permettant ainsi de satisfaire également à la notion d'archivage.

Cependant, l'énergie mise en jeu lors de l'analyse du plomb en raie L $\beta_{1,3}$  est telle, que la plupart du temps, l'absorption par l'ensemble "membrane plus poussière collectée" est quasiment insensible. Il n'en est pas forcément de même, par contre, pour l'analyse des éléments plus légers.

Les éléments sont intégrés à des poussières dont la taille est elle même liée à leur mode de génération [6]. On trouve ainsi des poussières de forte granulométrie (>2  $\mu\text{m}$ ) associant les éléments dits terrigènes dans les poussières de sols (Si - Al - Ca - Fe - Ti ...) par exemple et des poussières plus fines issues de procédés chimiques comme la condensation de haute température - pollution (S - Cl - Pb - Zn...) et généralement submicroniques.

Or, plus les particules sont fines plus elles pénètrent dans la structure du média filtrant, nous aboutissons alors à un second effet de matrice. On peut constater un effet d'écran plus ou moins prononcé émanant des aluminosilicates sur les éléments des composés de pollution. Une analyse qui ne corrigerait pas cet effet aboutirait donc à des résultats évidemment erronés.

## **2. PROTOCOLE ANALYTIQUE DE CORRECTION DES EFFETS DE MATRICE**

Nous avons testé les protocoles analytiques de correction d'absorption - transmission, initialement décrits par Leroux et Mahmud [7], pour des éléments mettant en jeu une large gamme d'énergie en fluorescence X : S, Cl, K, Fe, Zn et Pb.

Cette gamme ne représente pas tous les éléments analysables par SFX mais n'est ici choisie que pour illustrer les capacités de correction de la méthode sur des éléments de particules soit fines soit plutôt grosses, et représentant également en fluorescence X un domaine d'énergie assez large : de 2 à 15 keV.

Cette méthode vient d'ailleurs d'être appliquée avec succès à des filtres, en film polycarbonate, très chargés en poussières sahariennes et collectées aux Iles du Cap Vert [8].

Nous avons également appliqué la méthode de Elichegaray et al. [1] pour le contrôle de l'effet d'écran sur les filtres en fibre par la mise en oeuvre de la méthode dite du rapport "recto-verso".

### **2.1. Echantillons tests**

Dix échantillons de filtration de poussières atmosphériques ont été spécialement collectés sur des membranes en acétate de cellulose avec des volumes allant de 7m<sup>3</sup> à 53 m<sup>3</sup> afin de considérer des quantités de poussières très variées. Ils ont été échantillonnés durant des situations météorologiques différenciées : les échantillons E-1 à E-6 en situation dépressionnaire ( temps couvert ou pluvieux ) et E7 à E10 en situation anticyclonique

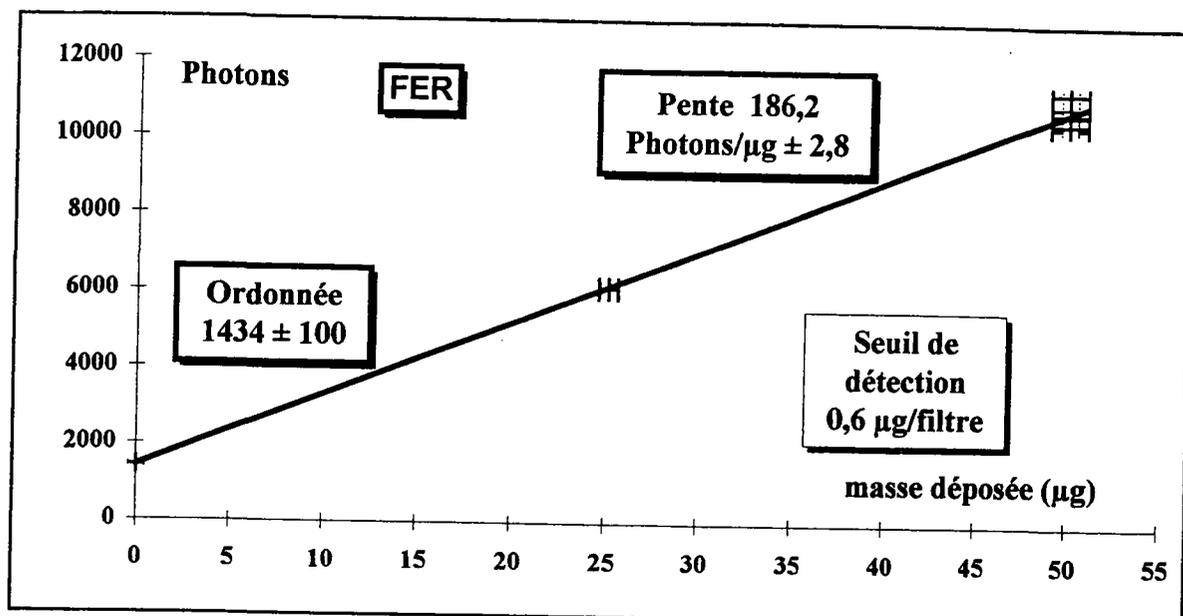


Figure N° 1 : Etalonnage du fer sur membrane WATHMAN 541 avec une excitation Cr latérale ( $450 \mu\text{m Be}$ ), avec le cristal LiF (200) et un temps d'analyse 30 sec.  
Calibration for Iron on WATHMAN 541 filter with lateral Cr tube ( $450 \mu\text{m Be}$ ), LiF(200) Crystal and an analytical time 30 sec.

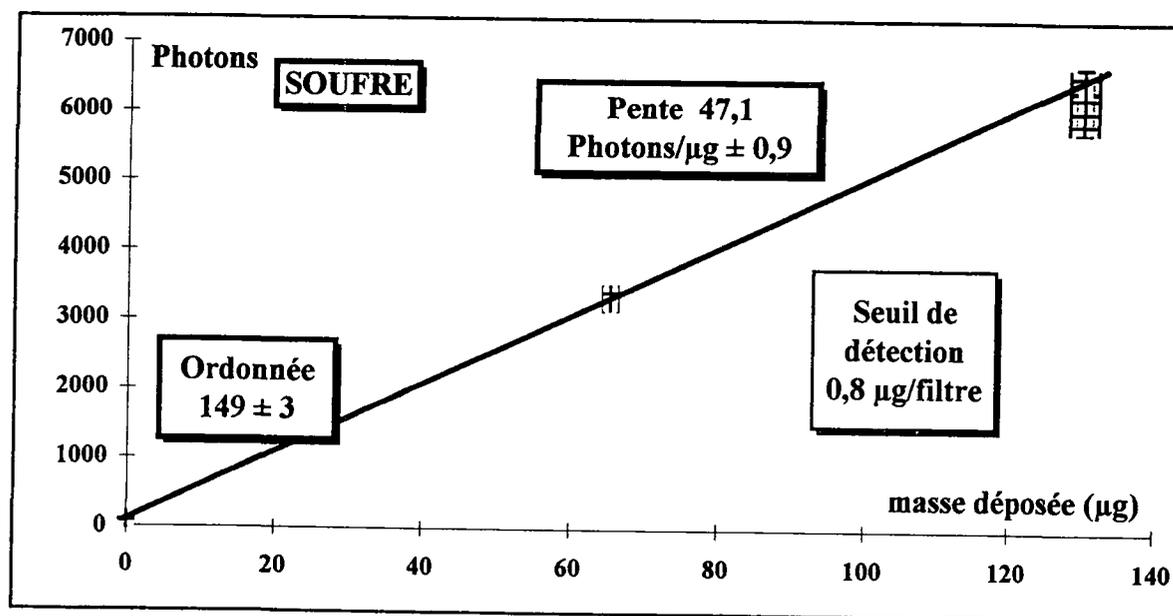


Figure N° 2 : Etalonnage du soufre sur membrane WATHMAN 541 avec une excitation Cr latérale ( $450 \mu\text{m Be}$ ), avec le cristal Pet et un temps d'analyse 30 sec.  
Calibration for Iron on WATHMAN 541 filter with lateral Cr tube ( $450 \mu\text{m Be}$ ), Pet crystal and an analytical time 30 sec.

enseillée, gages de sources polluantes et de charges en poussière différentes. La période de collecte a eu lieu entre le 25 avril et le 10 mai 1995 à Paris, sur le site du campus JUSSIEU.

Enfin, afin de s'assurer de l'efficacité de filtration de ce type de support, nous avons effectué, pour les échantillons E-4 à E-10, une seconde filtration en aval du premier filtre, dite "On-Line" permettant d'évaluer si des poussières sont passées au travers des filtres de premier rang. Les analyses sur ces seconds filtres seront surtout menées sur les éléments types fines particules (S, Cl, et potassium).

## 2.2. Fabrication des étalons :

La fabrication des étalons a été effectuée de façon très classique par imprégnation avec 50 µl de solution déposés au centre de filtres. Les solutions sont fabriquées à partir de sels simples : PbNO<sub>3</sub>, NaCl, K<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, Fe attaqué à l'HCl, ZnSO<sub>4</sub>... Cette quantité de 50 µl a été choisie afin que la surface imprégnée soit équivalente à celle du dépôt de poussière.

Cependant, plusieurs étalons de chaque valeur ont été fabriqués pour permettre de quantifier les écarts dus à l'effet de chromatographie affectant parfois les filtres ainsi qu'aux écarts éventuels de la micropipette.

## 2.3. Analyses :

Les analyses ont été menées sur un spectromètre ancien CGR alpha 10 équipé pour la circonstance des tubes Cr ou Mo, des cristaux LiF (220), LiF(100), Ge et Pet, de deux collimateurs (fin et large) et des deux compteurs CPFPG Ar-CH<sub>4</sub> et Scintillateur en tandem.

La puissance maximale utilisée a été fixée à 1600 W, répartie de façon classique en courant et tension vis à vis des éléments à doser.

## 2.3 Calibrage :

Les figures N° 1 et N° 2 illustrent l'étalonnage obtenu sur le fer et le soufre.

Analyse sur 20 secondes, en tube chrome à fenêtre latérale (450 µm de béryllium) collimateur fin, rotation d'échantillon, compteur à flux gazeux Ar-CH<sub>4</sub> (90-10)

Fer :	pente = 182,2 ( ± 2,8) photons /µg	fond = 1434 ( ± 100)	SD = 0,6 µg/Filtre
Soufre :	pente = 47,1 ( ± 0,9) photons /µg	fond = 149 ( ± 3)	SD = 0,8 µg/Filtre

## 2.4 Mesure de transmission :

La méthode de transmission, présentée par Leroux et Mahmud dès 1966, a été appliquée à ces échantillons de filtres selon leur protocole adapté à des filtres et illustré par la figure N° 3.

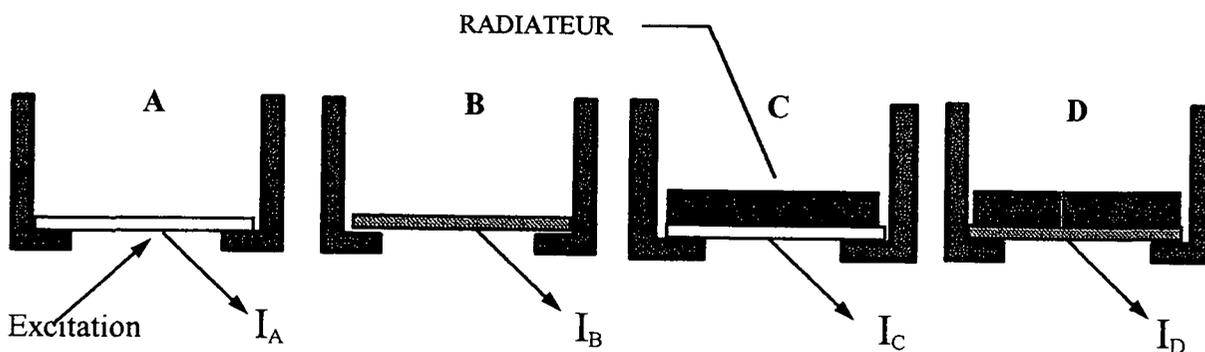


Figure N° 3 : Principe de l'application de la méthode de transmission pour la détermination de la correction d'absorption perturbant l'analyse en couche intermédiaire.  
Principle of "Absorption-Transmission method to Wathman filter.

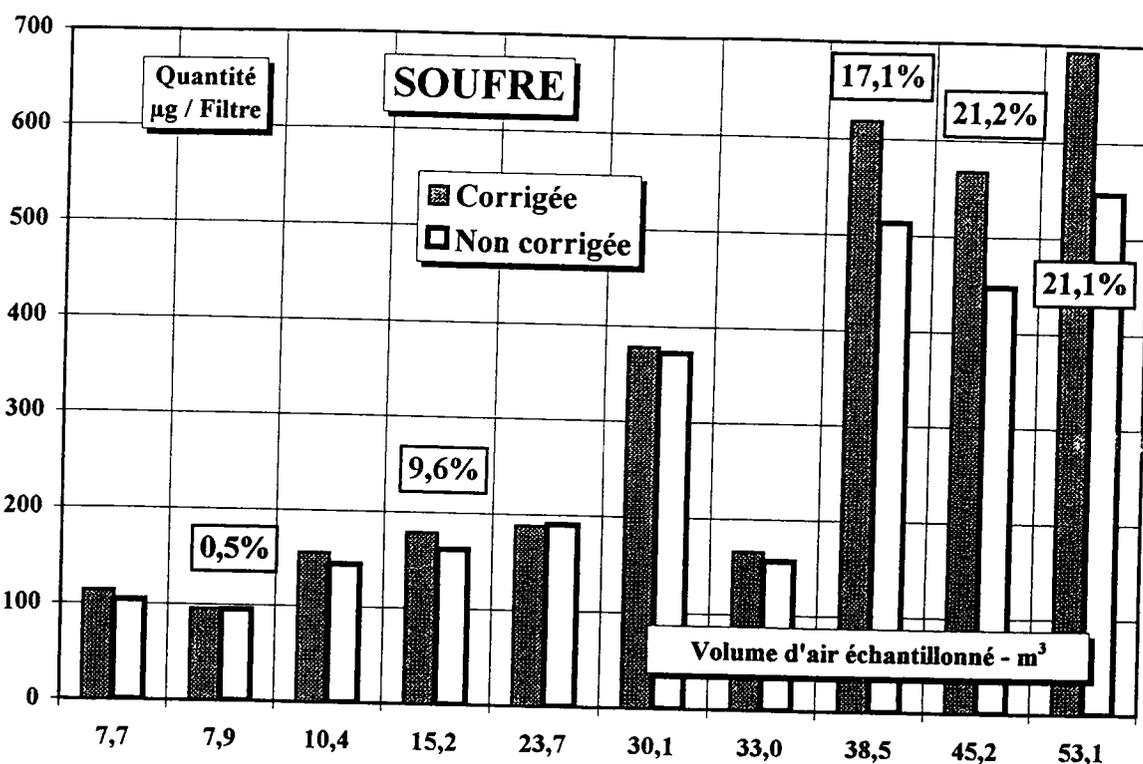


Figure N° 4 : Comparaison entre Correction et "Non Correction" sur le dosage du soufre  
Comparison between corrected and non corrected values on analyse of sulfur.

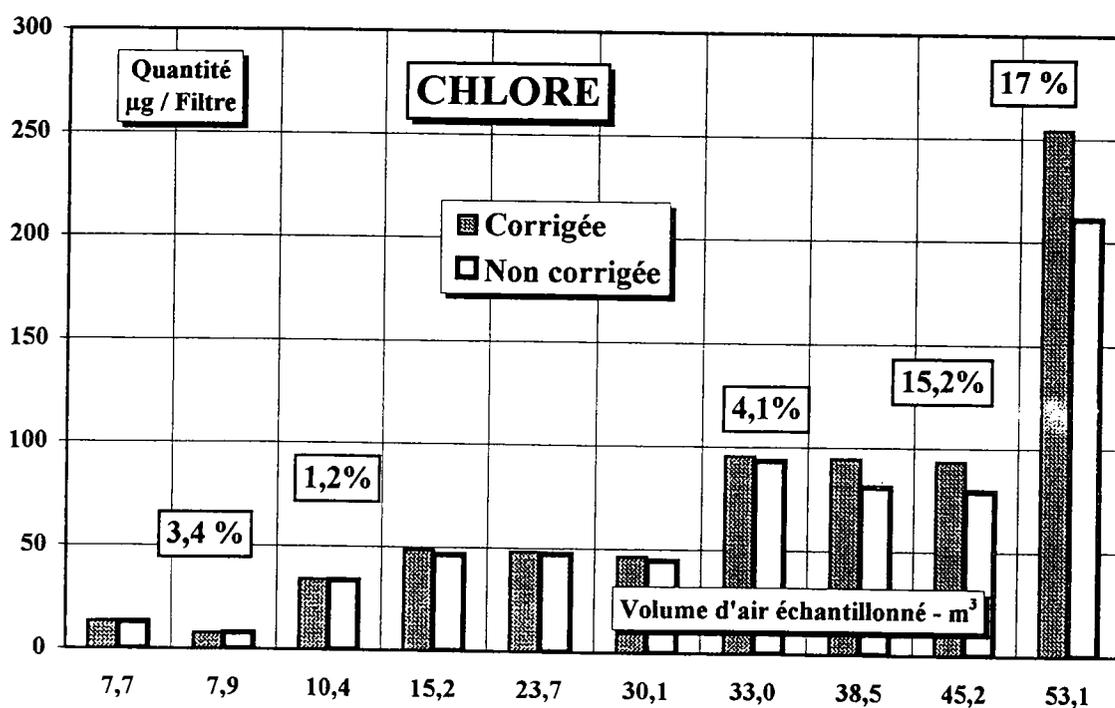


Figure N° 5 : Comparaison entre Correction et "Non Correction" sur le dosage du chlore  
Comparison between corrected and non corrected values on analyse of Chlorine.

Dans le cas d'une analyse en couche mince stricte, la quantité de matière est suffisamment faible pour que deux mesures seulement suffisent pour déterminer le signal net sur la raie de fluorescence choisie. La membrane vierge permet de chiffrer l'effet bruit de fond ( $I_A$ ) et l'échantillon est mesuré dans les mêmes conditions ( $I_B$ ). L'intensité nette est donc  $I_B - I_A$ . Pour déterminer si l'ensemble "membrane + matière filtrée" affecte d'un effet d'absorption cette intensité nette, deux autres mesure sont nécessaires avec ce que l'on appelle un radiateur.

Ce radiateur doit amener un surcroît de signal mesurable dans tous les cas lorsqu'il est placé derrière n'importe lequel des échantillons ou blanc. Dans notre cas, nous avons choisis de placer un bloc de pyrite (sulfure de fer  $FeS_2$ ) minéral bien connu des minéralogistes et qui présente l'avantage de permettre la correction pour 2 éléments simultanément ou du moins avec le même radiateur : le fer et le soufre.

La méthode oblige donc à se procurer des radiateurs de tous les éléments d'intérêt. La mesure ( $I_C$ ) permet de savoir comment l'ensemble "radiateur + filtre vierge" se comporte. La quatrième mesure ( $I_D$ ) cumule l'effet de fluorescence de l'élément sur le filtre échantillon plus le signal du radiateur absorbé à la fois par la membrane et la poussière collectée. La transmission peut donc être déterminée par la formule :

$$T = (I_D - I_B) / I_C$$

Il a été démontrée que le facteur de transmission  $F(T)$  s'exprime comme :  $F(T) = (1-T) / -\ln T$

Pour donc obtenir l'intensité corrigée des effets d'absorption, il suffit dès lors de calculer :

$$I \text{ corrigée} = I \text{ mesurée} / F(T) = (I_B - I_A) / F(T)$$

Nous sommes maintenant en mesure de présenter une méthodologie analytique qui prendra en compte tous les effets de matrice affectant les échantillons en fibre.

Pour illustrer cette méthode, nous avons représenté sur les Figures N° 4 - 5 les quantités dosées sur les dix échantillons précédemment présentés, pour le soufre et le chlore. Nous avons également indiqué l'importance relative que pouvait prendre l'effet d'absorption et donc l'erreur potentielle pour un certain nombre de cas illustratifs.

Plusieurs remarques peuvent néanmoins être facilement déduites de cette rapide étude :

- plus le volume d'air échantillonné est important et plus la correction devient évidemment nécessaire. Pour les éléments présentés, elle atteint près de 20% dans certains cas.

- lorsque l'on échantillonne de faibles quantités d'air, l'effet d'absorption peut être considéré comme négligeable. Mais il ne faut pas oublier que si on s'intéresse à des éléments encore moins énergétiques tels le silicium ou le magnésium, l'effet peut être significatif même pour ces échantillons à faible volume collecté.

En ce qui concerne le premier élément d'intérêt, le plomb, la figure N° 6 nous montre qu'entre correction et hypothèse de pure couche mince, les erreurs sont négligeables. Les corrections sont généralement insignifiantes, car toujours inférieures au pourcent relatif.

Par contre, si on envisage un éléments de transition comme le fer, on peut s'apercevoir, comme illustré sur la figure N° 7, que les corrections peuvent atteindre des amplitudes supérieures à ce que l'analyste environnemental souhaite respecter, à savoir 5 % relatif.

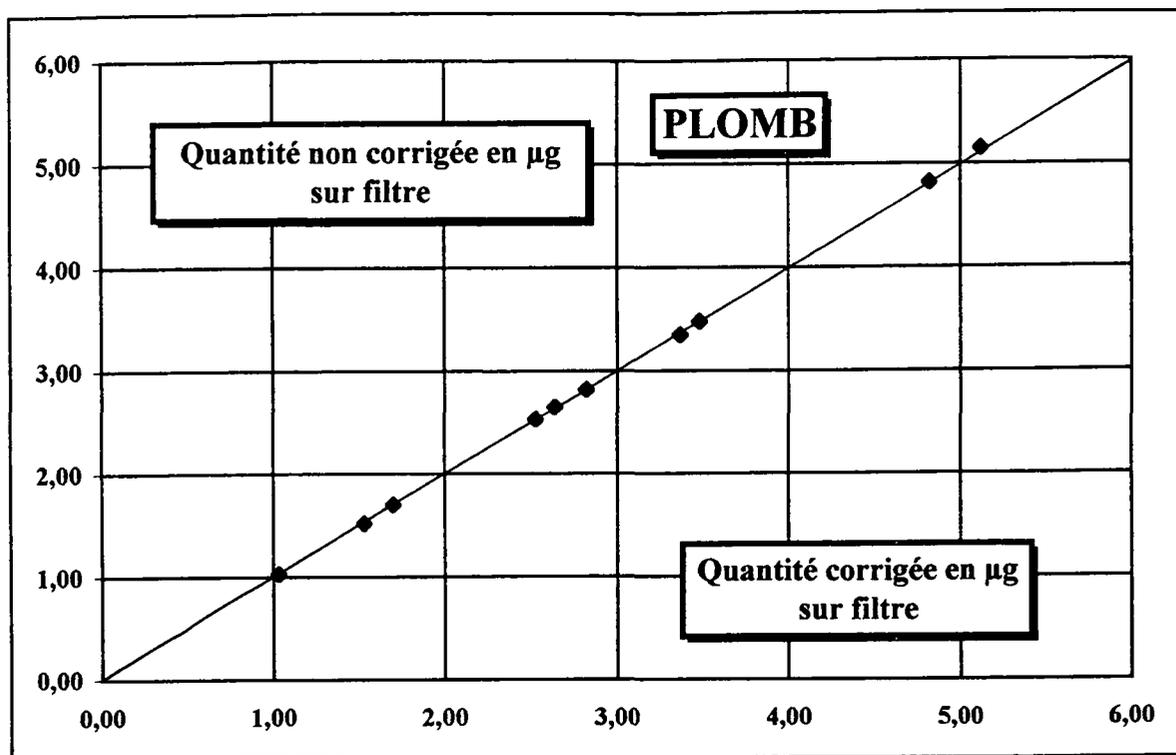


Figure N° 6 : Illustration de l'effet quasiment nul de l'absorption pour l'analyse du plomb  
 Non significance of the correction for the analysis of particulate Lead.

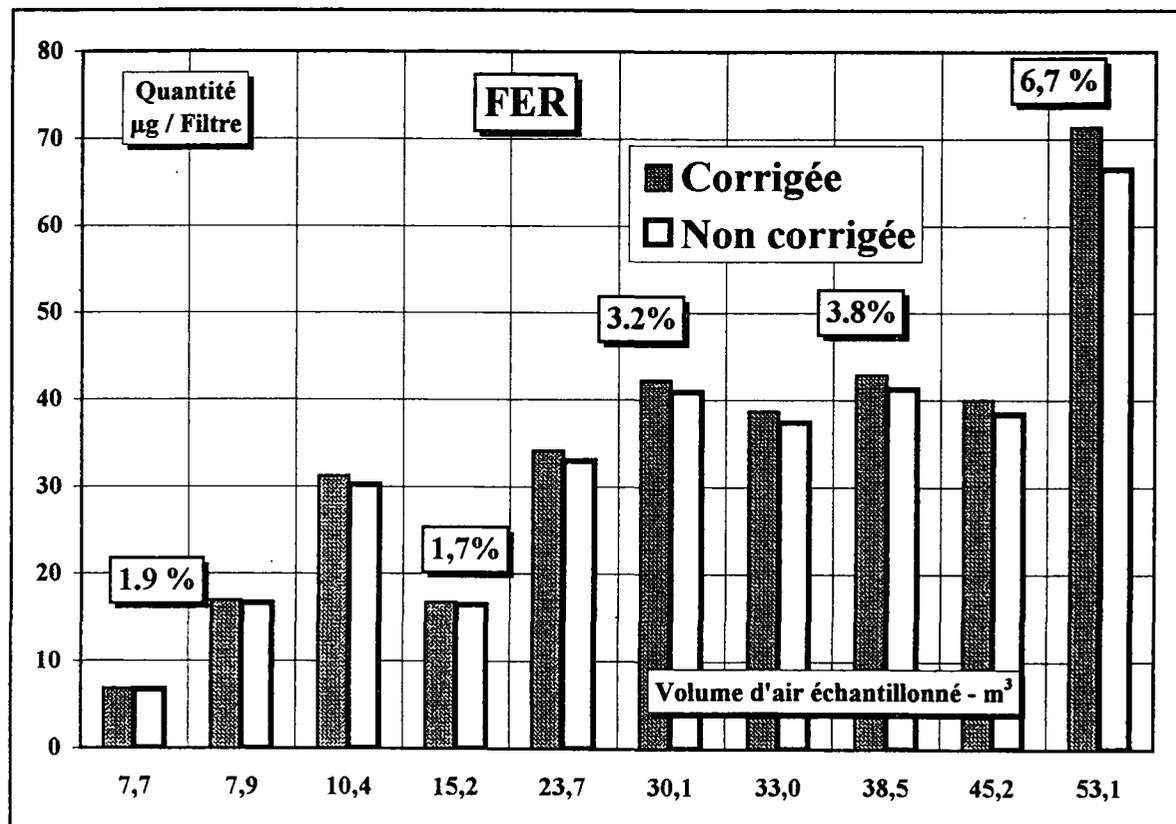


Figure N° 7 : Comparaison entre correction et non correction sur le dosage du fer  
 Comparison between corrected and non corrected values on analyse of Iron.

### 3 CONCLUSION

Les erreurs dues à l'absorption ou à l'effet d'écran peuvent atteindre dans certains cas 90 %, soit une valeur non corrigée de 10 % seulement de la valeur réelle, la méthode de double mesure permet de corriger très significativement les effets perturbateurs.

La mise en oeuvre présentée ici ayant été effectuée sur un spectromètre très ancien, il est évident qu'avec des conditions d'excitation modernes, des sources frontales à fenêtre mince notamment, les seuils de détections sont entre deux et dix fois meilleures.

Une autre nécessité pour une mise en oeuvre plus rapide de la méthode, avec un spectromètre automatique, consiste à disposer d'un radiateur multi-éléments adapté à tous les éléments à doser. La solution à ce problème a déjà été mise en oeuvre pour la recalibration des spectromètres de fluorescence X par de Chateaubourg et al [3], il suffit d'utiliser une perle synthétique dopée plus fortement que dans le cas de son étude de pure couche mince.

### Références

- [1] Elichegaray C, Dutot A., Grubis B et Vie le Sage R., Dosage par spectrométrie de fluorescence X des aérosols atmosphériques, *Analisis*, 9, (1981), 492-497
- [2] Losno R., Bergametti G. et Mouvier G., Determination of optimale conditions for atmospheric aerosols analysis by X-Ray Fluorescence, *Environ. Technol. Letter*, 8, (1987), 77-86
- [3] De Chateaubourg P., Quisefit J.P., Garivait S., Steiner E. et Goyon C., La Spectrométrie de Fluorescence X et l'analyse quantitative des microquantités, *Analisis*, 21, (1993), 293-298
- [4] Quisefit J.P., De Chateaubourg P., Garivait S. et Steiner E., Quantitative analyses of aerosols filters by wavelength dispersive X ray spectrometry from bulk referrece samples, *X Ray Spectrometry*, 23, (1994), 59-64
- [5] Prigent H et Quisefit J.P., brevet BF 8603343 du 10/03/86
- [6] Whitby K.T., The physical characteristics of sulfur aerosols, *Atmos Env.*, 12, 135-159
- [7] Leroux J et Mahmud M., X-ray Quantitative analysis by the Emission-Transmission Method, *Anal Chem.* 38, (1966), 76-82
- [8] Chiapello I., Bergametti J., De Chateaubourg P et Quisefit J.P., Analysis of atmospheric aerosol by X-Ray fluorescence spectrometry : controle and correction of the sample absorption effect., *X Ray Spectrometry*, soumis

# DETERMINATION DES DISTRIBUTIONS DIMENSIONNELLES DES AEROSOLS A PARTIR DE DEUX ALGORITHMES D'INVERSION NON-LINEAIRE APPLIQUES A PLUSIEURS DISPOSITIFS D'ECHANTILLONNAGE.

C. DROAL , G. TYMEN

U.B.O., L.P.A.R.A., FACULTE DES SCIENCES, 6 AVENUE LE GORGEU, BP 452, 29275 BREST.

## ABSTRACT

In the physics of aerosols, reconstructing a size distribution spectrum is not easy task. It can be fulfilled by processing with a non-linear inversion method the numbers or the masses of particles sampled with a device whose response has been modeled. Choosing the inversion method to be used was of the utmost importance for the reconstructed spectrum depends on it. In fact, several mathematical solutions can fulfill an inverse and ill-posed problem solved by such a method.

The mathematical processing that we have developed to compare the spectra obtained from two algorithms adapted to various sampling devices is described in this paper.

## INTRODUCTION

Les spécialistes de la Physique des Aérosols savent qu'il n'existe pas de dispositif unique capable de restituer la distribution granulométrique d'un nuage d'aérosols sur l'ensemble du spectre qui peut recouvrir 6 décades. Néanmoins, comme les principes physiques qui régissent la collection des aérosols sont étroitement liés à la taille des particules, il est possible, à partir de certains d'entre-eux, de restituer le spectre dimensionnel des particules échantillonnées. Pour ce faire, on utilise en général une méthode d'inversion non-linéaire ; ce qui n'est pas sans poser de problèmes.

Dans cet article, on se propose, après une brève description des deux algorithmes que nous utilisons (l'algorithme de TWOMEY et la méthode de déconvolution "EXTREME VALUE ESTIMATION"), de décrire la procédure que nous avons mise au point permettant de restituer le spectre dimensionnel de particules échantillonnées au moyen de 4 dispositifs. Il s'agit :

- d'une batterie de diffusion couplée à un compteur de noyaux pour la détermination du spectre dimensionnel des fines particules,
- d'une batterie de sédimentation pour l'étude de la granulométrie des particules inertes et viables,
- d'un spectromètre diffusionnel et inertiel SDI-2001 et d'un impacteur à basse pression (de type BERNER LPI 30) pour la caractérisation en masse du spectre granulométrique des particules inertes.

Ensuite, nous présentons notre étude de simulation grâce à laquelle nous avons pu comparer les performances des deux algorithmes utilisés.

## RESTITUTION D'UN SPECTRE GRANULOMETRIQUE

La connaissance de la fonction efficacité de collection d'un dispositif en fonction du diamètre des particules permet de décrire mathématiquement, à l'aide de l'équation de FREDHOLM (TWOMEY, 1963), les masses ou les nombres de particules collectées. Dans un dispositif d'échantillonnage à  $n$  canaux, l'ensemble des quantités d'aérosols mesurés dans chacun d'eux s'exprime par :

$$F(i) = \int_{d_p \min}^{d_p \max} K(i, d_p) f(d_p) dd_p + e(i) \quad i=1 \dots n \quad (1)$$

où  $f(d_p)$  : distribution en taille des particules de diamètre  $d_p$

$K(i, d_p)$  : probabilité d'une particule de diamètre  $d_p$  d'être mesurée par le  $i^{\text{ème}}$  canal.  
 $e(i)$  : erreur sur la  $i^{\text{ème}}$  mesure.

La détermination, soit par la théorie, soit par des calibrations expérimentales, de la matrice noyau  $K(i, d_p)$  et l'estimation de l'erreur systématique commise sur chaque mesure, entraînent que seule  $f(d_p)$  est inconnue.

Le dispositif permet d'obtenir  $n$  comptages, donc  $n$  équations à partir desquelles on recherche une solution  $f(d_p)$ . Pour ce faire, on procède à un découpage du domaine de dimension  $[d_{p\text{min}} \dots d_{p\text{max}}]$  en  $M$  intervalles afin de discrétiser l'équation de FREDHOLM. On obtient ainsi un système de  $n$  équations ( $i=1 \dots n$ ) où l'on cherche à déterminer  $M$  valeurs  $f(d_p)$  :

$$F_i = \sum_{j=1}^M K(i, d_{p_j}) f(d_{p_j}) + \varepsilon'_i \quad (2)$$

( $\varepsilon'_i$  englobe l'erreur sur la mesure  $F_i$  et l'erreur due à l'approximation faite lors de cette discrétisation).

En pratique, on doit considérer le fait que, d'une part, il existe plusieurs solutions pouvant vérifier de tels systèmes d'équations, et que d'autre part, des petites variations sur les valeurs expérimentales  $F_i$  peuvent engendrer des grandes perturbations sur les solutions  $f(d_p)$  induisant donc des instabilités.

Par conséquent, le physicien est confronté à deux difficultés lors du choix d'une solution parmi l'ensemble des solutions mathématiquement satisfaisantes : obtenir une distribution stable et la plus réaliste possible. Cette notion de stabilité constitue la base du problème puisque les mesures expérimentales sont toujours entachées d'erreurs, tout comme la matrice efficacité car celle-ci résulte également de calibrations expérimentales. Aussi l'intérêt pour le physicien de déterminer une solution stable s'avère incontestable.

Mathématiquement, il existe différentes méthodes pour obtenir ce type de solutions : on impose une restriction, c'est à dire une ou plusieurs conditions qui doivent être vérifiées par la ou l'ensemble des solutions acceptables. Le choix de ces conditions et la procédure suivie pour déterminer les solutions caractérisent les divers algorithmes ou méthodes d'inversions.

### L'algorithme de TWOMEY

Un des algorithmes les plus couramment utilisés en Physique des aérosols est celui de TWOMEY (1965) repris ultérieurement par KAPADIA (1980). Cette méthode d'inversion non linéaire s'appuie sur le raisonnement suivant :

L'objectif est de déterminer les  $M$  valeurs  $f(d_{p_j})$  non négatives à partir de l'équation (1). Pour ce faire, on procède par itération et on démarre la procédure en s'inspirant de la relation suggérée par KNUTSON (1976) qui consiste à répartir équitablement la totalité des quantités d'aérosols échantillonnées dans chacun des  $M$  intervalles du domaine de dimension considéré. Ainsi on obtient  $M$  valeurs  $f^1(d_{p_j})$  à la première itération, à partir desquelles on détermine  $M$  nouvelles valeurs  $f^2(d_{p_j})$  au moyen de la relation suivante :

$$f^p(d_{p_j}) = \left[ 1 + (\gamma_i^{p-1} - 1)K(i, d_{p_j}) \right] f^{p-1}(d_{p_j}) \quad \text{avec} \quad \gamma_i^{p-1} = \frac{F_i}{\sum_{j=1}^M K(i, d_{p_j}) f^{p-1}(d_{p_j})} \quad (3)$$

On calcule alors les quantités d'aérosols qui seraient collectées à partir d'un tel spectre granulométrique. On procède ainsi jusqu'à ce que la différence entre ces quantités et celles obtenues expérimentalement soit aussi faible que possible.

On remarque qu'avec cet algorithme, on obtiendra toujours une solution unique, dont seul le calcul d'erreur pourra permettre de porter un jugement sur sa réalité physique. A cet égard, notons que l'erreur ainsi déterminée peut être très faible (de l'ordre de  $10^{-6}$ ) et la solution ne pas illustrer pour autant la distribution initialement simulée. Par ailleurs, WOLFENBARGER (1990) montre que si la solution obtenue est vraiment réaliste, alors il

en existe plusieurs pouvant satisfaire le système d'équations et conclut en disant que les méthodes où l'on recherche une seule solution à partir de quelques contraintes, peuvent être contestées. On peut dès lors s'interroger sur la qualité de la solution obtenue lorsque l'erreur associée à la solution est de l'ordre de  $10^{-1}$  ; c'est souvent ce qu'on obtient dans la pratique.

### Extreme Value Estimation (EVE)

Dans cet algorithme, développé par PAATERO et coll. (1989), on impose également des restrictions aux solutions et on tient compte de l'erreur créée lors de la mesure des différentes quantités d'aérosols échantillonnés par le dispositif utilisé. Ainsi on obtient, pour chaque valeur du spectre  $f(d_{pj})$ , un ensemble de valeurs pouvant vérifier le système d'équations à résoudre. De cet ensemble, il en ressort une solution centrale dont on peut valider certains domaines de dimension du spectre au vu des limites maximales et minimales de l'ensemble des solutions.

Le principe de cette méthode est toujours basé sur la résolution de l'équation (2). Comme dans l'algorithme de TWOMEY, on impose à toutes les valeurs  $f(d_{pj})$  d'être soit positives ou nulles. Rappelons que  $\varepsilon'(i)$  représente maintenant l'erreur associée à la mesure et celle due à la discrétisation de l'intégrale. Pour chaque valeur  $F_i$ , l'utilisateur doit définir l'intervalle de confiance, c'est à dire tout simplement l'incertitude absolue (que l'on notera  $S_i$ ) sur la mesure. La première démarche de cet algorithme consiste à rechercher les valeurs  $\varepsilon'_i$  qui minimisent la somme des carrés suivante :

$$Q = \sum_{i=1}^N \left( \frac{\varepsilon'_i}{S_i} \right)^2 \quad (4)$$

Lorsque la solution est obtenue selon une superposition d'un nombre arbitraire de Log-normales, l'algorithme recherche les valeurs de  $f(d_{pj})$  qui vérifient le système d'équations posées à partir des relations suivantes :

$$f(d_{pj}) = \sum_{s=1}^p Z_{j,s} B_s \quad B_s \geq 0 \quad j=1\dots M. \quad (III, 14)$$

où  $B_s$  est une constante relative à chacune des Log-normales ;  $Z_{j,s}$  représente une matrice définie par :

$$Z_{j,s} = \frac{1}{\sqrt{2\pi \text{Ln}(GSD)}} \exp \left( - \frac{(\text{Ln}(d_j) - \text{Ln}(d_s))^2}{2(\text{Ln}(GSD))^2} \right) d\text{Ln}(d_j)$$

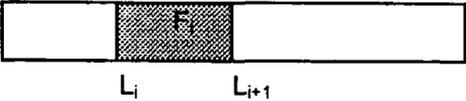
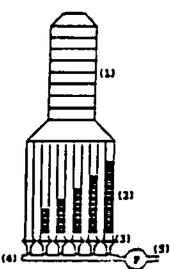
$d_s$  représente le diamètre moyen logarithmique de chacune des log-normales d'indice  $s$  qui constituent la solution. GSD est l'écart-type géométrique commun à l'ensemble des Log-normales. Généralement on prend 1,3 (valeur préconisée par AALTO et coll. (1990)).

Par ailleurs, étant donné que le système d'équations peut être source de problèmes d'instabilités, les solutions doivent vérifier certaines conditions (AALTO et coll., 1990) dites de régularisations. Elles conduisent à obtenir des solutions relativement lisses ; ces auteurs considèrent en effet que les quantités d'aérosols  $f(d_{pj})$  ne doivent pas varier considérablement d'une classe à l'autre.

### ADAPTATION AUX DISPOSITIFS

Rappelons que pour restituer le spectre granulométrique d'un nuage d'aérosols, il faut que les particules soient échantillonnées au moyen d'un dispositif constitués par plusieurs canaux et que la fonction réponse de ce dernier soit connue.

Dans le tableau suivant, on définit physiquement les différents paramètres de l'équation (1) pour chacun de nos dispositifs.

$F_i$	$K(i, d_p)$
<b>BATTERIE DE DIFFUSION</b> Spectre dimensionnel en <i>nombre</i> des particules submicroniques.	
Nombre de particules échantillonnées à chaque piquage de la batterie.	<ul style="list-style-type: none"> <li>▪ Pénétration des particules au travers des <math>i</math> grilles situées en amont du piquage considéré.</li> <li>▪ Prise en compte de l'efficacité du compteur en fonction du diamètre <math>d_p</math> des particules et des pertes par diffusion de particules dans les tuyaux de prélèvements</li> </ul>
<b>BATTERIE DE SEDIMENTATION - Prélèvement des particules inertes</b> Spectre dimensionnel en <i>masse</i> des particules inertes sédimentables.	
Masse de particules collectées sur chacune des plages d'une plaque de la batterie  et  masse récupérée sur le filtre en aval du dispositif.	<ul style="list-style-type: none"> <li>▪ Différence entre l'efficacité de collection de la plaque jusqu'aux positions <math>L_i</math> et <math>L_{i+1}</math> délimitant la plage considérée sur la plaque.</li> </ul>  <ul style="list-style-type: none"> <li>▪ Efficacité de rétention du filtre.</li> </ul>
<b>BATTERIE DE SEDIMENTATION - Prélèvement de particules viables</b> Spectre dimensionnel en <i>nombre</i> des bioaérosols sédimentables.	
Colonies ou germes dénombrés sur chacune des plages de la batterie.	<ul style="list-style-type: none"> <li>▪ Différence entre l'efficacité de collection de la plaque jusqu'aux positions <math>L_i</math> et <math>L_{i+1}</math> délimitant la plage considérée sur la plaque.</li> </ul>
<b>SPECTROMETRE DIFFUSIONNEL ET INERTIEL (SDI-2001)</b> Spectre dimensionnel en <i>masse</i> des particules de diamètre compris entre 0,003 et 12 $\mu$ m	
Masse des particules collectées sur chacun des $i$ étages  et  masse des particules récupérées en aval des lits granulaires (*6)	 <ul style="list-style-type: none"> <li>▪ Produit des pénétrations de chacun des étages situés en aval de l'étage <math>i</math> par l'efficacité de collection de cet étage.</li> <li>▪ Produit de la pénétration des particules au travers de l'impacteur par leur pénétration au travers du lit granulaire considéré.</li> </ul>
<b>IMPACTEUR A BASSE PRESSION (BERNER LPI-30)</b> Spectre dimensionnel en <i>masse</i> des particules de diamètre compris entre 0,06 et 18 $\mu$ m	
Masse des particules collectées sur chacun des $i$ étages	<ul style="list-style-type: none"> <li>▪ Produit des pénétrations de chacun des étages situés en aval de l'étage <math>i</math> par l'efficacité de collection de cet étage.</li> </ul>

## SIMULATION DE SPECTRES

Plusieurs solutions mathématiques pouvant satisfaire les systèmes d'équations à résoudre, nous avons procédé à une étude théorique consistant à simuler une distribution incidente et à examiner la réponse restituée par chacun des dispositifs mis en oeuvre.

En fait, dans un premier temps, nous modélisons certaines fonctions de distribution sur certains domaines de dimension à partir de lois Log-normales qui permettent de décrire relativement bien les spectres dimensionnels des particules en suspension dans l'air (FRIEDLANDER, 1977).

Ensuite, nous calculons les masses ou nombres de particules ainsi que les incertitudes absolues qui devraient théoriquement être déterminées à partir des mesures effectuées dans chacun des canaux du dispositif échantillonnant un nuage d'aérosols présentant la distribution dimensionnelle simulée (DROAL, 1995).

Cette étude a permis, entre autre, de montrer que l'algorithme de TWOMEY peut effectivement présenter des artefacts de résolution mathématique comme l'avaient suggéré BOULAUD (1987). La figure 1, où nous avons simulé un spectre unimodal qui ne recouvre qu'une très faible partie du domaine de dimension exploitable par le dispositif choisi (la batterie de diffusion en l'occurrence ici), en est une bonne illustration :

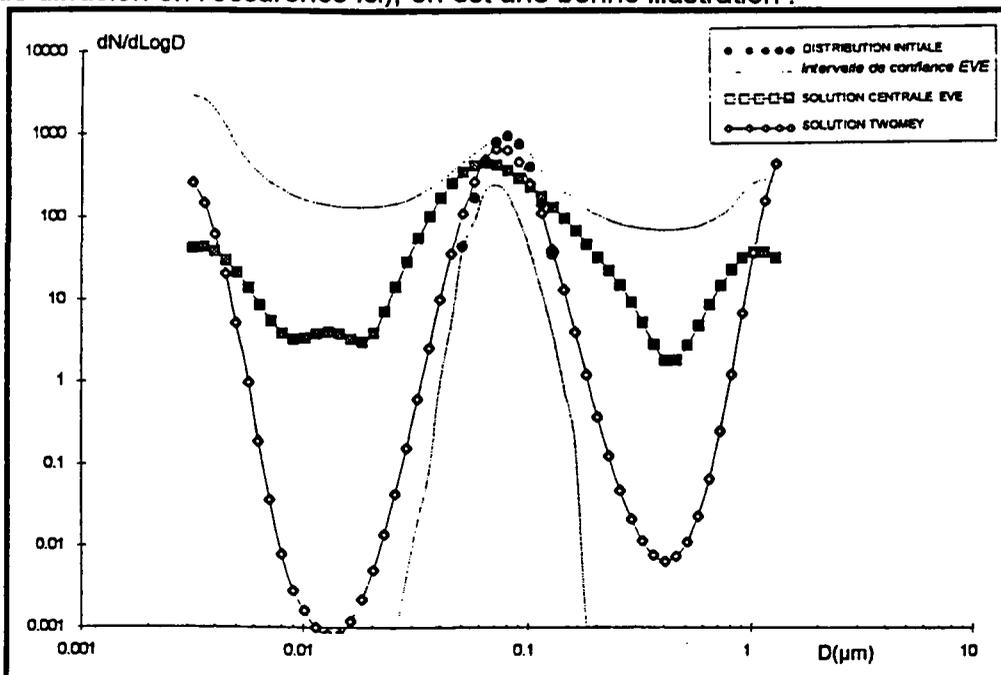


FIGURE 1 : SOLUTIONS RESTITUEES PAR L'ALGORITHME DE TWOMEY ET PAR LA METHODE DE DECONVOLUTION EVE DANS LE CAS DE LA BATTERIE DE DIFFUSION. LOI LOG-NORMALE INITIALEMENT GENERE (  $d_{moy} = 0,1 \mu m$ ,  $\sigma = 1,2$  ).

En effet, on remarque que la solution restituée par l'algorithme de TWOMEY laisse suggérer la présence de particules dont le diamètre n'est pas représenté dans le spectre simulé. S'il en est de même pour la solution centrale obtenue par la méthode de déconvolution EVE, en revanche, cette méthode d'inversion définit un intervalle de confiance qui permet de n'accorder aucune crédibilité à ces artefacts de résolution mathématique.

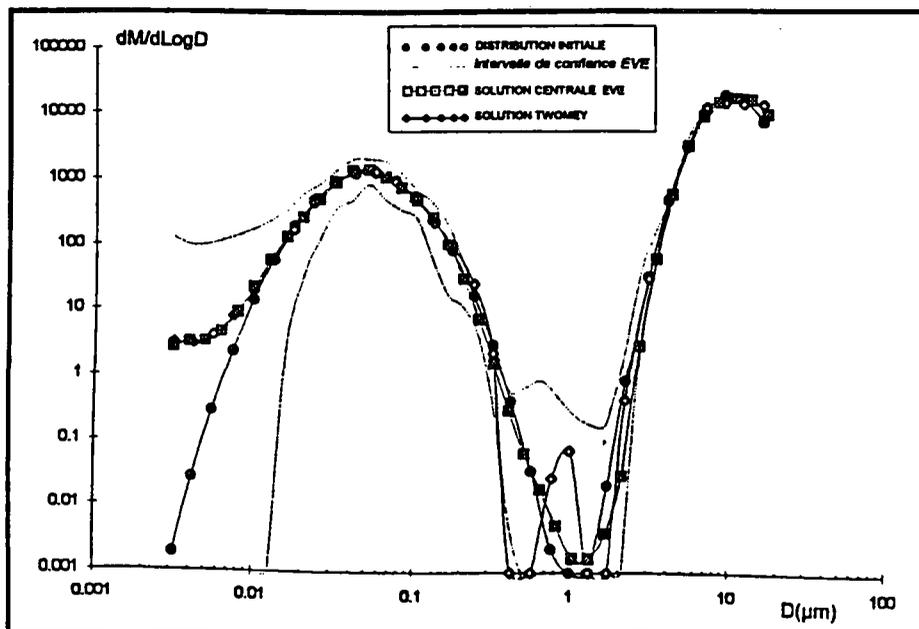


FIGURE 2 : SIMULATION D'UNE LOI LOG-NORMALE BI-MODALE ( $d_{moy} = 10 \mu m$ ,  $\sigma = 1,4$  ;  $d_{moy} = 0,05 \mu m$ ,  $\sigma = 1,7$ ). SPECTRES GRANULOMETRIQUES RESTITUES PAR LES ALGORITHMES DE TWOMEY ET DE EVE DANS LE CAS DU SDI-2001.

Par ailleurs, nous avons pu mettre en évidence le fait, déjà soulevé par EL MOUSSAOUI (1989) qu'avec l'algorithme de TWOMEY, la solution restituée peut parfois présenter des oscillations irréalistes (figure 2). Nous avons également pu constater que cette méthode d'analyse est inadaptée pour le traitement des données issues de notre batterie de sédimentation, tout au moins lorsque le spectre dimensionnel simulé décrit une loi Log-normale. Par contre, lorsque nous modélisons des spectres décrivant des lois normales, alors la solution obtenue s'en rapproche beaucoup mieux.

## CONCLUSION

De cette étude, il ressort que, pour l'interprétation des spectres dimensionnels restitués à partir de l'analyse des quantités d'aérosols mesurées dans nos divers dispositifs, nous devons tenir compte des éventuels artefacts de résolution mathématique de l'algorithme de TWOMEY et des oscillations irréalistes qui peuvent être engendrées. L'utilisation de la méthode de déconvolution "EXTREME VALUE ESTIMATION" nous permet de pallier ces problèmes, de par la détermination de l'intervalle de confiance qui permet de valider certaines parties du spectre.

C'est ainsi que nous avons pu valider de nombreux spectres dimensionnels qui permettent de caractériser l'ambiance particulière de différents milieux. On notera en particulier celle des bâtiments d'élevage porcin (DROAL et coll., 1995) et celle des milieux marins (TYMEN et coll., 1995).

A présent, il serait intéressant d'étudier le comportement de ces algorithmes lorsque l'on simule des spectres présentant différentes formes et en particulier des distributions de type JUNGE ou GAMMA qui permettent de caractériser les aérosols dans des conditions particulières. A cet égard, notons que plusieurs auteurs (LESNIC et coll., 1995) ont mis au point une méthode d'inversion, pour le cas de la batterie de diffusion, et qui présente l'avantage de n'imposer aucune forme particulière à la solution.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- AALTO P., TAPPER U., PAATERO P., RAUNEMAA T., 1990 : "Deconvolution of particle Size Distributions by means of Extreme Value Estimation Method." Journal of Aerosol Science. Vol.21, Suppl. 1, pp S159-S162.
- BOULAUD D., 1987 : "Mesure de très faibles concentrations d'aérosols." 4<sup>èmes</sup> Journées d'étude sur les aérosols, Paris, Déc. 1987.
- DROAL C., 1995 : "Aérosols et micro-organismes - Techniques de prélèvements et d'analyses des spectres dimensionnels - Applications au milieu de l'élevage porcin". Thèse de doctorat de l'Université de BREST.
- DROAL C., TYMEN G., GUELLIL A., BOULAUD D., 1995 : "Distribution en taille des particules inertes et viables dans des bâtiments d'élevage porcin." 11<sup>ème</sup> Journées du COFERA, PARIS, 5-6 Décembre 1995.
- EL MOUSSAOUI B., 1989 : "Contribution à l'étude théorique et expérimentale des aérosols descendants du radon-222 et à l'étude des performances de certains dispositifs filtrants." Thèse, ParisXII.
- FRIEDLANDER S.K., 1977 : Smoke, dust and haze. New York, Wiley.
- KAPADIA A. 1980 : "Data reduction Techniques for aerosol Size Distribution Measuring Instruments." Ph. D. Thesis, University of Minnesota.
- KNUTSON E.O. 1976 : "Fine particles." Edited by LIU B.H.Y. Academic Press New York. p 740-756.
- LESNIC D., ELLIOTT L., INGHAM D.B., 1976 : "An inversion method for the determination of the particle size distribution from diffusion battery measurements." Journal of Aerosol Science, Vol. 26, n°5, pp. 797-812.
- PAATERO P., RAUNEMAA T., 1989 : "Analysis of CO<sub>2</sub> thermograms by the new extreme-value estimation (EVE) deconvolution principle." Aerosol Science Technology., Vol. 10, pp 365- 369.
- TWOMEY S., 1963 : "On the numerical solution of FREDHOLM integral equations of the first kind by the inversion of the linear system produced by quadrature." Journal Assoc. Computing Mach., 1968, Vol. 10, pp. 97-101.
- TWOMEY S., 1965 : "The application of numerical filtering to the solution of integral equations encountered in indirect sensing measurements." J. Franklin Inst., Vol. 279, pp. 95-109.
- TYMEN G., LE BIHAN O., DROAL C., 1995 : "Dynamic of fine particle size distribution during gas to particle processes at Porspoder coastal station." A paraître dans Atmospheric Environment.
- WOLFENBARGER J.K., SEINFELD J.H., 1990 : "Inversion of aerosol size distribution data." Journal of aerosol science, Vol. 21, N°2, pp. 227-247.

## Eclatement d'une goutte sur une surface rugueuse

Kai RANGE et François FEUILLEBOIS  
Ecole Supérieure de Physique et Chimie Industrielles  
10, Rue Vauquelin, 75005 Paris, France

### Abstract

The splashing of a drop on a solid, dry and rough plate is studied experimentally using a rapid image acquisition system. The free falling drop crosses a light barrier before it hits the surface. The light barrier initiates a series of successive flashes which illuminate the impact. At the same time a picture of the impact is stored on a CCD-camera and then transferred to a computer for analysis. A variety of plates is used to determinate the splashing limit of drops for various materials and plate roughness. Furthermore, the influence of different surface profiles and various liquids on the splashing limit is studied. The results are compared to the ones of Stow and Hadfield [1] and of Wu [2].

### Résumé

L'éclatement d'une goutte sur une plaque solide, sèche et rugueuse est étudié expérimentalement par une méthode d'acquisition d'images ultra rapide. La goutte en chute libre traverse une barrière optique avant de heurter la surface. La barrière optique déclenche une série d'éclairs successifs qui illuminent l'impact. En même temps une image de l'impact est enregistrée par une caméra CCD et transférée à un ordinateur pour analyse. On utilise diverses plaques rugueuses pour déterminer la limite d'éclatement de la goutte pour des matériaux et rugosités différents. On étudie en outre l'influence du profil de surface et du type de liquide sur la limite d'éclatement. Les résultats sont comparés à ceux de Stow et Hadfield [1] et de Wu [2].

### 1) Introduction

Si une goutte en chute libre heurte une surface plane et sèche, elle ne se déforme pratiquement pas [3]. Elle se vide par le bas sous la forme d'un film mince qui s'étale sur la paroi. Selon la vitesse d'impact, la viscosité, la tension superficielle et la taille de la goutte, ce film peut soit simplement s'étaler sur la surface, soit se soulever et éclater en petites gouttelettes. Il est évident que l'étalement et l'éclatement de la goutte dépendent des propriétés de la surface, en particulier de sa rugosité. Or l'effet de ce paramètre physique a été peu étudié à notre connaissance. Parmi les quelques auteurs qui traitent le sujet, Weiss [4] étudie l'éclatement d'une suite périodique de gouttes qui heurtent une paroi rugueuse. Il montre que l'éclatement est légèrement favorisé par la rugosité. Mais le problème se complique car, dans son cas, un film de liquide recouvre la paroi, ce qui favorise l'éclatement.

Stow et Hadfield [1] et Stow et Stainer [5] étudient l'éclatement d'une goutte sur une surface sèche en fonction de la rugosité. Stow et Hadfield [1] observent l'apparition de l'éclatement en fonction de la rugosité. Ils décrivent leurs résultats expérimentaux au moyen d'une formule semi-empirique que nous décrirons plus loin.

Stow et Stainer [5] étudient les tailles des gouttelettes éjectées par une goutte qui éclate. Ils observent que lorsque la rugosité de la plaque augmente, les gouttelettes éjectées sont statistiquement plus grosses.

Malheureusement aucun des deux articles précédents ne donne d'interprétation du phénomène.

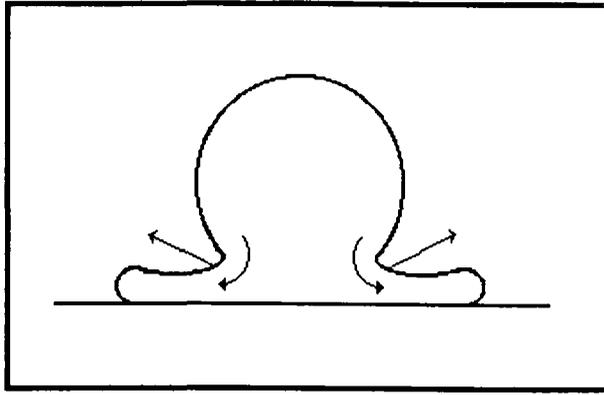


Figure 1: Schéma de l'écoulement radial dans une goutte pendant l'impact sur une paroi solide d'après Levin et Hobbs [6]. (Les flèches à l'extérieur de la goutte symbolisent les forces créées par la tension superficielle.)

Un scénario de l'éclatement a été proposé par Levin et Hobbs [6]. La base de la goutte présente une forte courbure à l'emplacement d'où sort le film qui s'étale (figure 1). Selon leur idée, la résultante des forces superficielles à cet endroit faisant un certain angle avec la paroi, elle crée dans le film une force perpendiculaire à cette paroi. Si cette force devient suffisamment grande par rapport à la force d'inertie qui pousse le liquide vers l'extérieur, le film peut se séparer de la paroi et ceci d'autant plus que la plaque est rugueuse. La nappe de liquide forme alors une couronne qui peut éclater en petites gouttelettes, suivant le mécanisme décrit par Taylor [7]. Le mécanisme proposé est cependant loin d'être clair, surtout en ce qui concerne l'influence de la rugosité.

Pour conclure, l'éclatement d'une goutte sur une surface sèche et rugueuse est loin d'avoir été modélisé correctement.

Le seul résultat quantitatif qui existe actuellement est la formule semi-empirique de Stow et Hadfield [1] que nous allons détailler maintenant.

## II) Modélisation de l'influence de la rugosité sur la désintégration de la goutte

Après analyse de leurs résultats expérimentaux, Stow et Hadfield [1] trouvent le critère de désintégration suivant:

$$R_0 u_0^{1,69} = S_T (R_a) \quad (1)$$

Le rayon  $R_0$  des gouttes utilisées pour ces expériences était fixé à 1,7 mm.  $S_T$  est une fonction de la rugosité arithmétique  $R_a$  qui prend les valeurs  $S_T = \{13,5; 12,5; 11,9; 7,2; 6,1; 4,2\}$  pour les valeurs de la rugosité  $R_a = \{0,05; 0,05; 0,14; 0,84; 3,10; 12,0\}$   $\mu\text{m}$ . Les valeurs correspondantes de la vitesse critique pour l'éclatement de la goutte lors de l'impact sont alors  $u_0 = \{3,40; 3,25; 3,15; 2,35; 2,15; 1,70\}$  m/s. On peut déjà remarquer ici que les résultats de Stow et Hadfield ne dépendent pas uniquement de la valeur de la rugosité  $R_a$ . En effet les deux premières valeurs de  $S_T$  sont différentes bien que les valeurs correspondantes de  $R_a$  soient les mêmes. Ceci n'est sans doute pas uniquement dû aux erreurs de mesure car les plaques utilisées ont subi des traitements différents: L'une a été polie par le fabricant et l'autre a été meulée par les auteurs.

Stow et Hadfield réécrivent l'équation (1) en variables adimensionnelles sous la forme

$$\text{Re}_c^{0,31} \text{We}_c^{0,69} = \xi (R_a)$$

où  $\text{We}_c$  et  $\text{Re}_c$  sont les valeurs critiques (pour l'éclatement) des nombres de Weber  $\text{We} = \frac{2R_0 \rho u_0^2}{\sigma}$  et de

Reynolds  $\text{Re} = \frac{2R_0 u_0}{\nu}$ ,  $\rho$  étant la masse volumique du fluide,  $\sigma$  sa tension superficielle et  $\nu$  sa viscosité cinématique. Le nombre sans dimension  $\xi$  est fonction de la rugosité de la paroi. D'après ces auteurs, la valeur critique de  $\xi$  décroît pour une rugosité croissante. Par contre, la vitesse avec laquelle le film s'étale sur la surface n'apparaît pas affectée par la rugosité.

Wu [2] remarque que l'influence de la viscosité du liquide sur l'éclatement est faible lorsque le nombre de Ohnesorge  $Oh = \nu \sqrt{\frac{\rho}{2R_0\sigma}}$  est petit. Il réécrit la formule semi-empirique de Stow et Hadfield [1] sous la forme d'un nombre de Weber critique d'apparition de l'éclatement:

$$We_c = a \ln \left( b \frac{R_0}{R_a} \right) \quad (2)$$

Il obtient les valeurs  $a=6,47$  et  $b=1,87$  en minimisant l'écart quadratique d'après les résultats expérimentaux de Stow et Hadfield. Nous comparerons plus loin ce nombre de Weber critique  $We_c$  avec nos résultats expérimentaux.

Les expériences de Stow et Hadfield utilisent des plaques rugueuses en aluminium classées d'après leur rugosité  $R_a$ . Or la rugosité  $R_a$  ne peut pas décrire en détail l'état de surface. Dans le cas des plaques utilisées par Stow et Hadfield, le profil de la plaque est sans doute aléatoire, mais ceci ne peut pas être vérifié.

Notre objectif est d'obtenir des résultats plus généraux en utilisant divers types de matériaux et différents profils de rugosité (aléatoires et périodiques) qui seront présentés dans le paragraphe III.

## II) Dispositif expérimental

L'expérience consiste à faire tomber une goutte d'un liquide quelconque d'une certaine hauteur sur une plaque plus ou moins rugueuse et à observer son comportement lors de son impact. Dans ce but nous avons construit le dispositif représenté sur la figure 2.

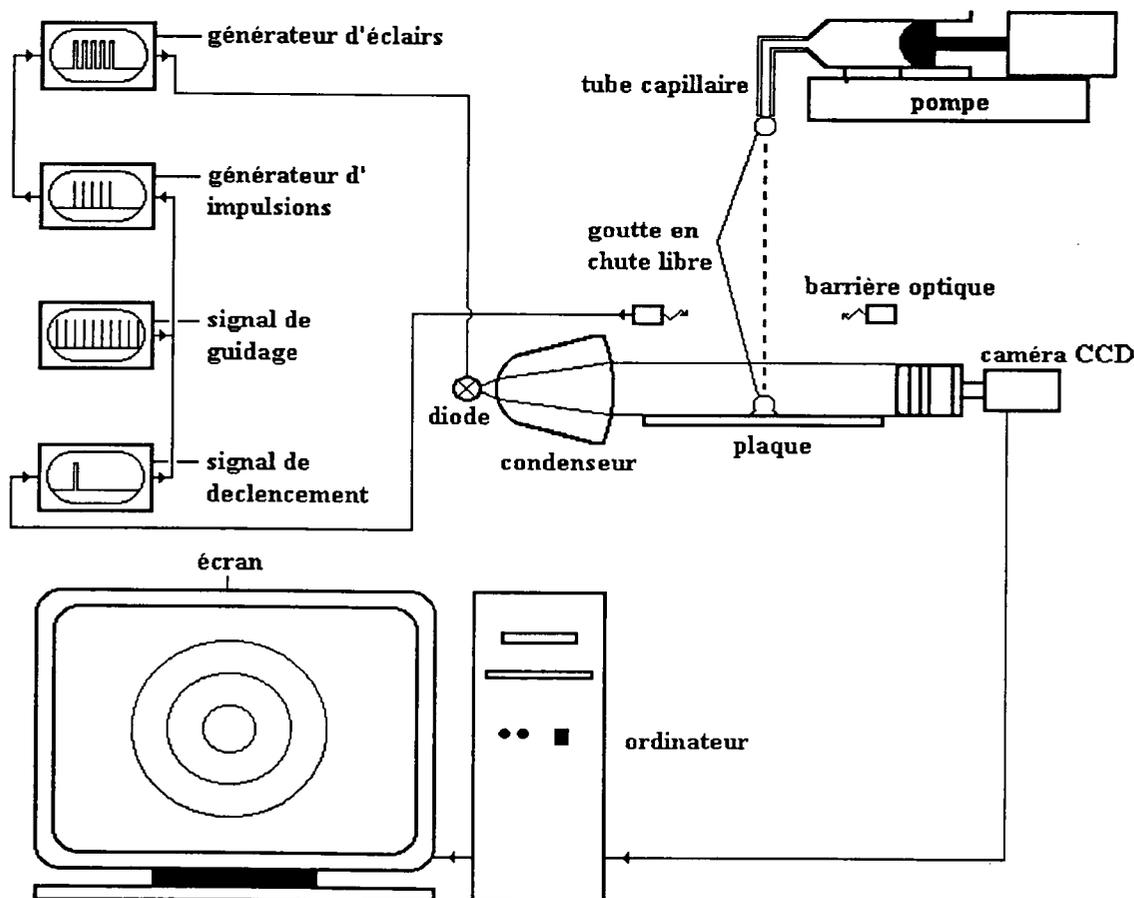


Figure 2: Montage permettant l'observation de l'impact d'une goutte sur une plaque sèche.

Une pompe à débit volumique constant permet de créer une goutte à l'extrémité d'un tube capillaire. La goutte qui se sépare tombe alors sur une plaque de verre, de Plexiglas ou d'aluminium. Quelques instants avant qu'elle ne touche la surface, la goutte traverse une barrière optique qui déclenche un générateur d'éclairs par l'intermédiaire d'un système électronique. Ce système comprend un générateur d'impulsions et un générateur de signal qui permettent de retarder et de multiplier le signal de la barrière optique avant de le transmettre au générateur d'éclairs. Ce générateur envoie alors les signaux appropriés à une diode optique. De cette façon, il est possible de créer une suite d'éclairs successifs avec un retard et une fréquence déterminés. L'instant du début des éclairs est réglé sur l'impact de la goutte ou sur un instant ultérieur lors de son étalement ou de son éclatement. La caméra CCD se comporte comme un appareil photo en pose. Le premier éclair déclenche la caméra qui enregistre alors des vues superposées de la goutte. L'image obtenue est immédiatement digitalisée et envoyée sur un micro-ordinateur où elle peut être exploitée. La prise de vue de l'impact permet de déterminer si la goutte s'étale sur la plaque ou si elle éclate. La limite d'éclatement de la goutte sur une plaque rugueuse est alors obtenue en faisant varier la vitesse d'impact jusqu'à encadrer la valeur séparant les régimes d'étalement et d'éclatement. L'expérience est répétée au moins trois fois afin d'obtenir des résultats reproductibles. La rugosité des plaques utilisées lors de ces expériences a été déterminée à l'aide d'un profilomètre TENCOR P1.

### IIIa) Observations qualitatives

Pour chaque plaque rugueuse, nous avons cherché à obtenir une limite d'éclatement en effectuant une série d'expériences à différents nombres de Weber. Dans un premier temps nous avons utilisé des gouttes d'eau de rayon  $R_0 = 1,94\text{mm}$  (à 2,5 % près) et fait varier le nombre de Weber en modifiant la hauteur de chute. La figure 3 montre un résultat caractéristique.

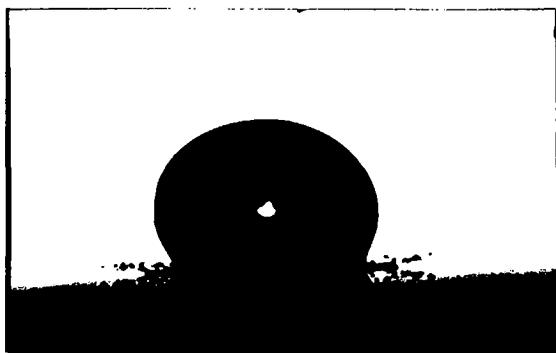


Figure 3: Impact d'une goutte d'eau sur une plaque d'aluminium polie.

Rayon de la goutte:	1,92 mm
Vitesse d'impact:	3.54 m/s
Nombre de Reynolds:	Re=13789
Nombre de Weber:	We=666
Nombre de Weber critique:	$e_c = 433.8$
Rugosité	$R_a = 0.1470 \mu\text{m}$

La figure [3] montre l'éclatement d'une goutte sur une surface en aluminium à profil aléatoire. On observe généralement sur de tels profils que le film se soulève de la paroi avant de se désintégrer en petites gouttelettes. Cependant, si la goutte heurte une plaque de Plexiglas à creux équidistants dont la profondeur est du même ordre que l'épaisseur du film (quelques centièmes de millimètre), on constate un comportement différent de celui d'une plaque à profil aléatoire: seules des parties du film, ou des jets isolés, se séparent de la paroi.

Lorsque les plaques ont des rainures dans une seule direction le film s'étale dans le sens de la rainure. Il se soulève de la plaque dans le sens perpendiculaire et se désintègre en petites gouttelettes. L'éclatement est plus violent pour les rainures à profil triangulaire que pour les rainures à profil rectangulaire, bien que les valeurs de la

rugosité  $R_a$  soient comparables. On peut alors supposer que le film liquide qui s'étale a plus tendance à décoller en heurtant un profil escarpé.

### IIIb) Etablissement d'une corrélation pour la limite d'éclatement

Dans notre étude quantitative du phénomène d'éclatement nous avons dans une première étape vérifié l'hypothèse de Wu [2]. Nous avons en effet trouvé que l'influence de la viscosité est faible dans le cas des petits nombres d'Ohnesorge (figure [4]).

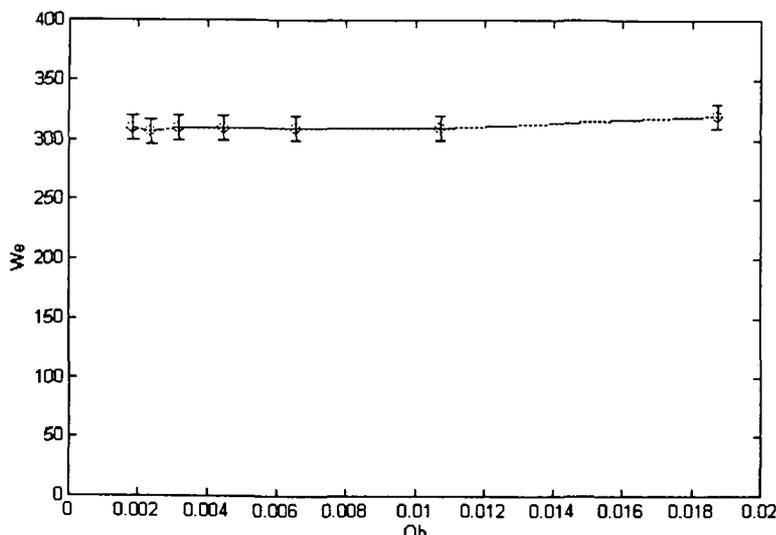


Figure 4: Nombre de Weber critique d'éclatement d'une goutte en fonction de son nombre d'Ohnesorge. Les écart-types correspondent à l'incertitude sur la valeur de la limite d'éclatement. La valeur de la rugosité  $R_a$  de la plaque en aluminium utilisée lors de ces expériences est  $R_a = 0,4365 \mu\text{m}$ .

Les mesures réalisées avec des mélanges d'eau et de glycérine montrent que le nombre critique de Weber d'éclatement ne croît que faiblement avec la viscosité. On peut alors tout à fait négliger l'effet de la viscosité au profit d'une modélisation plus simple, comme dans celle de Wu présentée au § II.

Dans une deuxième étape, nous avons regroupé l'ensemble des résultats expérimentaux obtenus pour les gouttes d'eau sur un même diagramme en fonction de la rugosité  $R_a$  (figure [5]).

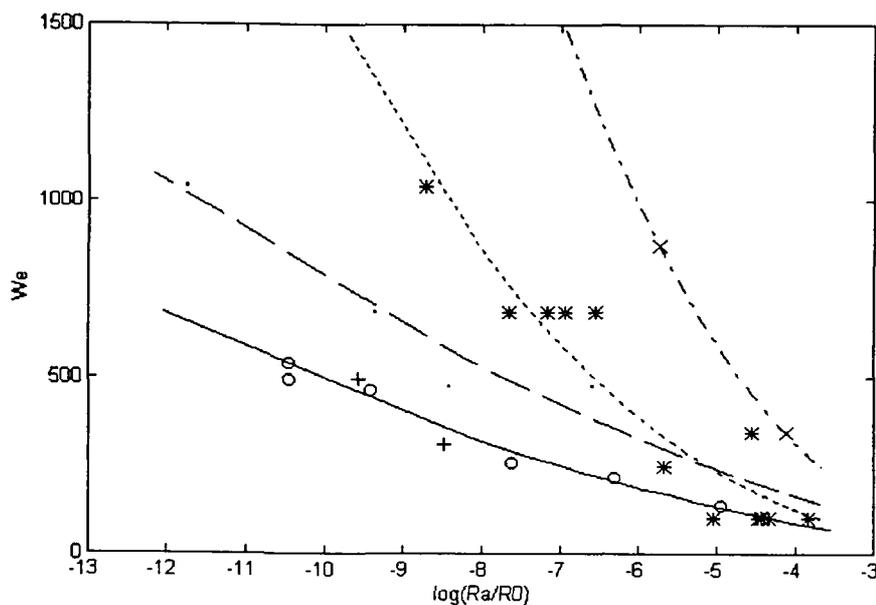


Figure 5: Nombre de Weber critique  $We_c$  correspondant à la limite d'éclatement en fonction de la rugosité adimensionnée  $R_a/R_0$ . Les points sont les valeurs expérimentales (les symboles sont indiqués dans le texte). Les courbes représentent des corrélations des résultats expérimentaux au moyen d'une formule semi-empirique du type de celle de Wu [2]. Une courbe (c'est à dire un couple de coefficients  $a$  et  $b$ ) a été obtenue pour chaque matériau. Au-dessus de chaque courbe, la goutte qui heurte la surface se désintègre en petites gouttelettes. En dessous elle s'étale sans éclater.

Les points expérimentaux indiquent le nombre de Weber le plus petit pour lequel l'éclatement de la goutte a été observé pour un matériau et une rugosité donnés. Les courbes sont des corrélations obtenues au moyen de la formule semi-empirique de Wu (eq. 2, § II).

Pour chaque matériau, les coefficients  $a$  et  $b$  de la formule ont été calculés en minimisant les écarts quadratiques entre la courbe et les résultats expérimentaux.

Les symboles utilisés pour les valeurs expérimentales correspondent aux différents matériaux utilisés pour la surface d'impact:

- o aluminium (valeurs expérimentales de Stow et Hadfield [1]),
- + aluminium (nos valeurs expérimentales),
- verre,
- \* Plexiglas,
- x transparents fabriqués par 3M.

Les courbes ont été calculées avec la formule de Wu [2] d'après les résultats expérimentaux suivants:

- aluminium (Stow et Hadfield),
- verre,
- ... Plexiglas,
- .- transparents 3M.

Nos résultats confirment les valeurs obtenues par Stow et Hadfield pour le cas des plaques en aluminium. En général pour les autres matériaux, nous obtenons un comportement similaire sauf que les valeurs du nombre de Weber critique sont supérieures.

Il apparaît donc que l'éclatement des gouttes ne dépend pas uniquement de la rugosité  $R_a$  de la plaque. La dispersion des courbes pourrait être due aux tensions interfaciales entre le film et la plaque, qui dépendent du matériau. Néanmoins cette hypothèse reste à vérifier.

#### IV) Conclusion

Nos avons montré que la limite d'éclatement d'une goutte sur une surface sèche ne dépend pas uniquement des nombres de Weber et de Reynolds. Lorsque le nombre de Ohnesorge est petit, les effets de viscosité sont négligeables, comme il a été prévu par Wu [2]. Par contre les paramètres physiques de la paroi peuvent être importants: profil de surface, type de matériau. Le nombre de Weber correspondant à la limite d'éclatement dépend de la rugosité  $R_a$  de la paroi, mais aussi de façon plus complexe du profil de la rugosité; ainsi un profil escarpé favorise le décollement du film de la paroi et par voie de conséquence sa tendance à se désintégrer. Il semble en outre que la limite d'éclatement dépende de la tension interfaciale entre le liquide et la paroi, mais ceci reste à vérifier.

#### Bibliographie

- [1] **C.D. Stow et M.G. Hadfield**, An experimental investigation of fluid flow resulting from the impact of a water drop with an unyielding dry surface, Proc. R. Soc. Lond. A 373, 419-441, 1981.
- [2] **Z.N. Wu**, Modélisation et calcul implicite multidomaine d'écoulements diphasiques gaz-gouttelettes, thèse de doctorat de l'université Pierre et Marie Curie (Paris VI) 1992.
- [3] **K.F. Löhr**, Etalement et éclatement des gouttes, Thèse de Doctorat à l'Université Pierre et Marie Curie (Paris VI), 1990.
- [4] **D.A. Weiss**, Periodischer Aufprall monodisperser Tropfen gleicher Geschwindigkeit auf feste Oberflächen, Mitteilungen aus dem Max-Planck-Institut für Strömungsforschung Göttingen, N° 112, 1993.
- [5] **C.D. Stow et R.D. Stainer**, The Physical Products of a Splashing Water Drop, J. of the Meteorological Soc. Japon, Vol. 55, N° 5, 518-532, 1977.
- [6] **Z. Levin et P.V. Hobbs**, Splashing of Water Drops on Solid and Wetted Surfaces: Hydrodynamics and Charge Separation, Phil. Trans. Roy. Soc. A 269, 555-585, 1971.
- [7] **G. Taylor**, The dynamics of thin sheets of fluid: III. Disintegration of fluid sheets, Proc. Roy. Soc. A, 253, 313-321, 1959.

# Interaction entre particules de différente taille lors de l'agglomération acoustique d'un brouillard.

Ph. Capéran, J. Somers, K. Richter

Commission Européenne,  
Centre Commun de Recherche,  
Institut Européen des Transuraniens,  
Postfach 2340  
D-76125 Karlsruhe  
République Fédérale d'Allemagne.

*Summary-Interaction between different sized particles during the acoustic agglomeration of a fog. This paper presents a study of the acoustic agglomeration of a fog. It is firstly shown that the wall-losses, which are a function of acoustic power  $P$  and size of the droplets, can be characterised in a straightforward way, which allows the determination of the true acoustic agglomeration rate at each size of the size distribution. Secondly, the interaction between fine and inertial droplets is studied. It is shown that the agglomeration rate of fine droplets depends linearly on the number of inertial droplets, and is proportional to the acoustic power.*

**Agglomération acoustique / Interaction hydrodynamique / Interaction orthocinétique**

## INTRODUCTION:

Un modèle global d'agglomération acoustique de gouttelettes de brouillard a été proposé (Capéran et col., 1995 a), qui prend en compte l'atténuation de l'onde dans la chambre, ainsi que la dépendance linéaire du taux d'agglomération global du total des particules par rapport à la puissance électrique  $P$  de la source sonore. Par ailleurs, un diamètre  $d_p$  dépendant de la fréquence  $f$  de l'onde acoustique a été mis en évidence (Capéran et col., 1993), qui permet de séparer les particules en deux populations. Des études plus détaillées ont donc pu être développées sur l'interaction entre deux populations de particules (gouttelettes stationnaires et particules de  $\text{TiO}_2$  entraînées dans l'onde acoustique). Elles ont montré que le taux d'agglomération des petites particules (passives) est proportionnel à la puissance  $P$  (Capéran et col., 1994), ainsi qu'à la concentration de gouttelettes stationnaires (Somers et col., 1995).

Ces études précédentes nécessitaient la création d'un aérosol bimodal, par injections successives d'aérosol dans la chambre acoustique. Dans cette communication, on étudie l'interaction entre deux populations de gouttelettes de même nature, au long d'une agglomération acoustique. Les pertes d'aérosols aux frontières sont complètement évaluées, ce qui permet de travailler sur les taux réels d'agglomérations, à différentes puissances  $P$ .

## INSTALLATION ET MÉTHODE EXPÉRIMENTALE:

L'installation expérimentale, et la procédure utilisée, ont déjà été décrites dans d'autres publications (Capéran et col.; 1993, 1995 a). Dans le cas présent, le brouillard est créé par un générateur de marque Optronix. Le liquide utilisé n'est pas miscible à l'eau, et a une faible pression de vaporisation. Ces caractéristiques évitent tout échange de masse entre les phases vapeur et liquide durant l'expérience. La source sonore travaille à 21 kHz.

Pour chaque valeur de  $P$ , une série de trois essais est faite. Au cours de chaque essai la distribution de taille de l'aérosol est mesurée à intervalles de temps de 5 s, durant 3 s, au moyen d'un A.P.S. (Aerosol Particle Sizer, de T.S.I.). Les concentrations totales initiales dans la chambre acoustique étant d'au moins  $10^6 \text{ cm}^{-3}$ , une dilution d'un facteur 10000 de l'aérosol étudié est appliquée avant mesure par l'APS. Ce facteur de dilution est trop bas pour éviter les problèmes de coïncidence spécifiques de l'APS, en début d'essai. Mais il permet par contre d'avoir une statistique satisfaisante en fin d'essai, lorsque les concentrations sont de l'ordre de  $10^3 \text{ cm}^{-3}$  dans la chambre acoustique. L'aérosol est injecté durant 60 s dans la chambre, alors que la source sonore est à l'arrêt. Il est laissé en

agglomération Brownienne pendant 260 s, puis la source acoustique est remise (en moins de 3 s) à la puissance désirée. La période d'agglomération Brownienne permet de créer un nombre suffisant de gouttelettes inertielles. Les distributions de taille brutes de l'APS sont sommées sur les trois essais, à chaque pas de temps (synchronisé par rapport à la mise en marche de la source acoustique). Une méthode, inspirée de celle de Horn, 1993, est alors appliquée à chaque moyenne de manière à éliminer les coïncidences. Cette méthode a par ailleurs été testée avec satisfaction au moyen d'un programme simulant le fonctionnement d'un APS. Les fonctions d'efficacité des dilueurs sont alors utilisées pour obtenir une distribution de taille définitive.

#### PERTES DE MASSES AUX FRONTIÈRES DE LA CHAMBRE:

Le phénomène d'agglomération acoustique correspond à un transfert de masse entre particules de différentes taille (voir la fig. 3 pour avoir un aperçu de l'évolution des distributions de taille au cours du temps), et la masse totale devrait être conservée dans une expérience idéale. Toutefois, des pertes aux frontières de la chambre sont présentes, dues en grande part au ventilateur permettant un mélange homogène de l'aérosol durant l'expérience, et d'autre part à l'interaction entre l'onde acoustique et les parois de la chambre. Ces pertes de masses doivent être complètement évaluées sur chaque canal de mesures de l'APS, de manière à accéder aux taux d'agglomération acoustique réel par correction du taux de disparition sur chaque canal.

Pour cela, selon une méthode inspirée des études de Boulaud et col., une très faible concentration d'un aérosol de large distribution de taille (après un long temps d'agglomération Brownienne dans un réservoir annexe) a été introduite dans la chambre. Les phénomènes d'agglomération, soit acoustique, soit Brownienne, aux concentrations d'au plus  $25 \text{ cm}^{-3}$  par canal de mesure de l'APS, sont ainsi négligeables, et seules les pertes aux frontières font évoluer la distribution de taille. Les taux de pertes résultant de ces mesures sont présentées fig. 1. Ces résultats expérimentaux peuvent être approximés par un modèle du type:

$$1/\tau_p = a P + b d^2 \quad (1),$$

excepté pour les tailles inférieures à  $1 \mu\text{m}$ , pour lesquelles un modèle différent doit être ajouté.

Des deux termes de droites de l'équation (1), le premier correspond à l'action de l'onde acoustique qui surajoute un taux de perte uniforme sur toutes les tailles, alors que le deuxième exprime l'action du ventilateur, proportionnelle au carré du diamètre aérodynamique  $d$  de la gouttelette.

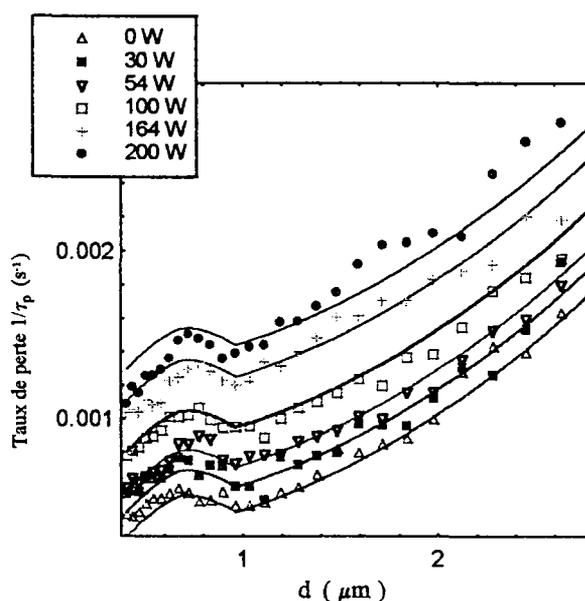


fig. 1: Taux de pertes expérimentaux  $1/\tau_p$  aux frontières de la chambre acoustique, pour différentes puissances acoustiques, en fonction du diamètre aérodynamique  $d$  des gouttelettes. Les résultats du modèle analytique approximant les mesures sont donnés sous forme de traits pleins.

La fig. 1 comprend les résultats expérimentaux, ainsi que le modèle analytique utilisé pour nettoyer les résultats expérimentaux de l'effet parasite des pertes aux frontières, de manière à obtenir seulement l'agglomération acoustique. Il faut noter que les taux de pertes sont d'un ordre de grandeur plus petits que les taux de disparition observés au début d'une expérience acoustique, comme il est déjà signalé par Capéran et col., (1995 a).

Il est possible, connaissant les taux de pertes aux frontières (en accord avec la puissance  $P$ ), et les distributions de tailles mesurées à chaque pas de temps de 5 s par l'APS, de calculer le nombre total de gouttelettes de diamètre  $d$  perdues aux frontières par unité de temps. Une intégration temporelle de ces pertes converties en masse permet de connaître la masse globale de pertes aux frontières à chaque instant. La somme de ces pertes et de la masse instantanée d'aérosol doit donc rester constante au cours du temps. Sur la fig. 2 sont reportées les évolutions temporelles de la masse instantanée de l'aérosol dans  $1 \text{ m}^3$ , et de la "masse totale"  $M_T$  reconstituée en utilisant le modèle de la figure 1. Dans le cas d'une agglomération brownienne (fig 2.a),  $M_T$  reste constante, prouvant la validité de la correction. Ce n'est pas le cas lorsque la source sonore agit (fig 2.b), puisque la masse  $M_T$  décroît durant les 100 premières secondes, puis atteint un plateau constant. Cette relativement mauvaise correction durant les premiers temps du phénomène est retrouvée pour toute les puissances  $P$ , la masse manquante augmentant avec la puissance en jeu, alors que le temps d'installation du plateau diminue avec  $P$ . Or, c'est aux premiers instants du phénomène que les petites particules s'agglomèrent entre elles pour en former de plus grosses. La masse globale de l'aérosol est alors transférée principalement dans ces grosses gouttelettes qui apparaissent, et il suffit que la fonction d'efficacité de l'APS lui-même soit déficiente aux grandes tailles pour que la correction soit imparfaite. Un article de Blackford et col. (1988) fait état d'une fonction d'efficacité imparfaite à partir de  $2,5 \mu\text{m}$ . Des premières corrections prenant en compte l'efficacité de l'APS lui-même sont en cours, et conduisent à de meilleurs résultats.

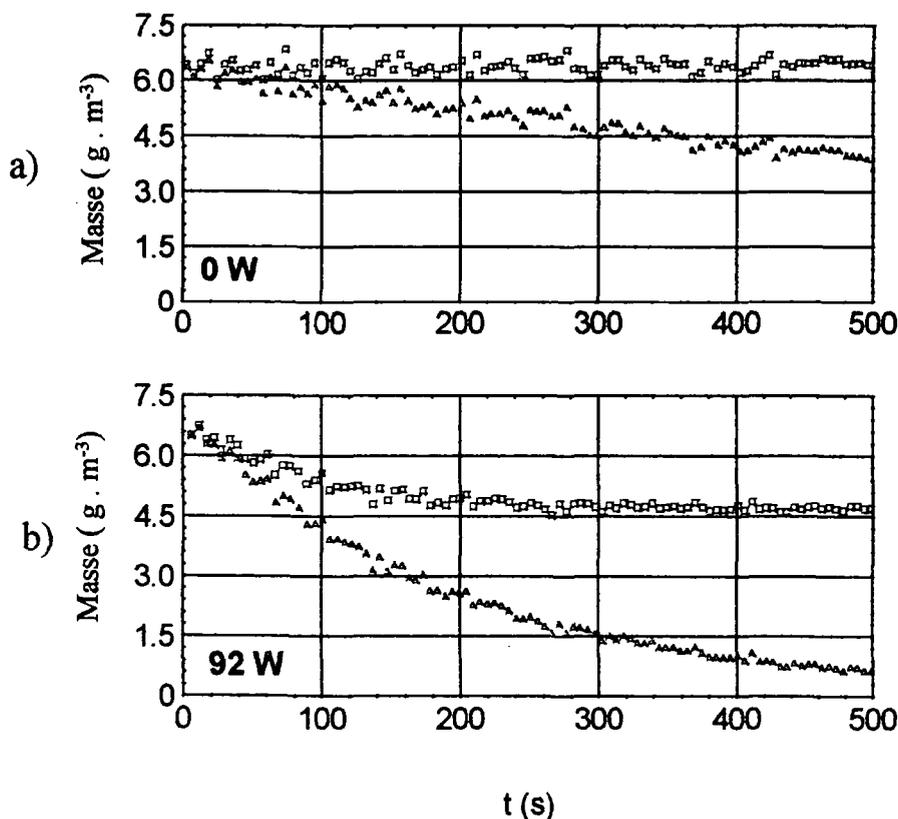


Fig.2: (▲) : masse d'aérosol; (□) somme de la masse d'aérosol et de la masse perdue aux frontières, calculées grâce à la relation (1). Le cas de l'agglomération Brownienne (a) et celui d'une agglomération acoustique à une puissance électrique de la source sonore de 92 W (b) sont présentés.

### INTERACTIONS ENTRE POPULATIONS DE PARTICULES:

La puissance  $P$  étant proportionnelle au carré de l'amplitude de vitesse  $V$  de l'onde sonore, le taux d'agglomération est linéairement relié à  $V^2$ . Ceci est en désaccord avec un modèle orthocinétique et en faveur d'un modèle hydrodynamique. L'influence réciproque de gouttelettes de différents diamètres sur leurs taux d'agglomération est importante à déterminer, et est reliée à l'évaluation de la fonction de fréquence de collision. Dans un premier temps, nous nous confinerons à étudier l'influence réciproque de deux populations de gouttelettes, telles qu'elles sont définies sur la fig. 3.

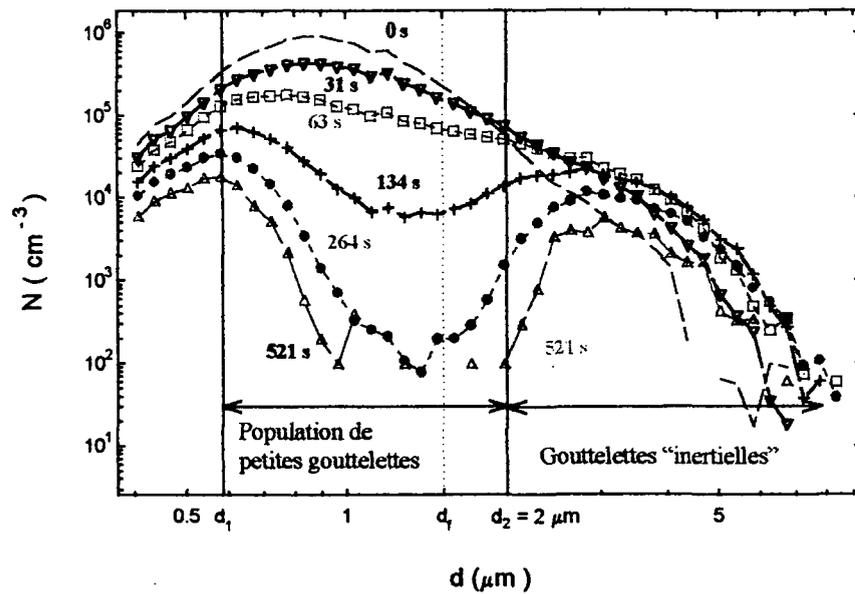


fig. 3: Evolution des distributions de tailles sous l'effet d'une source sonore de 21 kHz, à une puissance électrique de 92 W.

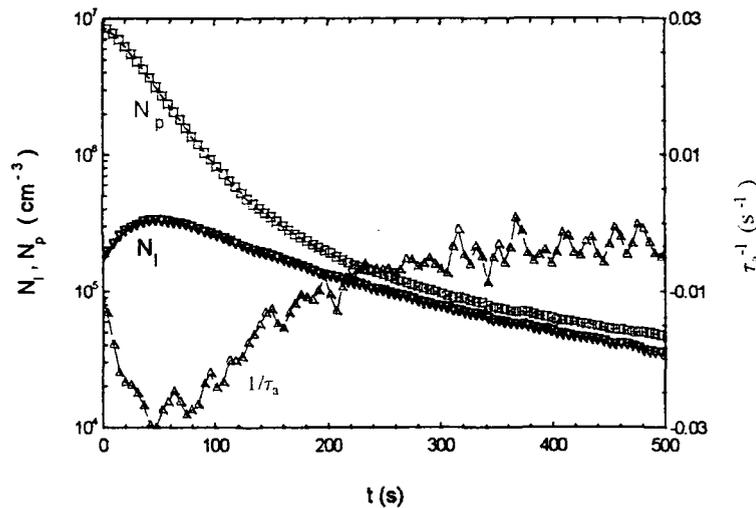


fig. 4: Evolution des nombres de petites gouttelettes  $N_p$ , et de gouttelettes inertielles,  $N_i$  en fonction du temps (échelle de gauche). Le taux d'agglomération acoustique  $1/\tau_a$  des petites particules est également représenté (échelle de droite) ( $P=92$  W).

Les distributions de taille ont été divisées en deux zones, l'une entre  $d_1$  et  $d_2$ , comprenant le diamètre  $d_f$  déjà défini par Capéran et col. (1994), qui correspond aux petites gouttelettes, quasiment entraînées

par l'onde. La deuxième zone correspond au pic de particules inertielles. Les nombres totaux de particules dans ces deux zones sont respectivement dénommées  $N_p$  et  $N_I$ . Dans de précédentes études (Somers et col., 1995; Capéran et col., 1995 b), le rôle joué par  $P$  est mis en évidence en utilisant le paramètre  $P \times t$ , qui exprime l'énergie consommée.

Dans l'étude présente, le paramètre  $t$  est éliminé, et une relation directe entre le taux d'agglomération  $1/\tau_a$  des petites particules, avec les paramètres  $N_I$  et  $P$  est recherchée. Le nombre de petites gouttelettes  $N_p$ , et de gouttelettes inertielles,  $N_I$ , sont représentés en fonction du temps sur la fig. 4. On constate un accroissement initial de  $N_I$ , correspondant à l'agglomération de petites gouttelettes, ce qui se traduit par une décroissance marquée de  $N_p$ . Cette décroissance augmente jusqu'au maximum de  $N_I$ , exprimant l'influence des particules inertielles comme centre d'agglomération des petites particules. Le taux d'agglomération  $1/\tau_a$  des petites particules, corrigé des pertes aux frontières, est également tracé sur la fig.4. Ce taux tend vers zéro aux grands temps, ce qui correspond à une extinction de l'effet d'agglomération acoustique.

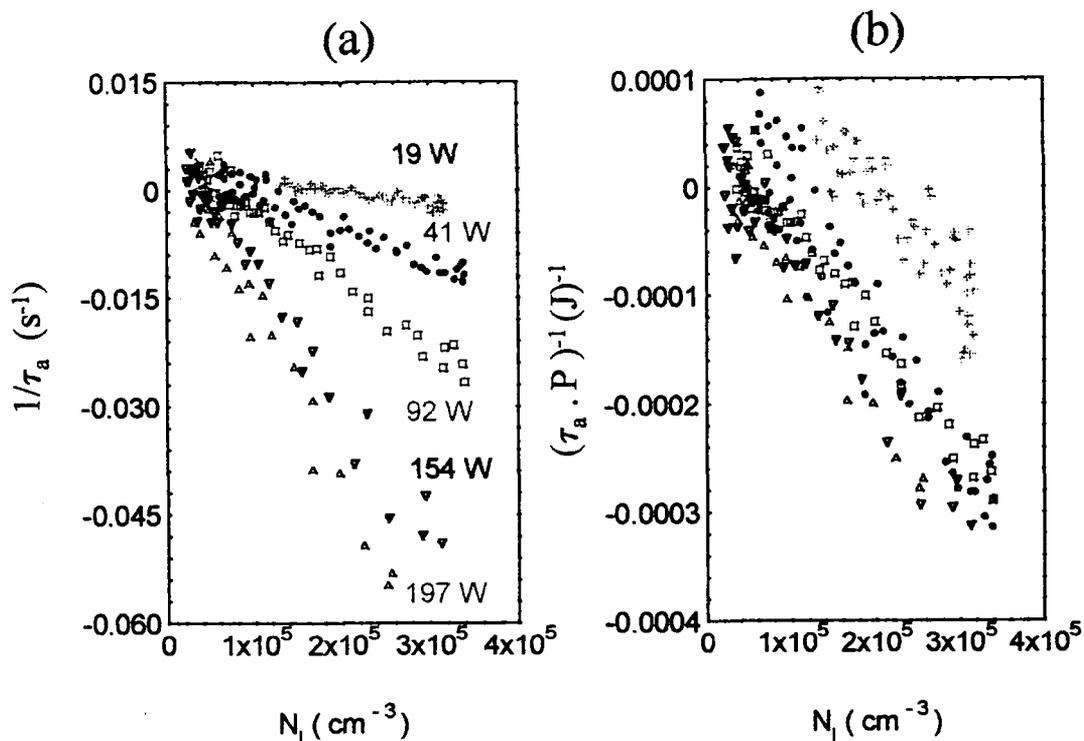


Fig. 5: (a): taux d'agglomération acoustique des petites gouttelettes tracés en fonction du nombre de gouttelettes inertielles; (b): taux d'agglomération acoustique normalisés par  $P$ .

Par élimination de  $t$  entre les courbes  $N_I(t)$  et  $1/\tau_a(t)$  de la fig. 4, on peut reporter sur la fig. 5.a les taux d'agglomération acoustique à différentes puissances en fonction du nombre de particules inertielles  $N_I$ . Une relation linéaire est ainsi mise en évidence entre  $1/\tau_a$  et  $N_I$ . Si les taux  $1/\tau_a$  sont normalisés par la puissance correspondante  $P$  (fig.5.b), toutes les courbes se regroupent en un seul lieu, sauf toutefois pour  $P=19$  W, qui reste cependant parallèle aux autres.

La relation:

$$1/\tau_a \cong P \times N_I \cong V^2 \times N_I \quad (2)$$

est expérimentalement établie, pour 2 populations particulières de gouttelettes. Elle montre que l'interaction entre fine gouttelettes et gouttelettes inertielles est hydrodynamique.

## CONCLUSIONS:

Les pertes d'aérosol aux frontières de la chambre acoustique ont été parfaitement évaluées, et certains problèmes de l'APS, qui apparaissent surtout du fait du caractère fortement instationnaire de l'expérience, sont maîtrisés. L'étude de l'interaction entre deux populations de particules a permis d'en dégager les paramètres essentiels.

Ces résultats ouvrent la voie vers une évaluation expérimentale de la fonction de fréquence de collision. Toutefois, toute évaluation de cette sorte est fortement tributaire du nombre de données expérimentales disponibles, qui contrôle la convergence statistique des algorithmes d'évaluation. Dans l'avenir, de premiers essais seront faits pour évaluer la fonction de fréquence de collision sur six classes de diamètres. Les statistiques peuvent être améliorées en travaillant directement avec les taux d'agglomération normalisés  $1/(\tau_a \times P)$ , ce qui étend le nombre de données expérimentales sur lesquelles l'évaluation est faite.

## REFERENCES

Blackford, D., A.E.Hanson, D.Y.H.Pui, P.Kinney, G.P.Ananth (1988), Details of recent work towards improving the performance of the TSI aerodynamic particle sizer, 1<sup>st</sup> an. conf. of the Aerosol Soc.

Boulaud D., Madelaine G., Malherbe C., Use of acoustic field in gas cleaning, 18th DOE Nuclear Airborne Waste Management and Air Cleaning Conference.

Capéran, Ph., J. Somers, K. Richter, and S. Fourcaudot (1995 a), Acoustic Agglomeration of a Fog Aerosol: Influence of Particle Concentration and Intensity of the Sound Field for Two Frequencies, Journal of Aerosol Science, Vol. 26, N° 4, pp595-612.

Capéran, Ph., J. Somers, and K. Richter (1995 b), On the time evolution of inertia and inertialess particle populations during acoustic agglomeration as a function of acoustic power, Journal of Aerosol Science, Vol. 26, S1, pp925-926.

Capéran, Ph., J. Somers, K. Richter, and S. Fourcaudot (1994), Influence of inertial particles on the acoustic agglomeration of a titanium dioxide aerosol, 4<sup>th</sup> International Aerosol Conference in Los Angeles.

Capéran, Ph., J. Somers, K. Richter, and S. Fourcaudot (1993), Evolution et rôle des particules stationnaires lors de l'agglomération d'un brouillard en chambre acoustique, Comptes-Rendus des '10<sup>èmes</sup> Journées d'Etudes sur les Aérosols', p131.

Horn H.G. (1993), A new technique for automatic phantom and coincidence count reduction in the aerodynamic particle sizer APS 3310, Rep. S. on Aerosol Sc. 23, Finnish Ass. for Aerosol Res., 185-190.

Somers, J., Ph.Capéran, K. Richter, S. Fourcaudot (1995), Acoustic Agglomeration of Titanium Dioxide in the Presence of Stationary Droplets as a Function of the Wave Energy, 9<sup>th</sup> an. conf. of the Aerosol Soc., Univ. of East-Anglia.

# ETUDE EXPERIMENTALE DE LA PHASE LIQUIDE DISPERSEE DANS UN ECOULEMENT DIPHASIQUE EN TUYERE CONVERGENTE-DIVERGENTE

K. Jurski\*, E. Géhin\*, M. Dégératu\*\*, G. Piar\*

\*LETIEF, IUT Université Paris XII Val de Marne, URA CNRS 1508; \*\*U.T.C. Bucarest

**Abstract :** *This paper provides an experimental study of a high gas quality two-phase flow (wet air and droplets) in a converging diverging nozzle. The gas flow behaviour is described by a single-phase one-component model, whereas the droplets characteristics study relies on the slip velocity measurement in the converging part of the nozzle. The experimental results underline a great mechanical non-equilibrium, mass transfer between vapor and droplets, and collision process near the throat.*

**Résumé :** *Cette étude vise à déterminer les différentes caractéristiques d'un fluide diphasique (air humide et gouttelettes) à faible teneur en eau, en écoulement critique dans une tuyère convergente-divergente. L'évolution de la phase gazeuse est décrite par un modèle monophasique monoconstituant. L'étude des paramètres de la phase liquide dispersée est basée sur la mesure de la vitesse relative entre le gaz et les gouttes lors de l'accélération du fluide dans le convergent. Ces mesures mettent en évidence un déséquilibre mécanique notable, un grossissement des gouttes par condensation de vapeur en surface, ainsi que des phénomènes de coalescence à l'approche du col.*

**Mots clés :** *fluide diphasique, air humide, gouttes, écoulement critique, tuyère, vélocimétrie laser, granulométrie.*

## Nomenclature

$A$ : section de la tuyère	$r$ : rayon moyen des gouttes	$\alpha$ : taux de vide
$c_i$ : coefficient de traînée	$R$ : constante des gaz parfaits	$\varepsilon$ : humidité relative
$e$ : épaisseur de la tuyère	$R_c$ : rayon équivalent de la conduite	$\rho$ : masse volumique
$f_e$ : fréquence d'échantillonnage	$R_e$ : nombre de Reynolds	$\nu$ : viscosité cinématique
$G$ : gain de l'amplificateur	$R_{ed}$ : Reynolds des gouttes	$\mu$ : viscosité dynamique
$h$ : hauteur de la tuyère	$t$ : temps	
$\dot{m}$ : débit massique	$T$ : température	
$M$ : nombre de Mach	$v$ : vitesse axiale à mi-hauteur dans la tuyère	indices
$n$ : nombre de gouttes par $m^3$ d'air sec	$w_s$ : humidité absolue	$l$ : relatif à la phase liquide
$p$ : pression	$z$ : abscisse sur l'axe principal de l'écoulement	$g$ : relatif à la phase gazeuse
$p_{vs}$ : pression de vapeur saturante		$0$ : relatif aux conditions génératrices

## Introduction

Lors de la rupture accidentelle d'une canalisation ou d'un réservoir sous pression, le fluide transporté subit de fortes accélérations au passage de la brèche et se disperse dans l'atmosphère. La caractérisation de cette dispersion, qui est nécessaire à la conception des systèmes ayant pour but de récupérer et de traiter les produits rejetés, passe par la détermination des paramètres relatifs à l'écoulement au passage de la brèche.

Ce type d'accident peut être simulé par un écoulement de vapeur condensable dans une tuyère convergente-divergente généralement critique en début de dépressurisation.

Le manque de données relatives à ce genre d'écoulement a motivé une étude expérimentale entreprise au LETIEF par l'intermédiaire d'une boucle d'essai « TAPIOCA ». Cette étude met en évidence le déséquilibre mécanique entre le gaz et la phase liquide dispersée, et présente l'évolution des caractéristiques en vitesse et en rayon des gouttelettes dans l'écoulement.

## Présentation de la boucle d'essai TAPIOCA

La boucle d'essai tapioca (figure 1) est constituée de deux réservoirs de  $0.8 \text{ m}^3$  reliés par une veine de 82 mm de diamètre intérieur, comportant une tuyère convergente-divergente de section rectangulaire.

( $e \times h$ ) située à mi-distance des réservoirs amont et aval. Deux parois transparentes permettent la visualisation de l'écoulement ainsi que des mesures par vélocimétrie. Le profil de tuyère est donné en annexe 1.

Le tir est provoqué par une différence de pression (décharge) entre les deux réservoirs. Les mesures sont réalisées pour des différentiels inférieurs ou égaux à 7 bars. Deux catégories de fluide peuvent être employées : fluides condensables (air humide ou R22) ou non condensables (azote) dans nos conditions d'utilisation. Le contrôle de la température dans les réservoirs amont et aval est assuré par un circuit de chauffage et de refroidissement. La durée d'un « tir » est de 60 secondes. Sur cet intervalle de temps, les réponses des différents capteurs (mesures de pression et température) sont enregistrées, stockées, puis converties en unités physiques. La fréquence d'acquisition est de 100 Hz.

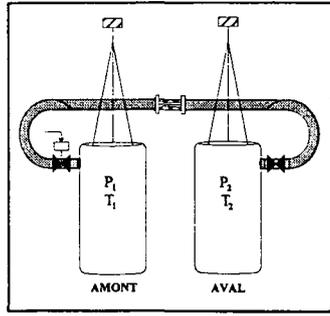


figure 1 : Cette installation permet à partir d'un état générateur vapeur ou liquide saturant, de créer un écoulement diphasique critique en début de « tir », puis subcritique en fin de « tir ».

### Écoulements critiques d'air humide saturé

Contrairement aux écoulements diphasiques air-eau générés par injection de liquide [1] la boucle d'essai TAPIOCA permet d'obtenir une répartition naturellement homogène des gouttelettes au sein de l'écoulement car elles apparaissent par condensation spontanée avant leur entrée dans la tuyère. L'écoulement s'effectue comme on le précisera par la suite avec transfert de masse (eau vapeur - eau liquide) dans le convergent, c'est à dire que la condensation se poursuit dans le convergent. Cependant, compte tenu de la faible teneur en vapeur d'eau des airs humides employés, un modèle de type « air sec » est utilisé pour caractériser l'évolution de la phase gazeuse de l'écoulement. La phase liquide peut alors être considérée comme un traceur naturel de l'écoulement dont le déséquilibre mécanique est étudié expérimentalement en comparant les mesures de vitesses de gouttelettes aux vitesses de gaz prédites par le modèle.

### Caractérisation de l'évolution de la phase gazeuse lors d'un « tir »

L'état générateur de l'écoulement créé par la boucle d'essai TAPIOCA varie au cours du temps. Il est cependant possible de considérer qu'un tir est composé d'une succession d'écoulements permanents. En effet, la variation relative de pression et de température génératrices (figure 2) est très faible ( $< 0,001\%$ ) durant le temps de passage d'une particule fluide dans la tuyère ( $\tau \approx 10^{-4} s$ ).

En considérant en première approximation, l'air humide comme un gaz parfait diatomique ( $\gamma = 1,4$ ) et l'écoulement dans la tuyère comme unidimensionnel adiabatique réversible (en dehors des ondes de chocs), sans échange de travail avec l'extérieur, on obtient les relations classiques :

$$m_g = \frac{A \cdot M \cdot p_0}{(1 + \frac{\gamma-1}{2} M^2)^{\frac{\gamma+1}{2(\gamma-1)}}} \sqrt{\frac{\gamma}{R \cdot T_0}} \quad \{1\}$$

$$\frac{p_0}{p} = (1 + \frac{\gamma-1}{2} M^2)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}} \quad \{2\}$$

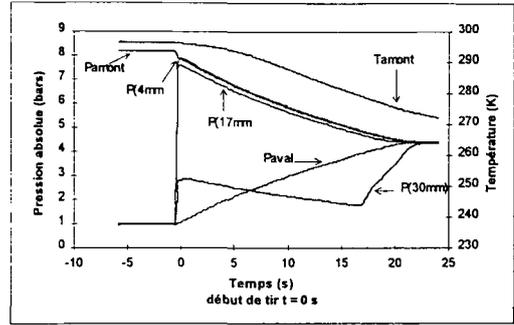


figure 2 : Evolution au cours d'un « tir » des pressions et températures génératrices ainsi que des pressions mesurées en différents points de la tuyère ( $z = 4 mm$ ,  $z = 17 mm$ ,  $z = 30 mm$ )

En début de tir l'écoulement est critique au col ( $M = 1$ ). Le débit massique dans ce cas ne dépend que de la section au col et des conditions génératrices. Lorsque l'écoulement n'est plus critique (fin de tir) on détermine le débit massique à partir de la mesure de pression à l'abscisse  $z = 17 mm$  dans la tuyère. Le débit massique total est conservé dans l'écoulement ce qui permet

d'obtenir le rapport  $\frac{p}{p_0}$  en chaque section du

convergent. Afin de vérifier le bien fondé de l'utilisation du modèle décrit ci-dessus, nous l'avons confronté à une série de mesures de pression dans la tuyère à différents instants du tir. L'écart obtenu entre les valeurs calculées et les rapports de pression mesurés dans le convergent reste inférieur à 1% (figure 3). Dans le divergent les résultats s'écartent du modèle du fait de l'apparition d'une onde de choc oblique que nous n'avons pas cherché à caractériser ici.

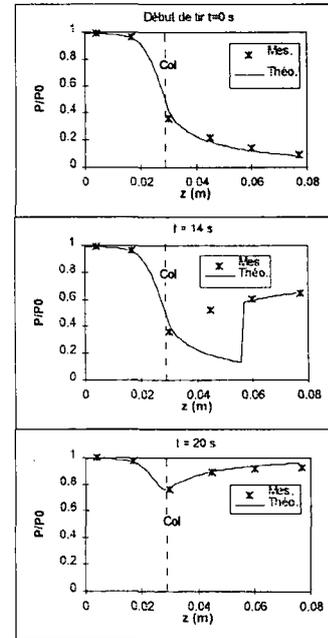


figure 3 : Evolution de profils de pression dans la tuyère. Comparaison des mesures de pression avec les valeurs calculées. A  $t = 0 s$  la tuyère est critique supersonique dans le convergent, à  $t = 14 s$  la tuyère est critique avec onde de choc dans le divergent et à  $t = 20 s$  la tuyère est entièrement subsonique.

La vitesse axiale du gaz est liée au débit massique par une relation semi-empirique relative aux écoulements turbulents pour des parois lisses en section circulaire. En négligeant la contribution au débit de la sous couche laminaire de l'écoulement, la vitesse axiale à un instant  $t$  et à la position  $z$  dans la tuyère s'écrit [2]:

$$v_g = B \cdot (2,5 \cdot \ln(Rc \cdot \frac{B}{v_g}) + 6,15) \quad \{3\}$$

$B$  est une constante qui dépend du débit massique de gaz :

$$\frac{\dot{m}_g}{\rho_g A} = B \cdot (2,5 \cdot \ln(Rc \cdot \frac{B}{v_g}) + 2,04) \quad \{4\}$$

$$\text{avec : } Rc = \frac{e \cdot h}{e + h}$$

#### Etude de l'évolution de la phase liquide

L'air humide sous pression dans le réservoir amont est saturé ( $\varepsilon = 100\%$ ). La masse d'eau contenue dans un kilogramme d'air sec pour un air humide saturé à la pression  $p$  et la température  $T$  peut être calculée par la relation [3] :

$$w_s = 0,62198 \frac{p_{vs}}{p - p_{vs}} \quad \{5\}$$

$p_{vs}$  est fonction de la température  $T$ .

Pour  $T$  comprise entre  $-50$  °C et  $100$  °C :

$$\begin{aligned} \log_{10}(p_{vs}) = & 10,79586 \cdot (1 - \theta) + 5,02808 \cdot \log_{10}(\theta) \\ & + 1,50474 \times 10^{-4} \cdot (1 - 10^{-8,29692 \cdot (\frac{1}{\theta} - 1)}) \\ & + 0,42873 \times 10^{-3} \cdot (10^{4,76955 \cdot (1 - \theta)} - 1) - 2,2195983 \end{aligned} \quad \{6\}$$

Avec :  $\theta = \frac{273,16}{T}$   $T$  en kelvin et  $p_{vs}$  en atmosphère.

En début de tir ( $p_0 \approx 8$  bars,  $T_0 \approx 20$ °C) la masse de vapeur d'eau contenue dans l'air du réservoir amont est d'environ  $0,002$  kg/kg d'air sec. Au cours d'un tir, l'air humide se refroidit dans le réservoir (cf figure 2),  $w_s$  diminue et une partie de la vapeur d'eau se condense formant un brouillard de gouttelettes qui sont entraînées dans l'écoulement. Le débit de liquide à l'abscisse  $z$  dans la tuyère à l'instant  $t$  peut être calculé par la relation suivante :

$$\dot{m}_l = (w_{s0}(t=0s) - w_s) \cdot \dot{m}_g \quad \{7\}$$

L'évolution des débits massiques de gaz, de liquide et total en entrée de tuyère est donnée en figure 4. Le débit de liquide est négligeable pour des temps compris entre 0 seconde et 5 secondes puis augmente régulièrement jusqu'à atteindre un maximum à un instant correspondant sensiblement au déblocage du col de la tuyère ( $t = 19$  s), le débit massique diminue alors rapidement entraînant une diminution proportionnelle du débit de liquide. Le taux de vide ( $\alpha$ ) correspondant est très proche de 1 ( $0,999993 < \alpha < 1$ ). La figure 5 montre l'augmentation du débit de liquide dans le convergent à un instant donné. Le débit de liquide

est 5 fois supérieur en  $z = 25$  mm qu'en entrée de tuyère.

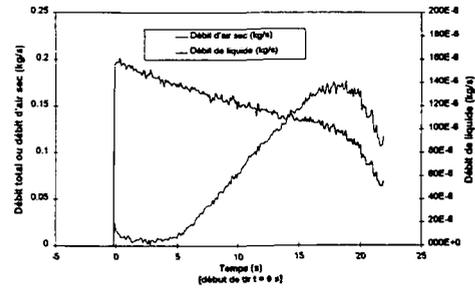


figure 4 : Evolution des débits de gaz et de liquide en entrée de tuyère.

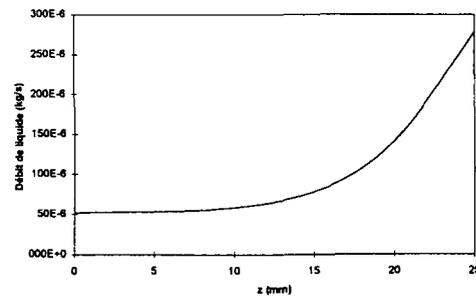


figure 5 : Débit de liquide dans le convergent à l'instant  $t = 8$  s après le début du tir

#### Mesures de vitesses axiales de la phase dispersée

Lors de la détente, la phase liquide dispersée est entraînée, l'écoulement est diphasique dès l'entrée de la tuyère. Les gouttelettes sont supposées sphériques et monodispersées. Afin d'étudier la répartition de vitesse de gouttes soumises à une forte accélération dans le convergent, une série de mesures de vitesses locales axiales a été effectuée pour des conditions génératrices pression, température et humidité relative quasi-identiques. Le convergent est axialement discrétisé par pas de 2 mm pour des abscisses allant de  $z = 7$  mm (début de convergent) à  $z = 25$  mm (fin convergent). Chaque série de mesures de vitesses est couplée à des mesures de pressions (amont, tuyère, aval) et températures (amont, aval).

#### Appareillage

La mesure de vitesse locale des gouttelettes est réalisée par vélocimétrie laser. Parmi les nombreuses techniques non intrusives couramment utilisées pour la détermination des vitesses de particules dans un écoulement c'est l'une des mieux adaptées à l'étude des écoulements turbulents à vitesses élevées [4].

Le vélocimètre réalisé au laboratoire fonctionne en configuration monodimensionnelle diffusion avant. En effet, les gouttelettes présentes dans l'écoulement peuvent être de diamètre inférieure à  $1 \mu\text{m}$ . Nous avons donc préféré une configuration

en diffusion avant qui permet de détecter des bouffées Doppler de façon plus efficace qu'une configuration diffusion arrière [5].

Le vélocimètre est constitué d'une diode laser 670 nm (rouge) de 10 mW, d'une optique de séparation du faisceau laser, d'une lentille convergente. Le photorécepteur est une photodiode à avalanche de forte sensibilité. Ce type de vélocimètre a été développé et étudié depuis 1986 [6], [7], [8].

Le signal est filtré passe-bande, amplifié ( $G = 45$  dB), échantillonné ( $f_e \leq 40$  Mhz) puis traité. Le choix du traitement du signal s'est porté sur une analyse par Densité Spectrale de Puissance. La DSP est obtenue par moyennage du module carré de la Transformée de Fourier de portions limitées du signal (16 échantillons). Ceci permet d'opérer dans des conditions de mesures difficiles (signal Doppler bruité et faible temps de transit dans le volume de mesure) [4], [9]. Les différents paramètres du vélocimètre ainsi que les dimensions du volume de mesure sont indiqués en annexe 2.

#### Analyse temporelle et spectrale des vitesses

Les vitesses mesurées en différente section de la tuyère et en fonction du temps sont présentées en figure 6. Les évolutions de vitesses sont à relier à la configuration de l'écoulement, qui jusqu'à  $t = 19$  s est en branche critique dans le convergent. Les vitesses axiales de gouttes présentent toutes un palier légèrement décroissant (puisque  $T_0$  diminue), puis chutent rapidement dès le déblocage du col. Le passage des gouttelettes dans le volume de mesure n'est détecté qu'en moyenne 5 s après le déclenchement du tir. Ce qui correspond à l'instant où le débit de liquide dans l'écoulement devient non négligeable (figure 4).

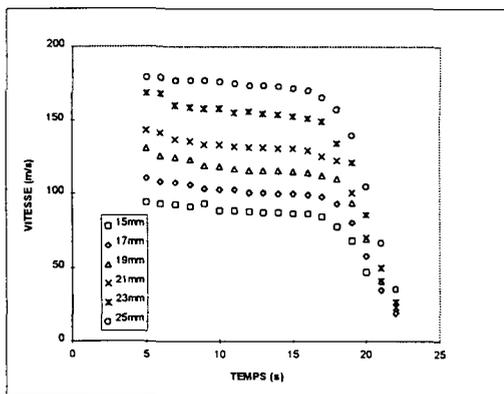


figure 6 : Evolution des vitesses axiales de gouttelettes pour différentes abscisses dans le convergent.

La figure 7 présente les profils de vitesse de gouttes à différents instants. Celui-ci conserve une allure croissante tant que l'écoulement est critique. La remontée de pression lors du déblocage du col induit un aplatissement progressif du profil de vitesse. La chute de vitesse est d'abord visible en fin de convergent puis en début de convergent. Les

vitesses mesurées en début de tir s'échelonnent de 60 m/s à 190 m/s ( $R_e$  variant de  $3 \times 10^5$  à  $6 \times 10^5$ ) mettant en évidence la forte accélération à laquelle sont soumises les gouttelettes.

La figure 7 présente également l'évolution du profil de vitesses du gaz à  $t = 8$  s. Cette vitesse théorique est à comparer au profil de vitesses des gouttes mesurées au même instant.

La précision de nos valeurs tant d'un point de vue expérimental que théorique ne permet pas de déterminer une vitesse relative entre phases pour des abscisses inférieures à  $z = 17$  mm. Cependant, il faut remarquer que dans cette partie du convergent ( $z < 17$  mm), les valeurs des vitesses de gaz calculées sont inférieures aux vitesses de gouttes mesurées. Ceci semblerait être lié à une légère sous-estimation de la vitesse axiale du gaz.

Pour des abscisses supérieures à 17 mm, il est possible de déterminer l'écart de vitesse entre le gaz et les gouttes : le déséquilibre mécanique devient significatif et s'accroît à l'approche du col.

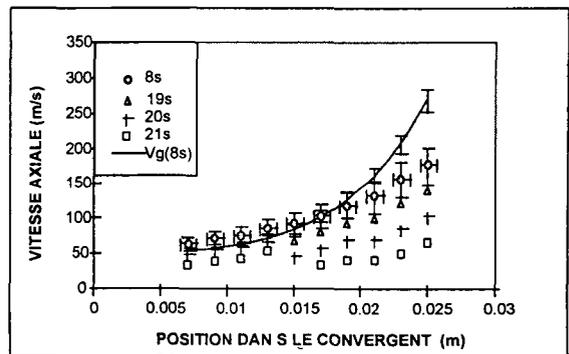


figure 7 : Profil de vitesse axiale de la phase liquide dispersée pour différents instants. La vitesse axiale du gaz pour  $t = 8$  s est tracé en trait continu. Cette vitesse est à comparer à la vitesse des gouttes au même instant.

#### Caractérisation du déséquilibre mécanique

La méthode employée ici pour la détermination du déséquilibre mécanique s'apparente aux techniques de calibration utilisées pour l'Aerodynamic Particle Sizer (APS - TSI, Inc. St Paul MN) où l'on évalue le rayon moyen des gouttes soumises à une accélération par mesure de la vitesse relative entre phases. Le bilan de quantité de mouvement appliqué aux gouttes dans l'écoulement s'écrit :

$$\rho_l \cdot v_l \cdot \frac{dv_l}{dz} = -\frac{3}{8} \cdot \frac{c_t}{r} \cdot \rho_g \cdot (v_l - v_g) |v_l - v_g| - \frac{dp}{dz} \quad \{8\}$$

Avec  $c_t$  le coefficient de traînée calculé d'après Vromman [10]

$$c_t = 6,3 \cdot R_{ed}^{-0,385}$$

pour  $10 < Re_d = \frac{2 \cdot \rho_g \cdot |v_g - v_l| \cdot r}{\mu_g} < 1200$

Connaissant pour une section donnée l'accélération des gouttes, la chute de pression et le déséquilibre mécanique gaz-gouttes, il est possible de calculer le rayon des gouttes et leur nombre à l'aide des équations suivantes:

$$r = \left( \frac{\rho_l \cdot v_l \cdot \frac{dv_l}{dz} + \frac{dp}{dz}}{1,809 \cdot \mu_g^{0,385} \cdot \rho_g^{0,615}} \right)^{-\frac{1}{1,385}} \cdot (v_g - v_l)^{1,166} \quad \{9\}$$

$$n = \frac{w_{s0}(t=0) - w_s}{\frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r^3} \cdot \frac{\rho_g}{\rho_l} \quad \{10\}$$

Le profil de vitesses des gouttes mesurées peut être approximé par un polynôme d'ordre 3.

L'accélération d'entraînement des gouttes ( $v_l \cdot \frac{dv_l}{dz}$ )

est fonction de la dérivée première de ce polynôme. La vitesse relative entre phases ( $v_g - v_l$ ) est déterminée par la différence entre les vitesses de gouttes mesurées et les vitesses théoriques du gaz pour des abscisses supérieures à 17 mm.

Le rayon moyen des gouttes calculé à l'aide de l'équation {9} évolue de 1 µm à 4 µm environ à l'approche du col (figure 8).

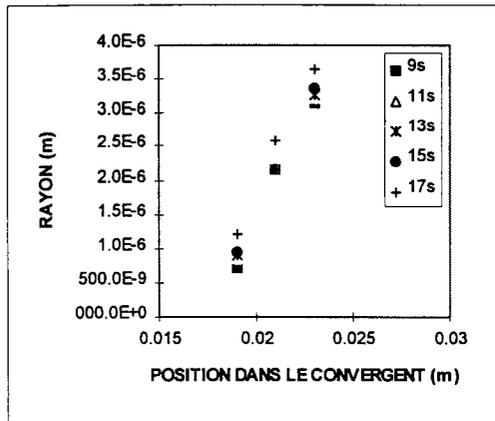


figure 8 : Evolution du rayon moyen de la phase liquide dispersée dans le convergent pour différents instants.

L'augmentation du débit liquide dans le convergent à un instant donné ne semble pas être le seul facteur expliquant le grossissement des gouttes. En effet, le nombre de gouttes par m<sup>3</sup> d'air sec, calculé à l'aide de l'équation {10} pour différents points du convergent, diminue à l'approche du col (figure 9). Il semble donc que l'augmentation du rayon soit lié d'une part à la poursuite de la condensation de vapeur à la surface des gouttes dans le convergent, et d'autre part à des phénomènes de coalescence de gouttelettes à l'approche du col.

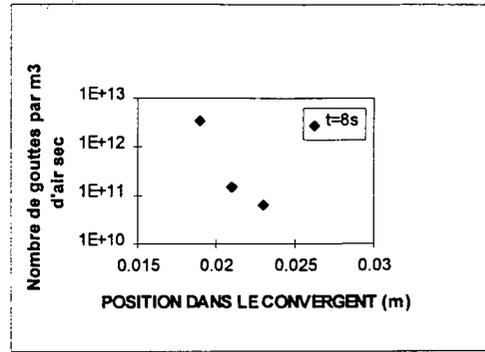


Figure 9 : Evolution du nombre de gouttes par m<sup>3</sup> d'air sec dans le convergent à l'instant t = 8 s.

La figure 10 montre l'évolution du rayon des gouttes au cours du temps pour différentes sections. En écoulement critique les gouttes gardent en une section donnée un rayon moyen constant. Il semble que l'évolution du rayon en une section dépende plus de la vitesse locale que de l'évolution de la masse d'eau condensée dans l'écoulement.

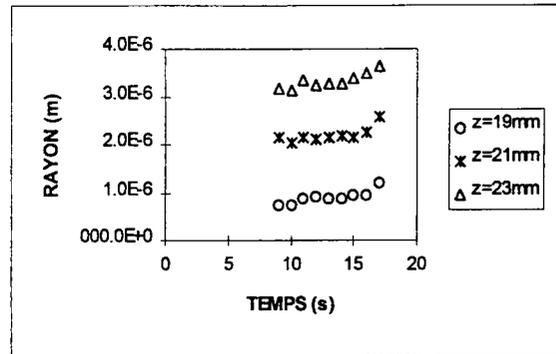


figure 10 : Evolution du rayon moyen de la phase liquide dispersée en différentes sections du convergent.

### Conclusion

Cette étude nous a permis de déterminer le comportement d'un fluide diphasique (gouttelettes et air humide) à faible teneur en eau (2g d'eau liquide par kg d'air sec) en écoulement dans un convergent.

Le paramètre vitesse de la phase gazeuse a été déterminé sur les bases d'un modèle monophasique monoconstituant.

La phase liquide dispersée, obtenue par condensation spontanée de la vapeur à l'amont de la tuyère, a été caractérisée en vitesses.

Nous avons ainsi mesuré la répartition des vitesses de gouttes, qui s'échelonnent de 60 m/s à 190 m/s entre le début et la fin du convergent.

Il a été montré qu'il existait un déséquilibre mécanique important entre phases à l'approche du col puisqu'à la fin du convergent l'écart de vitesses entre gaz et gouttes est de l'ordre de 40%.

Par l'intermédiaire des vitesses relatives entre phases et d'un bilan de quantité de mouvement sur la phase liquide dispersée, nous avons mis en

évidence une augmentation du rayon moyen des gouttes dans le convergent.

De plus, une analyse temporelle montre que les gouttelettes gardent en régime bloqué un rayon constant en une même section.

Parallèlement à l'augmentation du rayon, on constate une diminution du nombre de gouttelettes par m<sup>3</sup> d'air sec dans le convergent. A l'approche du col, le rétrécissement de la section de passage et de l'espace inter-gouttes semble donc favoriser une coalescence par collision.

En conclusion à cette étude quelques remarques s'imposent :

– notre étude est basée sur l'hypothèse largement admise que le brouillard de gouttelettes formées par condensation spontanée est très monodispersé [11]. La configuration de notre installation expérimentale nous amène cependant à nuancer cette hypothèse. En effet, entre la sortie du réservoir et l'entrée de la tuyère, les gouttelettes parcourent une distance non négligeable, distance sur laquelle les caractéristiques rayons et dispersion en rayon peuvent évoluer.

– l'évaluation du rayon reste très sensible à la détermination de la vitesse relative entre phases et notamment au terme « vitesse gaz ». Or, la prédiction du modèle semble légèrement sous-estimer la valeur vraie de la vitesse du gaz. Il serait donc intéressant de comparer ces résultats en rayon à des mesures de granulométrie dans le convergent.

– l'ensemble de ces résultats expérimentaux constituera une base à la validation expérimentale d'un modèle à trois champs (gaz, gouttes, film) développé au laboratoire.

## Annexes

### Annexe 1 : Profil de tuyère

$0 < z \leq 0,0285 \text{ m}$	$h / z = a_0 + a_1 z + a_2 z^2 + a_3 z^3 + a_4 z^4 + a_5 z^5 + a_6 z^6$
$0,0285 \text{ m} < z < 0,076 \text{ m}$	$h / z = 0,1312 z + 0,0016$
$0 < z < 0,076 \text{ m}$	$e = -0,0038 z + 0,0099$

Avec  $h$ ,  $e$  et  $z$  exprimés en mètre, les coefficients  $a$  sont :

$$a_0 = 0,025, a_1 = -0,0641824, a_2 = 24,9652, a_3 = -1,08638 \times 10^4,$$

$$a_4 = 5,79171 \times 10^3, a_5 = -1,05541 \times 10^7, a_6 = 5,55293 \times 10^7$$

### Annexe 2 : Caractéristiques du vélocimètre laser

configuration	1D diffusion avant
longueur d'onde laser	670 nm
puissance du laser	10 mW
diamètre faisceau laser focalisé	260 $\mu\text{m}$
focale de la lentille	1000 mm
angle d'intersection	2,28°
interfrange :	16,8 $\mu\text{m}$
diamètre du volume de mesure :	260 $\mu\text{m}$
longueur du volume de mesure :	12 mm
nombre de franges :	15

## Références bibliographiques

- [1] SELMER OLSEN S., *Etude théorique et expérimentale des écoulements diphasiques en tuyère convergente-divergente*. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble, 1991.
- [2] PADET J.P., *Fluides en écoulement, Méthodes et modèles*. Masson, Paris, 1991.
- [3] BULLOCK C., DAVIES J., *ASHRAE Handbook of Fundamentals, Heating Refrigerant Ventilating and Air Conditioning*, 3<sup>rd</sup> édition, 1976.
- [4] BOUTIER A., *La vélocimétrie laser appliquée à l'étude des écoulements à vitesse élevée*, Colloque sur les Ecoulements Turbulents, Poitiers, 10-12 mars 1986.
- [5] DURST F., MELLING A., *Principle and practice of laser Doppler anemometry*. Academic Press, 1981.
- [6] DOPEIDE D., TAUX G., REIM G., FABER M., *Laser Doppler Anemometry using Laser Diodes and Solid-State Photodetectors*, Proceedings of the 3<sup>rd</sup> International Symposium on Laser Anemometry, Lisbon, 1986.
- [7] BELOUSOV P.Y., DUBNISTSHEV Y.N., MELEDIN V.G., *Optical velocimeters for moving surfaces using gas and semiconductor lasers*, Optics and Laser Technology, vol. 22, No 5, 1990
- [8] DURST F., MULLER R., NAQWI A., *Semiconductor Laser Doppler Anemometer for Application in Aerodynamic Research*, AIAA Journal, vol. 30, No. 4, April 1992
- [9] MAX J., *Méthodes et Techniques de Traitement du Signal et Application aux Mesures Physiques*, Masson, 1987.
- [10] VROMMAN T., *Modélisation des Ecoulements Critiques Diphasiques dans un Homogénéisateur de Fluides Pétroliers*, Thèse de Doctorat, Unité Thermodynamique et Turbomachines, Université Catholique de Louvain, Belgique, 1988.
- [11] KLEITZ A., *Théorie de la condensation spontanée de la vapeur en cours de détente*, Cycles de conférences sur les « Phénomènes thermiques et hydrauliques non stationnaires », Jouy-en-Josas, 11-15 oct. 1976.

11èmes JOURNEES D'ETUDES SUR LES AEROSOLS  
(COFERA, 5-6 décembre 1995, Paris)

\*\*\*

**PRODUCTION D'AEROSOLS EN PRESSION  
ET EN TEMPERATURE**

**D. DUCRET, D. ROBLLOT, J. VENDEL**

Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire  
Département de Protection de l'Environnement et des Installations  
IPSN/CEA, 91191 GIF-SUR-YVETTE Cédex, FRANCE

Résumé

La mise en oeuvre d'une expérimentation visant à déterminer les coefficients de collection des aérosols par des gouttes d'eau en chute libre, dans un mélange air-vapeur à différentes températures et pressions, nécessite de développer un générateur d'aérosols fonctionnant dans des gammes de températures et de pressions respectivement entre 20 et 140 °C et entre 1 et 5 bars. Les aérosols produits doivent être des particules solides, solubles, de diamètres variables (0,2 à 5 µm) et ce avec un débit massique de 0,1 g/h.

En tenant compte de l'ensemble de ces contraintes opératoires, deux voies sont envisagées :

- ▶ la pulvérisation par ondes ultrasonores: les essais réalisés montrent la forte décroissance du débit massique de production lorsque la pression augmente,
- ▶ la pulvérisation mécanique par disque rotatif: le prototype, développé à partir d'une turbine à palier à air, permet d'atteindre nos objectifs en terme de débit massique et de dispersion granulométrique.

Cette communication présente l'appareillage et les résultats expérimentaux (débits massiques et granulométries) obtenus dans différentes conditions de pression et de température.

Abstract

An experimental setting, in order to determine aerosols collection coefficients by falling drop in air-steam mixing, requires the development of an aerosol generator operating in temperature (20 to 140 °C) and in pressure (1 to 5 bars) and these with a mass flow rate of 0.1 g/h.

Using these operating conditions, two possibilities are studied:

- ▶ ultrasound pulverization: experimental results show that aerosols mass flow rate decreases when static pressure increases.
- ▶ mechanic pulverization by rotating disc: the prototype developed, by using an air bearing turbine, allows to reach ours objectives of mass flow rate and granulometric dispersion.

This paper presents equipment and experimental results (mass flow rate and distribution) obtained in different temperature and pressure conditions.

**1.- INTRODUCTION**

Dans le cadre des études liées aux accidents graves dans les Réacteur à Eau sous Pression (REP), une expérimentation visant à déterminer les coefficients de collection des aérosols par des gouttes d'eau en chute libre dans un mélange air-vapeur sous pression à différentes températures est en préparation. Il y a nécessité de développer un générateur d'aérosols adapté à des conditions thermodynamiques opératoires particulières, à savoir, une pression comprise entre 1 et 5 bars, une température variant de 20 et 140°C et une humidité relative élevée.

Les caractéristiques du générateur en terme de production d'aérosols doivent être les suivantes :

- des particules solides solubles
- des diamètres variables (de 0,2 à 5 µm)
- un faible écart-type  $\leq 1,6$
- un débit massique de 0,1 g/h

En tenant compte de l'ensemble de ces contraintes, deux voies sont envisagées.

**La pulvérisation ultrasonore**

Les générateurs ultrasonores existants répondent aux besoins dans les conditions de pression et de température

ambiantes. Par contre, la vérification expérimentale de l'adéquation de cette technologie avec les conditions opératoires particulières est indispensable. En effet, des problèmes de tenue en température des éléments constitutifs du générateur apparaissent, mais surtout une forte diminution du débit de production est observée lorsque la pression statique augmente.

### La pulvérisation mécanique

La pulvérisation mécanique par disque rotatif est une voie intéressante. La principale difficulté, d'ordre technologique, est d'obtenir des vitesses de rotation très élevées (plusieurs milliers de tours par seconde) pour produire la gamme d'aérosols souhaitée. Ce problème est résolu par l'utilisation d'une turbine avec palier à air (idée originale de P.Y. CHANAL du Laboratoire de Dispersion du Centre d'Etudes du Bouchet, présentée au congrès "The 1994 European Aerosols Conference").

La première étape de cette étude consiste à déterminer expérimentalement l'évolution du débit massique de production des aérosols des différents générateurs en fonction notamment de la pression. Dans un second temps, la granulométrie des aérosols produits par le générateur retenu, au cours de la première étape, est mesurée en fonction de différents paramètres de fonctionnement.

## 2. ETUDE DU DEBIT MASSIQUE

### 2.1. Montages expérimentaux

Les différents générateurs sont implantés dans une enceinte fonctionnant en pression et en température afin de mesurer les débits massiques de production d'aérosols de fluorescéine sodée.

#### 2.1.1. Description du banc d'essais

Un banc d'essais de Génération d'Aérosols en Pression et en Température (GAPT) a été réalisé. Il se décompose en trois parties :

- ▶ deux circuits parallèles de production d'air sous pression et en température afin d'obtenir un flux d'air de dispersion ( $= 0,6 \text{ m}^3/\text{h}$ ) et un flux d'air de séchage ( $= 6 \text{ m}^3/\text{h}$ ),
- ▶ une enceinte d'implantation des générateurs d'aérosols, équipée d'indicateurs de pression et de température, de hublots et de divers passages électriques et fluides adaptés à chaque générateur testé,
- ▶ un circuit de prélèvement des aérosols constitué d'un filtre THE et d'un by-pass permettant d'atteindre un régime de production stable avant le déclenchement des prélèvements.

#### 2.1.2. Méthode analytique

Le filtre de prélèvement est placé dans  $100 \text{ cm}^3$  d'eau amoniaquée ( $\text{pH} = 9$ ). La concentration de la solution de fluorescéine sodée obtenue par dissolution des aérosols est mesurée par fluorimétrie. Les longueurs d'ondes d'excitation (492 nm) et de fluorescence (520 nm) permettent de réaliser une analyse spécifique de l'aérosol généré et ainsi de s'affranchir d'éventuelles particules parasites présentes dans l'air vecteur. A partir de cette concentration, des facteurs de dilution et du temps de prélèvement, le débit massique de production d'aérosols est calculé.

#### 2.1.3. Description des générateurs d'aérosols

Les mesures de débits massiques sont réalisées avec quatre générateurs ultrasonores ayant des fréquences de résonance de céramiques différentes et un générateur par disque rotatif.

##### 2.1.3.1. Générateurs ultrasonores

Une céramique piézo-électrique est placée au fond d'un récipient contenant le liquide à aérosoliser. La mise en résonance de la céramique par un générateur de fréquence induit un faisceau d'ondes ultrasonores dirigé du fond du liquide vers sa surface. A partir d'un seuil de puissance, il y a formation d'une fontaine ultrasonore qui est à l'origine d'une émission de fines gouttelettes de solution. Bien que mal connu, le phénomène essentiel de production est la cavitation à la surface du liquide. Une relation empirique, vérifiée dans la gamme de fréquences de 12 kHz à 3 MHz, associe le diamètre médian des gouttelettes ( $D_g$ ) à la longueur d'onde capillaire à la surface du liquide ( $\lambda_c$ ):  $D_g = 0,34 \lambda_c$ .

$$\lambda_c = \left( \frac{8 \pi \sigma}{\rho \cdot F^2} \right)^{1/2}$$

$\sigma$  : tension de surface du liquide (N/m)

$\rho$  : masse volumique du liquide ( $\text{kg}/\text{m}^3$ )

$F$  : fréquence d'excitation de la céramique ( $\text{s}^{-1}$ )

Après séchage des gouttelettes produites, le diamètre théorique des aérosols ( $D_p$ ) est calculé par la relation :

$$D_p = D_g \left( \frac{C_s}{\rho_s} \right)^{1/3}$$

$C_s$  : concentration massique du sel de la solution ( $\text{kg/m}^3$ )

$\rho_s$  : masse volumique des aérosols ( $\text{kg/m}^3$ )

Chaque générateur d'aérosols est constitué d'un pot de pulvérisation contenant la solution, de la céramique piézo-électrique, son électronique associée et d'un système de dispersion des gouttelettes. Quatre dispositifs, ayant des fréquences de résonances différentes, sont testés : 80, 500, 800 et 2 400 kHz. Pour ces essais, les différents générateurs ultrasonores, adaptés aux caractéristiques géométriques de chacune des céramiques, sont intégrés dans l'enceinte du GAPT.

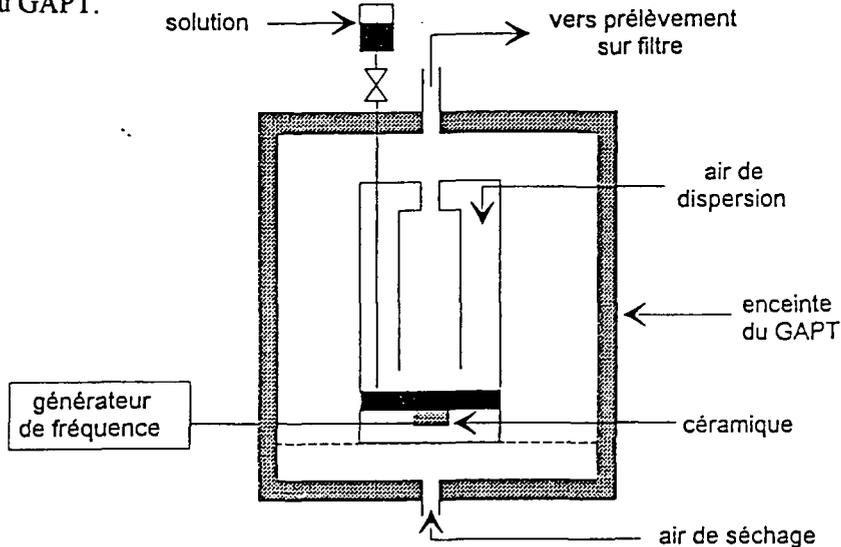


Figure 1 : Schéma d'implantation des générateurs ultrasonores dans l'enceinte du GAPT

**Remarque :** le dispositif expérimental à 80 kHz est un peu différent. En effet, la fontaine ultrasonore est remplacée par une lame vibrante liée à une céramique piézo-électrique.

### 2.1.3.2. Générateur par pulvérisation mécanique

Le prototype du générateur d'aérosols par disque rotatif est composé de trois éléments :

- le système de mise en rotation, constitué d'une turbine à palier à air alimenté en air comprimé.
- le tachymètre, basé sur l'induction électromagnétique. L'élément rotatif de la turbine a subi une polarisation magnétique. Une bobine est réalisée sur la turbine dans un plan parallèle à l'axe de rotation. Après amplification du courant sinusoïdal induit, la vitesse de rotation de la turbine se déduit de la mesure de la fréquence.
- le disque de pulvérisation est alimenté en solution à pulvériser à partir d'un pousse-seringue car le débit d'alimentation liquide doit être stable afin de former un film liquide sur le disque.

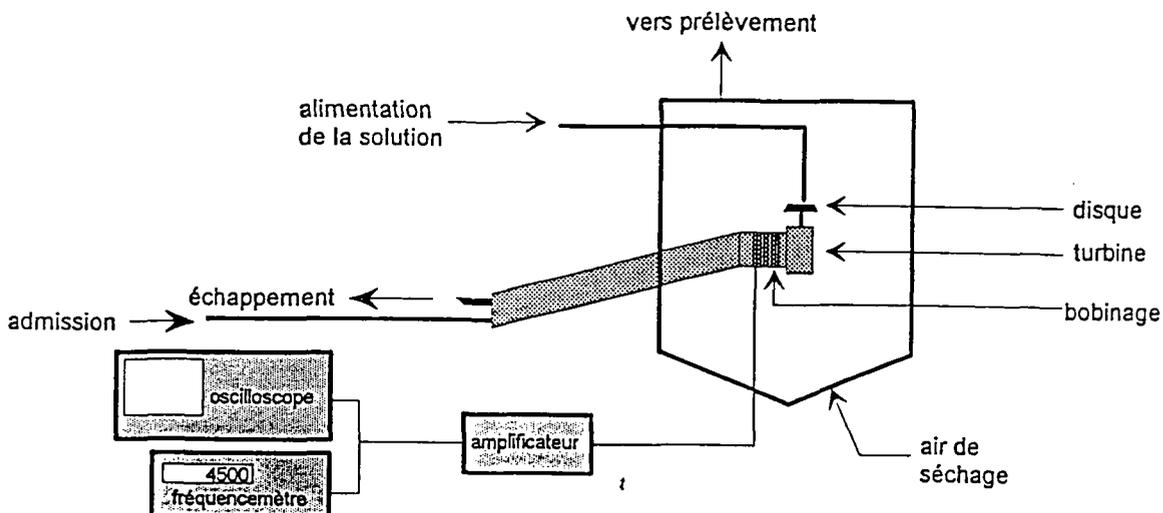


Figure 2 : Générateur par pulvérisation mécanique

## 2.2. Résultats expérimentaux

Le premier paramètre à prendre en compte pour le choix du générateur est le débit massique. L'ensemble des résultats présentés sont obtenus par pulvérisation ultrasonore ou mécanique d'une solution de fluorescéine sodée à 10 g/l.

### 2.2.1. Production ultrasonore

Les résultats expérimentaux (tableau 1) montrent la forte influence de la pression statique sur le débit massique de production. Il n'y a pas lieu de comparer les débits des différents dispositifs, pour un point de fonctionnement donné, car les électroniques associées à chaque céramique sont spécifiques donc les puissances délivrées sont variables. Par contre, il est intéressant de comparer les évolutions du débit massique en fonction de la pression et de la température pour les différents générateurs.

Fréquence (kHz)	Température (°C)	Pression absolue (bars)	Débit massique d'uranine (g/h)
2 400	20	1	$1,4 \cdot 10^{-1}$
2 400	20	1,6	$6,6 \cdot 10^{-2}$
2 400	20	2	$2,2 \cdot 10^{-2}$
2 400	20	5	$2,6 \cdot 10^{-5}$
2 400	50	1	$2,6 \cdot 10^{-1}$
2 400	50	2	$4,0 \cdot 10^{-2}$
2 400	50	5	$4,3 \cdot 10^{-5}$
800	20	1	$8,3 \cdot 10^{-2}$
800	20	2	$6,7 \cdot 10^{-2}$
800	20	5	$3,9 \cdot 10^{-3}$
500	20	1	$1,2 \cdot 10^{-1}$
500	20	5	$4,8 \cdot 10^{-3}$
80	20	1	$10^{-2}$
80	20	2	$4,3 \cdot 10^{-3}$
80	20	4	$9,3 \cdot 10^{-4}$
80	20	5	$7,6 \cdot 10^{-4}$

Tableau 1 : Débit massique d'aérosols par pulvérisation ultrasonore

Globalement, nous constatons une forte décroissance du débit massique lorsque la pression augmente. Ce résultat est en accord avec les études antérieures [1], [2], [3]. Par contre, l'augmentation de la température de fonctionnement favorise la production des aérosols. Bien que significatif entre 20 et 50°C (augmentation d'un facteur 2 environ), cet effet est nettement moins sensible que celui de la pression. Ces observations laissent supposer que la pulvérisation ultrasonore est fortement altérée par la présence de gaz dissout au sein du liquide à pulvériser.

Les évolutions en fonction de la pression sont différentes suivant la fréquence de résonance des céramiques utilisées. Les rapports entre le débit massique à 1bar et celui à 5 bars, pour les différentes fréquences, sont donnés dans le tableau 2.

Fréquence (kHz)	Rapport de débits (-)
2 400	5 400
800	21
500	25
80	13

Tableau 2 : Rapport entre le débit massiques à 1bar et celui à 5 bars

Ces résultats expérimentaux montrent la difficulté d'utiliser un dispositif de production ultrasonore pour des essais en pression.

### 2.2.2. Pulvérisation mécanique

Après avoir vérifié le bon fonctionnement de la turbine dans un air à 160°C, les débits massiques d'aérosols sont déterminés avec la même procédure que celle utilisée pour la production ultrasonore. L'ensemble des résultats expérimentaux (tableau 3) ne montre pas de décroissance du débit massique lorsque la pression et la température augmentent. Au contraire, les valeurs mesurées font apparaître une évolution légèrement favorable du débit massique avec ces deux paramètres.

Température (°C)	Pression absolue (bars)	Vitesse de rotation (tr/s)	Débit massique (g/h)
60	1	2 250	0,70
60	1	2 270	0,72
60	5	3 155	0,84
60	5	3 155	0,72
80	1	2 290	0,79
80	1	2 300	0,82
80	5	3 085	0,86
80	5	3 090	0,86
100	1	2 340	0,94
100	1	2 380	1,03
100	1	2 450	0,98
100	5	2 360	1,56
100	5	3 170	2,11
100	5	3 170	2,88

Tableau 3 : Débit massique d'aérosols produits par pulvérisation mécanique

Les débits massiques mesurés avec une solution à 10 g/l sont largement supérieurs à nos besoins (0,1 g/h) donc nous retenons uniquement la pulvérisation mécanique pour l'étude de la granulométrie.

## 3.- ETUDE DE LA GRANULOMETRIE

### 3.1. Montage expérimental

Le banc d'essais (figure 3) est constitué d'une veine aéraulique, en extraction, dans laquelle les aérosols sont injectés, à pression et température ambiantes. Le générateur d'aérosols est implanté dans un caisson à l'amont de la boucle. Le débit d'air (360 m<sup>3</sup>/h) permet d'assurer le séchage des gouttelettes produites. Trois points de prélèvements isocinétiques, situés au moins à 3 mètres après l'injection, permettent trois types de mesures en parallèle :

- ⇒ mesure du débit massique par un prélèvement sur filtre,
- ⇒ mesure de la distribution granulométrique en "temps réel" par l'intermédiaire d'un APS ( Aerodynamic Particle Sizer, modèle 3310, TSI Inc). Etant donnée la concentration importante d'aérosols, un diluteur est placé entre la buse de prélèvement et l'APS afin de faire une dilution d'un facteur 100,
- ⇒ mesure de la distribution granulométrique intégrée sur 20 minutes, par un impacteur de type ANDERSEN.

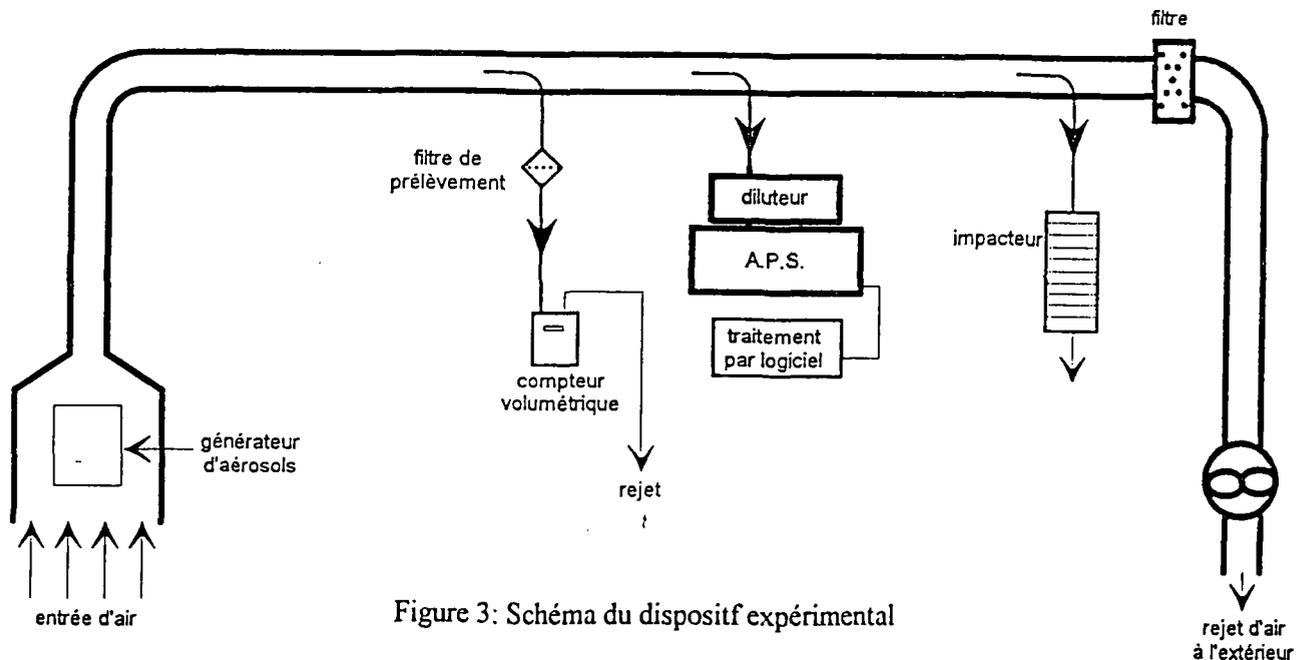


Figure 3: Schéma du dispositif expérimental

### 3.2. Méthode analytique

Pour déterminer le débit massique à partir du filtre de prélèvement et la répartition en masse sur les différents étages de l'impacteur, la méthode analytique est identique à celle décrite au § 2.1.2.

La distribution granulométrique est caractérisée, à partir de la répartition en masse cumulée en fonction des diamètres de coupure des différents étages de l'impacteur, par le diamètre médian massique et l'écart-type géométrique.

### 3.3. Résultats expérimentaux

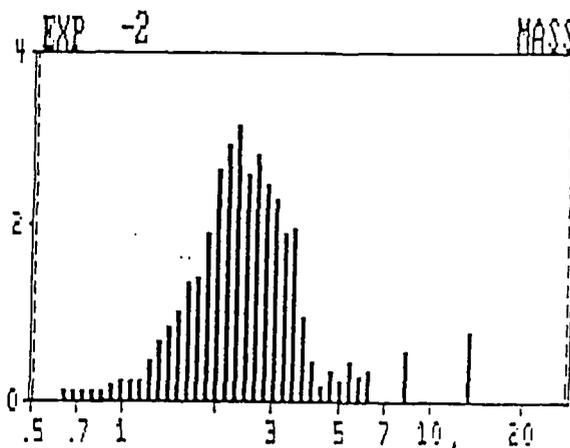
Une première série d'essais (tableau 4) montre la bonne reproductibilité des résultats expérimentaux, la faible influence des paramètres de réglage du générateur (vitesse de rotation, débit liquide, débit de dispersion) et une faible dispersion granulométrique.

Débit liquide (ml/min)	Vitesse de rotation (tr/s)	Débit de dispersion (m <sup>3</sup> /h)	Diamètre médian massique (μm)	Ecart-type géométrique	Débit massique (g/h)
3	2 550	6	2,89	1,62	0,14
3	2 900	4	2,34	1,59	0,28
3,9	2 390	7	2,36	1,57	0,235
3,9	2 450	2	2,79	1,66	0,15
3,9	2 700	1	2,60	1,66	0,15
5,4	2 480	6	2,64	1,61	0,20
5,4	2 730	1	2,35	1,65	0,19
7,8	2 620	7	2,28	1,56	0,235
7,8	2 400	2	2,34	1,63	0,25
11	2 430	7	2,15	1,56	0,36
11	2 260	2	2,48	1,65	0,22

Tableau 4 : Distribution granulométrique (solution à 10 g/l)

Les débits massiques mesurés sont plus faibles que ceux présentés au § 2.2.2 car la géométrie du banc d'essais induit beaucoup de pertes par dépôt sur les parois du conduit. Néanmoins, ces débits sont toujours satisfaisants.

A titre d'exemple, le spectre obtenu par l'APS pour le cas d'une solution à 10 g/l est présenté figure 4.



diamètre médian massique: 2,35 μm

Figure 4: Spectre granulométrique mesuré avec l'APS

Une deuxième série d'essais (tableau 5) montre l'évolution du diamètre médian massique et de l'écart-type des aérosols en fonction de la concentration de la solution pulvérisée.

Solution (g/l)	Vitesse de rotation (tr/s)	Diamètre médian ( $\mu\text{m}$ )	Ecart-type géométrique
0,01	2 450	0,25	11,6
0,1	2 550	0,62	3,2
1	2 730	1,5	1,47
10	2 600	2,3	1,43
100	2 600	4,3	1,44

Tableau 5 : Distribution granulométrique pour différentes concentrations

Ces résultats font apparaître deux domaines:

- pour  $1 < D_p < 5 \mu\text{m}$ : les distributions granulométriques sont caractérisées par un faible écart-type ( $< 1,5$ )
- pour  $D_p < 1 \mu\text{m}$ : les résultats ne sont pas satisfaisants en terme de dispersion. Pour une concentration de 0,1 g/l, l'écart-type est important (3,2). De plus, pour la concentration la plus faible (0,01 g/l) la dispersion est inacceptable. Néanmoins, ce résultat doit être pris avec précaution car cette gamme de diamètres correspond uniquement au dernier étage de l'impacteur (le diamètre de coupure est  $0,35 \mu\text{m}$ ). Une étude complémentaire, avec une métrologie plus adaptée, est indispensable pour caractériser ce domaine.

#### 4.- CONCLUSION

Les générateurs ultrasonores testés ne permettent pas de répondre aux objectifs des expérimentations en pression, en terme de débit massique; en effet, ce dernier décroît fortement lorsque la pression statique augmente. L'adaptation de cette technologie au fonctionnement en pression et en température apparaît délicate.

Par contre, la pulvérisation mécanique par disque rotatif à grande vitesse donne des résultats intéressants. D'une part, le débit massique généré ne décroît pas lorsque la pression statique augmente et d'autre part, la production d'aérosols de diamètres médians compris entre 1 et  $5 \mu\text{m}$  s'effectue avec un écart-type faible. Une étude complémentaire est nécessaire pour qualifier ce générateur pour les diamètres les plus faibles ( $0,2$  à  $1 \mu\text{m}$ ).

L'optimisation de ce type de générateur devrait, à terme, permettre d'avoir à disposition un nouveau générateur d'aérosols adaptés à une grande variabilité de conditions opératoires.

#### REFERENCES

- [1] P. BITARD  
*"Amélioration des performances d'un générateur d'aérosols ultrasonique sous pression"*  
 Note technique n° EA-65-12.T 88/594, 1988
- [2] T. ALBIOL, D. APPRIOU  
*"PITEAS physique des aérosols. Résultats de l'étude préliminaire sur le terme source"*  
 Note technique n° EA-65-12.T/87-456, 1987
- [3] C. DELLI, P. MARSAULT, J. JOLY, C. LEFOL  
*"Physique des aérosols, boucle PITEAS Compte rendu de la 1ère phase de mise au point du générateur acoustique d'aérosols solubles (P.A.C.A.S.)"*  
 Fiche SESRU n° EA-65-12.T/88-084, 1988

# Etude de l'atomisation d'un jet: vers une prédiction de la taille des gouttes

Laboratoire d'Energétique des Systèmes et Procédés  
URA CNRS 230 - CORIA  
B.P. 8 Place Emile Blondel  
76131 Mont-Saint-Aignan Cédex - FRANCE  
Tel: 35 52 83 83 - Télécopie: 35 52 83 90

J. Godelle, G. Fougereux, C. Letellier, J.N. Letoulouzan,  
G. Gouesbet, G. Gréhan

## 1 Introduction

L'atomisation d'un jet liquide est un phénomène utilisé dans le domaine industriel pour de nombreuses applications: ainsi, les sprays dans l'industrie pharmaceutique, les injecteurs de produits combustibles (brûleurs, moteurs) dans l'industrie automobile. C'est pourquoi de nombreuses activités de recherche sont vouées à l'étude de ce phénomène. Les mécanismes de croissance des instabilités et leur sensibilité aux perturbations sont des points clefs de cette étude. Les méthodes de mesures courantes utilisent des techniques d'imageries (photographie, capteurs CCD). Récemment des techniques basées sur des mesures d'extinction d'un faisceau laser [1], ou bien de conductivité [2] ont été mises en place. Cependant, la transformée de Fourier reste l'outil de traitement du signal le plus souvent utilisé [1] [3].

Pourtant, comme pour tout système dynamique, l'étude de ce phénomène peut être réalisé par l'intermédiaire des outils issus de la dynamique des systèmes. Cette théorie propose de nouvelles techniques d'analyse qui s'appliquent à des séries temporelles. Ainsi, lorsque le système est décrit dans l'espace des phases par des variables couplées, la connaissance d'une seule de ces variables permet de reconstruire l'évolution du système dans un espace équivalent à l'espace des phases original [4] [5]. Une fois cet espace des phases reconstruit, des outils tels que les sections de Poincaré, les orbites périodiques, permettent d'extraire une information très fine sur l'évolution temporelle d'un système [6] [7]. Notre objectif est d'utiliser la dynamique des systèmes afin d'étudier l'évolution des perturbations le long d'un jet. Le jet étudié est identique à celui étudié par *Leroux et al.* [8] à la seule différence qu'il est excité comme lors de la première étude menée par *Letellier et al.* [10]. Notre étude porte sur le suivi de l'évolution des perturbations le long du jet. Pour cela, la lumière d'une nappe laser est diffusée par le jet et collectée par un photomultiplicateur. L'évolution de l'intensité de cette lumière constituera les séries temporelles qui seront étudiées.

Cet article est organisé de la manière suivante. Après une description du dispositif expérimental et de l'enregistrement des séries temporelles (section 2), les différents concepts utilisés dans le traitement du signal seront présentés (section 3). La section 4 présentera les résultats de cette étude. La section 5 donnera une conclusion à ce travail et présentera quelques perspectives.

## 2 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est constitué d'une cuve régulée en pression qui alimente en eau l'injecteur. Un corps poreux est placé au sein de l'injecteur afin de tranquiliser l'écoulement. Le liquide est alors injecté dans une aiguille de  $600\mu\text{m}$  de diamètre interne. La longueur de

l'aiguille est d'environ 190 fois ce diamètre. De ce fait, le profil de vitesse du fluide en sortie d'aiguille sera assimilé à un profil de Poiseuille (il est montré par *Leroux et al.* [8] que le profil de vitesse a une influence importante sur les mécanismes d'atomization mis en jeu). L'aiguille est excitée latéralement par un transducteur acoustique. L'excitation est pilotée par un générateur de fréquence Schlumberger 4433.

De manière à recueillir l'information sur l'évolution temporelle du diamètre du jet, une nappe laser est incidente perpendiculairement au jet. Cette nappe est générée à partir d'un laser à Argon ionisé (Spectra-Physics 1620 3W). Un montage optique permet l'obtention d'une nappe laser de  $160\mu\text{m}$  d'épaisseur et de  $5\text{cm}$  de large. La lumière diffusée par le jet est collectée, puis transmise à un photomultiplicateur par l'intermédiaire d'une fibre optique. Le signal lumineux est alors numérisé par l'intermédiaire d'un oscilloscope numérique LECROY 9314L. Les séries temporelles sont échantillonnées à la fréquence  $f_a = 500\text{kHz}$  et sont constituées de  $10^6$  points. Un schéma du dispositif expérimental est représenté Fig. 1.

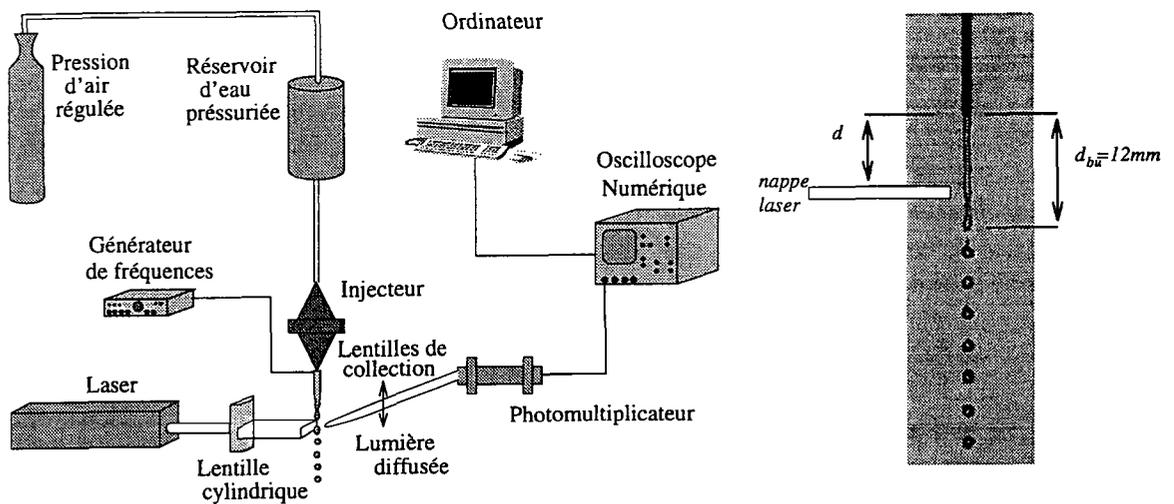


FIG. 1 - Dispositif expérimental et photographie du jet.

### 3 Traitement du signal

Hormis le traitement classique par transformée de Fourier [9], nous utiliserons des outils issus de la dynamique des systèmes. Ils seront présentés brièvement dans cette section.

#### 3.1 Reconstruction

Les données obtenues par les physiciens étudiant des systèmes dynamiques prennent souvent la forme de séries temporelles, c'est à dire d'une série de valeurs mesurées à intervalles de temps réguliers. Or l'étude d'un système dynamique nécessite de connaître ses états successifs dans l'espace des états de dimension 2, 3 ou plus. Il va donc être important de pouvoir accéder à cette information à partir de la seule série de mesures : ceci sera réalisé à l'aide d'une méthode de reconstruction. L'objet géométrique produit par cette reconstruction est appelé **portrait de phase**.

Ainsi, de manière à spécifier l'état d'un système  $d$ -dimensionnel à un instant donné, la connaissance de  $d$  quantités indépendantes (au sens spatial) est requise.

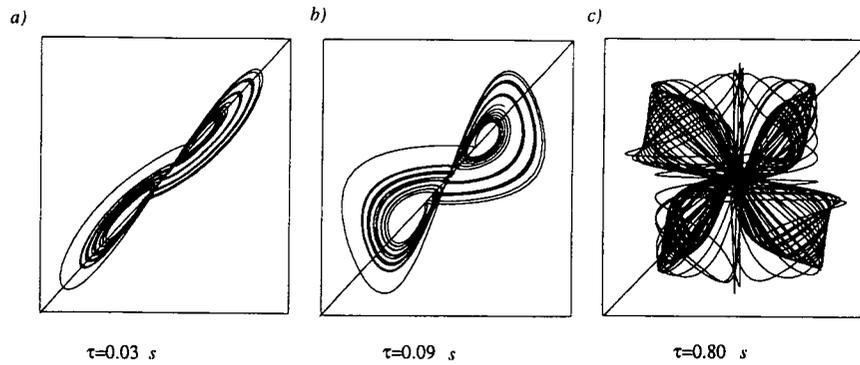


FIG. 2 - Projection de l'attracteur de Lorenz dans l'espace reconstruit défini par les coordonnées  $(y(t + \tau), y(t))$  pour trois valeurs du décalage temporel  $\tau$ . a) le décalage  $\tau = 0.03s$  est trop petit : la dynamique est confinée au voisinage de la diagonale de l'espace. b) Le décalage  $\tau = 0.09s$  est correctement choisi : la dynamique est relativement représentative de celle de l'attracteur original. c) Le décalage temporel  $\tau = 0.80s$  est trop grand : les structures caractéristiques de l'attracteur original tendent à disparaître suite à des plissements intempestifs de l'attracteur.

La base de la technique de reconstruction introduite par N. H. Packard, J. P. Crutchfield, J. D. Farmer et R. S. Shaw [4] repose sur le principe simple que des variables indépendantes peuvent être construites à partir d'une série scalaire temporelle à l'aide d'un décalage temporel  $\tau$ . En effet, lorsque les variables permettant la description du système sont couplées, le principe de la redondance de l'information nous assure que de l'information est transmise d'une variable à l'autre. Ainsi, la Fig.2 présente le portrait de phase reconstruit du système de Lorenz [17] pour trois valeurs du décalage temporel  $\tau$ . Le décalage temporel  $\tau$  est un paramètre de reconstruction. Sa détermination est essentielle dans la qualité de la reconstruction. Lorsque la dynamique est clairement déterministe, le choix du décalage peut être guidé par l'information mutuelle [11].

### 3.2 Section de Poincaré

Une section de Poincaré est définie comme étant l'ensemble des intersections de la trajectoire du système avec un plan transverse au flot formé par cette trajectoire. Ainsi, si nous utilisons une projection 2D de l'espace des phases du jet, nous pouvons obtenir un portrait de phase comme celui de la Fig.3. Dans ce cas, une section de Poincaré sera représentée par l'ensemble

$$P \equiv \{(Y, Z) \in \mathbb{R}^2 \mid X = Y, Y > X\} \quad (1)$$

où les coordonnées  $(X, Y, Z)$  sont définies par la relation:

$$\begin{cases} X = I(t) \\ Y = I(t + \tau) \\ Z = I(t + 2\tau) \end{cases} \quad (2)$$

avec  $I(t)$  représentant l'intensité lumineuse en fonction du temps.

Une application de premier retour peut être définie à partir d'une section de Poincaré. Elle est représentée par le graphe associé à l'évolution de la coordonnée de la  $n + 1^{eme}$  intersection en fonction de la coordonnée de la  $n^{eme}$  intersection. Un tel graphe, lorsqu'il offre l'aspect d'une courbe est une signature d'un système déterministe et très dissipatif [12]. Un nuage de points ayant été obtenu à partir des mesures sur le jet, la dynamique n'est donc pas régie par un système

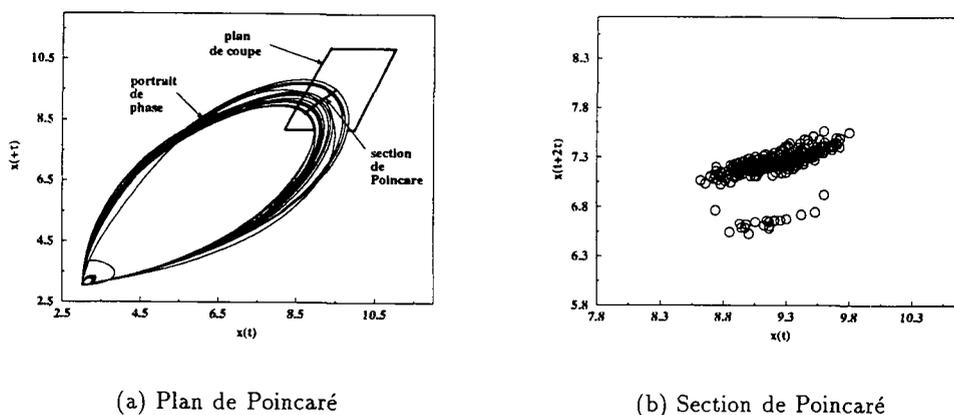


FIG. 3 - Section de Poincaré du portrait de phase du jet.

de basse dimension. La dynamique du jet n'est probablement pas complètement déterministe ni très dissipative [10].

### 3.3 Orbites périodiques

Lorsqu'un phénomène est chaotique (déterministe et sensible aux conditions initiales), la trajectoire représentative du système se développe autour d'un ensemble d'orbites périodiques instables qui constitue un véritable squelette du portrait de phase [13]. Malheureusement, la nature chaotique du jet n'est pas démontrée. Aussi seul le concept de squelette d'orbites peut être utilisé. En effet, la trajectoire qui se développe comme sur la Fig.3, pouvant être vue comme reposant principalement au voisinage d'une orbite périodique ne présente qu'une seule intersection avec la section de Poincaré. Dans ce cas, l'orbite est dite de période 1 (Fig. 4).

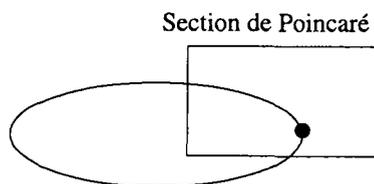


FIG. 4 - Orbite de période 1.

Les orbites périodiques sont extraites à partir d'une section de Poincaré par la recherche des points de récurrence par une méthode similaire à la technique de Newton-Raphston [14]. Ainsi, lorsque la distance entre deux intersections successives de la trajectoire avec un plan de Poincaré est inférieure à une distance seuil  $\epsilon$ , l'orbite est dite périodique. Nous extrayons l'orbite de période 1 associée au maximum de la probabilité de visite des trajectoires dans une section de Poincaré. Ainsi, l'orbite extraite est représentative de la dynamique du jet.

## 4 Résultats

### 4.1 Caractéristiques de fonctionnement

Le diamètre moyen du jet est sensiblement égal au diamètre interne de l'aiguille de l'injecteur:  $D_{jet} = 600\mu m$ .

Dans le cas d'un jet excité dont le comportement est décrit par la théorie de Rayleigh [15], les gouttes sont monodispersées, il n'y a pas de satellites (gouttelettes qui s'échappent de la trajectoire du barycentre des gouttes du jet représentée par l'axe du jet). Pour obtenir un tel jet excité, la longueur d'onde correspondant à la fréquence d'excitation du jet doit obéir au critère suivant [16]:

$$3.5D_{jet} < \lambda_{excitation} < 7D_{jet} \quad (3)$$

De plus, il existe une vitesse débitante minimale en dessous de laquelle le jet n'est plus décrit par la théorie de Rayleigh [16].

$$V_{min} = 0.98m/s \quad (4)$$

La fréquence propre du jet est la fréquence qui correspond à la longueur d'onde de la perturbation possédant le taux croissance maximal. Elle est fonction du diamètre du jet et est donnée par [15]:

$$\lambda_{Croiss.mazi.} = 4.51D_{jet} = 2.7mm \quad (5)$$

Cet ordre de grandeur pour les longueurs d'onde de perturbations est à comparer à la valeur de l'épaisseur de la nappe laser ( $e = 160\mu m$ ):  $160\mu m \ll 2.7mm$ . De ce fait, la nappe laser n'intégrera pas les variations de la forme du jet. Donc notre technique de mesure très sensibles aux fluctuations du rayon du jet. Les séries temporelles traduiront ces variations d'intensités dues aux perturbations.

Dans le cadre de notre expérience, la vitesse débitante était fixée à  $V_{jet} = 1.34m/s > V_{min}$ . De ce fait, la fréquence propre du jet est de  $f_p = 492Hz$ . La fréquence d'excitation de l'aiguille est de  $f_e = 608Hz$ . Elle diffère donc de la fréquence propre du jet. Des phénomènes non-linéaires sont donc attendus en raison de la compétition entre ces deux modes. De fait, des satellites ont été observés.

### 4.2 Spectres de puissance

Des séries temporelles ont été enregistrées tout le long du jet en déplaçant la feuille laser de la sortie de l'aiguille jusqu'à la rupture en gouttes. Pour chacune de ces séries, un spectre de Fourier a été calculé. Pour chacun de ces spectres, l'amplitude de chacun des harmoniques a été relevée et reportée Fig.5 en fonction de la distance à l'aiguille.

La rupture en gouttes est caractérisée par un minimum très prononcé de l'amplitude de la fréquence  $f_e$  [3] pour  $d = 26.25mm$ . Par ailleurs un second minimum semble se dégager aux environs de  $d \approx 15mm$ . Deux zones bien définies se dégageraient donc dans l'évolution des perturbations.

### 4.3 Portraits de phases

Pour chaque série temporelle, une reconstruction du portrait de phase a été réalisée. Le décalage temporel a été choisi égal à  $\tau = 35\delta t$  où  $\delta t = \frac{1}{f_e}$ . Huit portraits caractéristiques sont représentés Fig.6 pour différentes valeurs de la distance à l'aiguille  $d$ . A la sortie de l'aiguille, le portrait est confiné au voisinage de la bissectrice. La linéarité du processus est encore fortement

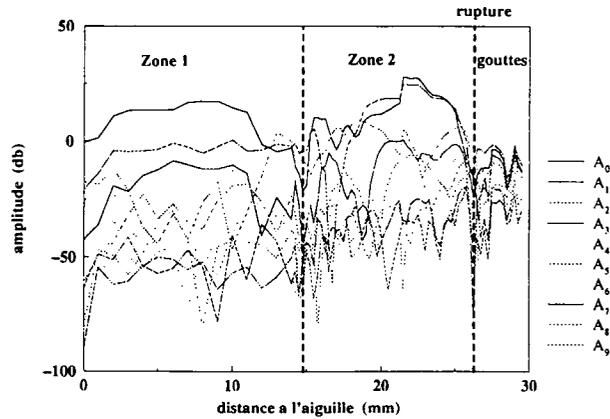


FIG. 5 - Evolution de l'amplitude des harmoniques en fonction de la distance à l'aiguille

présente. Au fur et à mesure que  $d$  augmente, le portrait se développe perpendiculairement à la bissectrice. Une structure globale de période 2 se développe (Fig.6.d). Des structures naissantes (Fig.6.e) sont très vite absorbées (Fig.6.f) et la structure de période 2 se résorbe (Fig.6.g) jusqu'à disparaître au niveau de la rupture en gouttes (Fig.6.h). Une structure de période 1 est alors observée, véritable signature de la fréquence d'excitation qui pilote la création des gouttes.

#### 4.4 Orbites périodiques

A partir de chacun des portraits de phases, une section de Poincaré a été construite. De là, après avoir calculé une section de probabilités de visite, l'orbite périodique la plus représentative a été extraite (Fig.7). Parallèlement, une probabilité sur le temps de retour a été calculée de manière à vérifier la présence d'une relation directe avec la fréquence d'excitation.

Chacune des orbites périodiques ainsi obtenue a été reportée Fig.8 en fonction de la distance à la buse. Dues aux conditions expérimentales, les mesures ont été réalisées tous les millimètres sur l'intervalle  $d \in [8, 28]mm$ . De ce fait, sur le premier intervalle, les orbites périodiques ont été répétées quatre fois pour préserver une échelle linéaire. Il apparaît très nettement qu'un peu au delà de la distance critique  $d = 26.25mm$  mise en évidence par un minimum de l'amplitude associée à  $f_e$  (Fig. 5), l'évolution des orbites périodiques se révèle être très régulière jusqu'à la rupture. Mention doit être faite d'un saut d'intensité qui n'a pu être expliqué.

Nous avons aussi calculé la période temporelle associée à chacune des révolutions observées sur les portraits de phase qui présente une structure de période 2 (Fig.9). Dans tous les cas, la somme  $T_1 + T_2$  vérifie assez correctement l'égalité avec la période temporelle associée avec la fréquence d'excitation  $f_e$ . L'annulation de  $T_2$  correspond à la disparition de la structure de période 2 au profit d'une structure de période 1. Précisons que juste en sortie d'aiguille, la structure de période 2 n'est pas identifiable (voir Figs 6.a et 6.b).

## 5 Conclusion et perspectives

L'étude des jets à l'aide des outils de la dynamique des systèmes est une nouvelle voie de recherche pour notre laboratoire. Nous pensons avoir démontré la sensibilité de notre technique

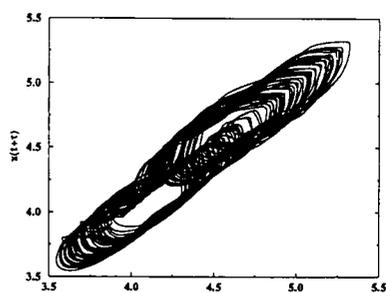
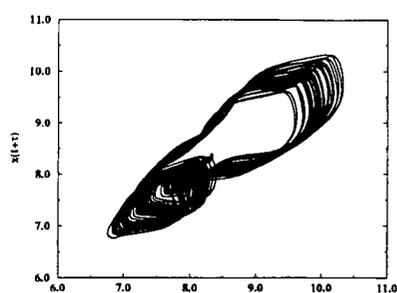
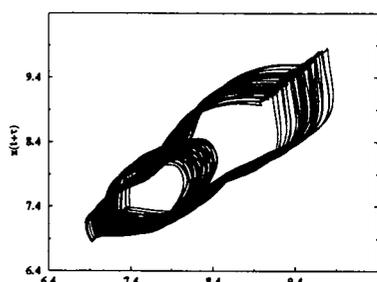
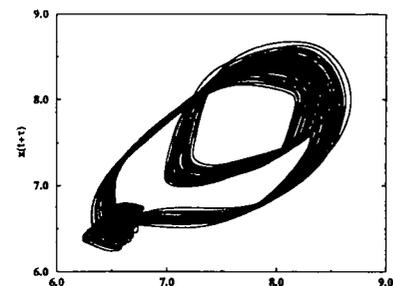
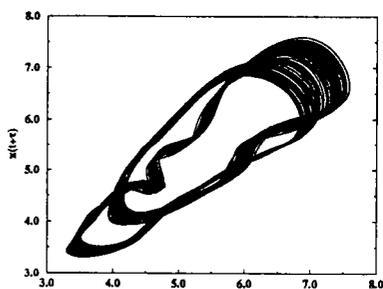
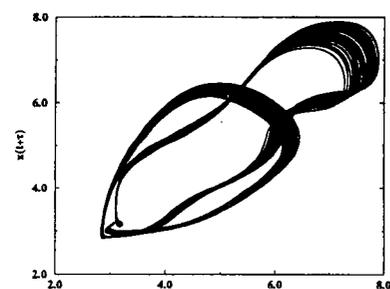
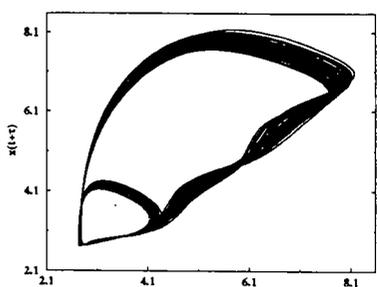
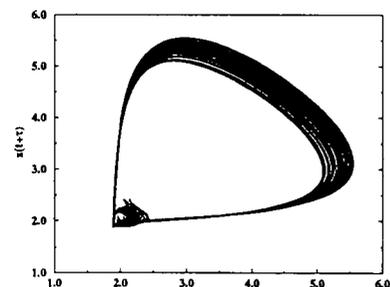
(a)  $d = 1mm$ (b)  $d = 13mm$ (c)  $d = 15.5mm$ (d)  $d = 16.5mm$ (e)  $d = 18.75mm$ (f)  $d = 20.5mm$ (g)  $d = 24.75mm$ (h)  $d = 27.5mm$ 

FIG. 6 - Différents portraits de phase caractéristiques.

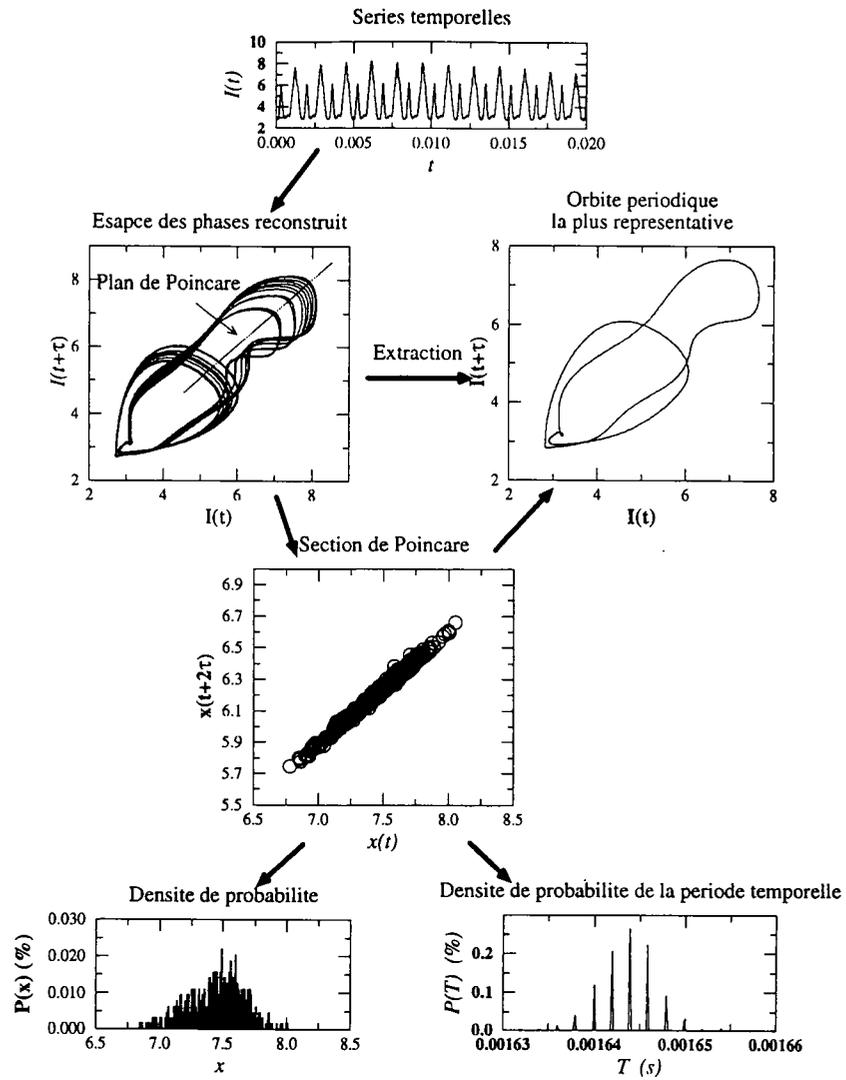


FIG. 7 - Synthèse de l'analyse effectuée pour chaque série temporelle.

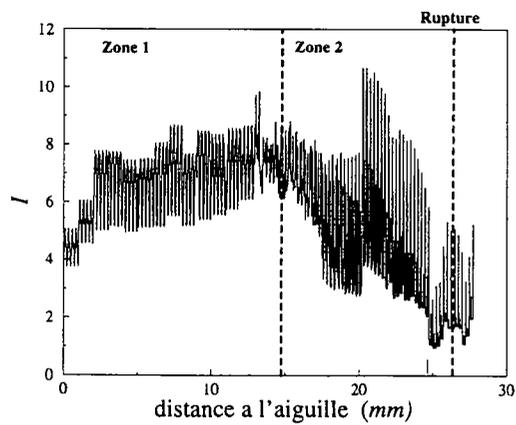


FIG. 8 - Evolution de l'orbite représentative en fonction de la distance à l'aiguille.

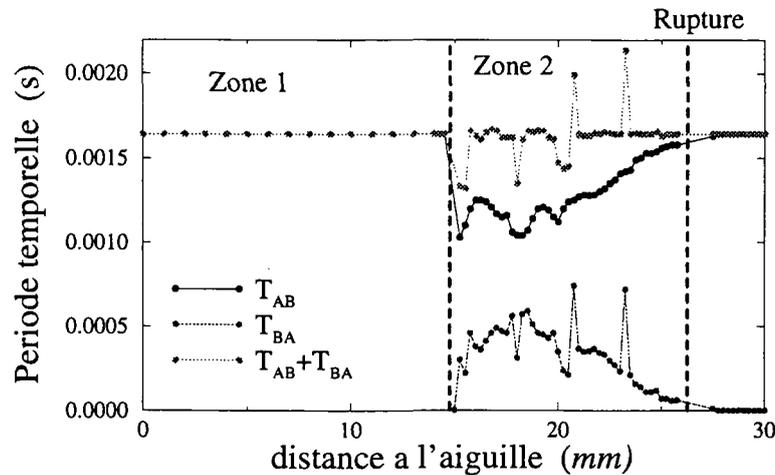


FIG. 9 - Evolution de la période temporelle en fonction de la distance à l'aiguille.

aux phénomènes de croissances des perturbations le long d'un jet. Ainsi, nous avons des signatures très nettes de l'évolution de la dynamique du jet en fonction de la distance à l'aiguille. Des expériences sur des jets différents devront être menées afin de déterminer les paramètres influençant la croissance des modes de perturbations. De plus, une comparaison avec un modèle basé sur des équations aux amplitudes sera entreprise. Ainsi, par une compréhension profonde de l'évolution des perturbations le long d'un jet, nous espérons prédire la dispersion des gouttes par mesure en amont de la rupture du jet. En effet, la dispersion présente sur les portraits de phases correspondant à des mesures dans les gouttes se trouve déjà sur les portraits de phase associés à des mesures juste à la sortie de l'aiguille.

**Remerciements** Nous tenons à remercier M. Ledoux, C. Dumouchel et S. Leroux tant pour l'intérêt qu'ils ont su apporter à ce travail que pour leur soutien logistique concernant le dispositif expérimental.

## Références

- [1] G. E. Cossali, A. Coghe. A new laser based technique for instability growth rate evaluation in liquid jets. *Experiments in fluids*, 14, 233-240, 1993.
- [2] A. J. Yule, D. G. Salters. A conductivity probe technique for investigating the breakup of Diesel Sprays. *Atomization and sprays*, 4, 41-63, 1994.
- [3] J. H. Xing, A. Soucemarianadin, P. Attane. Experimental study of the breakup of viscoelastic fluid jets. *Proceedings of the 6th Int. Conf. on liquid Atomization and Sprays Syst.*, Rouen, July 1994.
- [4] N. H. Packard, J. P. Crutchfield, J. D. Farmer, R. S. Shaw. Geometry from a time series, *Physical Review Letters*, 45 (9), 712-716, 1980.
- [5] F. Takens. Detecting Strange Attractors in Turbulence, in: *Dynamical Systems and Turbulence, Warwick 1980*, Lecture Notes in Mathematics, vol. 898, eds. D. A. Rand and L. S. Young, pub. Springer-Verlag, New York, 366-381, 1981.
- [6] C. Letellier, P. Dutertre, G. Gouesbet. Characterization of the Lorenz system taking into account the equivariance of the vector field, *Physical Review E* 49 (4), 3492-3495, 1994.

- [7] **C. Letellier, P. Dutertre, B. Maheu.** Unstable periodic orbits and templates of the Rössler system : toward a systematic topological characterization, *Chaos*, 5 (1), 271-282, 1995.
- [8] **S. Leroux, C. Dumouchel, M. Ledoux.** The stability curve of newtonian liquid jets. *Soumis à publication*
- [9] **W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolvsky, W. T. Vetterling** *Numerical Recipes* Cambridge University Press, Cambridge, 1986
- [10] **C. Letellier, F. Onofri, J. L. Letoulouzan, B. Maheu, G. Gouesbet, G. Gréhan.** On the breakup of a liquid jet : characterization of the time series by topology of the reconstructed state space. Partec 95, 11<sup>th</sup> European Conference of ILASS-Europe on Atomization and Sprays, Nuremberg, Mars 1995. Proceedings.
- [11] **H. D. I. Abarbanel, R. Brown, J. J. Sidorowich, L. Sh. Tsimring.** The analysis of observed chaotic data in physical systems, *Review of Modern Physics*, 65 (4), 1331-1388, 1993.
- [12] **P. Bergé, Y. Pomeau, Ch. Vidal.** *L'ordre dans le chaos*, Hermann, Paris, 1988.
- [13] **P. Cvitanović.** Periodic Orbits as the Skeleton of Classical and Quantum Chaos, *Physica D*, 51, 138-151, 1991.
- [14] **P. Dutertre.** *Caractérisation des attracteurs étranges par la population d'orbites périodiques*, Ph'D dissertation, URA CNRS 230, CORIA, LESP, Rouen, France, 1995.
- [15] **Lord Rayleigh.** On the instability of jets. *Proc. London Math. Soc.*, 10, 4-13, 1876.
- [16] **J. M. Schneider, C. D. Hendricks.** *Rev. Sci. Instrum.*, 35, 134, 1964.
- [17] **E. N. Lorenz.** Deterministic Nonperiodic Flow. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 20, 130-141, 1963.

*LISTE ALPHABETIQUE DES AUTEURS*

ATTOUI M.	14-19; 38-49; 68-73
AZIZI L.	140-149
BLONDEL D.	104-111
BOULAUD D.	26-31; 50-67;
CALVEZ G.	32-37
CAPERAN Ph.	176-181
CHANTREL N.	38-45
CHARAMATHIEU A.	46-49
CREPIN J.B.	156-163
DE CHATEAUBOURG P.	156-163
DEGERATU M.	182-187
DROAL C.	20-25; 50-55; 164-169
DUCRET D.	188-194
FABRIES J.F.	86-93
FEUILLEBOIS F.	170-175
FOUGEREUX G.	196-205
GARO A.	104-111
GEHIN E.	182-187
GIRAZOLE T.	130-139
GODELLE J.	196-205
GOUESBET G.	104-119; 130-139; 196-205
GOURONNEC A.M.	26-31
GOUTELARD F.	26-31
GÖRNER P.	86-93
GREHAN G.	104-119; 130-139; 196-205
GUELLIL A.	50-55
HERVE P.	140-149
JURSKI K.	182-187
KEROUANTON D.	62-67
LABORDE J.F.	74-85
LE BIHAN O.	20-25
LE GUERN C.	14-19
LE MEUR F.	130-139
LETELLIER C.	196-205
LE TOULOUZAN J.N.	130-139
MALET J.	56-61
MESBAH B.	46-49
MOCHO V.	74-85
MONTAMAT M.	38-45
MONTASSIER N.	26-31; 56-61
MOREAU R.	4-13
ONOFRI F.	104-119
PAGES J.F.	112-119
PARFAIT C.	14-19

PIAR G.	182-187
PETIT-COVIAUX F.	14-19
POURPRIX M.	74-85
PREVOST C.	120-129
QUISEFIT J.P.	156-163
RANGE K.	170-175
RENOUX A.	1-3; 14-19; 26-31; 38-49; 56-61; 94-103
RICHTER K.	176-181
ROBLOT D.	188-194
SEIGNEUR A.	120-129
SOMERS J.	176-181
SPURNY K.R.	150-155
TEXTE J.C.	38-45
TYMEN G.	20-37; 50-55; 62-67; 164-169
VENDEL J.	120-129; 188-194
WITSCHGER O.	86-93
WYSOCZANSKI D.	130-139

AFFRE G.  
QUALITE CHIMIQUE ET  
BIOLOGIQUE DES  
ATMOSPHERES  
U.P. VII Tour 44-45  
Boite 7059  
2 Pl. Jussieu  
75251 PARIS 05  
44 27 36 40

ATTOUI M.  
L P A T C  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 56

AZIZI L.  
LABORATOIRE  
D'ENERGETIQUE  
E T D'ECONOMIE  
D'ENERGIE  
Université Paris X  
1 Chemin Desvallières  
92410 VILLE d'AVRAY  
47 09 70 00

BIGAULT R.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

BOULAUD D.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
69 08 23 53

BRETON S.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

CAPERAN Ph.  
INSTITUT DES TRANSU  
RANIENS  
Postfach 2340  
D-76125 KARLSRUHE  
Allemagne  
(49) 7247 951 269

CETIER Ph.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
69 08 60 00

CHAMBRILLON N.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

CHANTREL N.  
LABORATOIRE NAT.  
D'ESSAIS  
1 rue G. Boissier  
75724 PARIS CEDEX 15  
40 43 37 00

CHARAMATHIEU A.  
ECO-PRISMÉ  
5 Ave du Gal de Gaulle  
92220 BAGNEUX  
40 92 01 21

CHAZY A.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

CHOUARD J.C.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
69 08 23 59

CORNET P.  
CEA/DRN/DMT/SEMT  
Laboratoire des  
Transferts Thermiques  
et Mécanique des  
Fluides  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex 69 08 60 00

CUDEL C.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

DAVID B.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

DEVILLARD A.L.  
QUALITE CHIMIQUE ET  
BIOLOGIQUE DES  
ATMOSPHERES  
U.P. VII Tour 44-45  
Boite 7059  
2 Pl. Jussieu 75251  
PARIS 05  
44 27 36 40

DRECOURT S.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
69 08 60 00

DROAL C.  
L P A R A  
U.B.O. de Bretagne  
Occidentale B.P.809  
6, Av. V. Le Gorgeu  
29285 BREST CEDEX  
98 01 67 23

DOUGET C.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

DUCRET D.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
69 08 60 00

DUPIN L.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

EL FEGHALI M.  
QUALITE CHIMIQUE ET  
BIOLOGIQUE DES  
ATMOSPHERES  
U.P. VII Tour 44-45  
Boite 7059  
2 Pl. Jussieu 75251  
PARIS 05  
44 27 36 40

FABRIES J.F.  
INSTITUT NATIONAL DE  
RECHERCHE ET DE  
SECURITE B.P.27  
Av. de Bourgogne  
54501 VANDOEUVRE  
83 50 20 00

FEUILLEBOIS F.  
URA CNRS 857  
Laboratoire PMMH  
10 rue Vauquelin  
75231 PARIS CEDEX 05  
40 79 45 53

FONTAINE Ch.  
GRANDE PAROISSE SA  
Rue de l'Industrie  
BP 204  
76121 LE GRAND  
QUEVILLY Cedex  
35 67 40 99

GEHIN  
IUT LETIEF  
Av. du Gal de Gaulle  
94010 CRETEIL Cedex  
45 17 10 63

GENDARMES F.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

GINESTET A.  
CETIAT  
27/29 Boulevard du 11  
Novembre 1918  
69100 VILLEURBANNE  
72 44 49 84

GNERAGBE T.  
QUALITE CHIMIQUE ET  
BIOLOGIQUE DES  
ATMOSPHERES  
U.P. VII Tour 44-45  
Boite 7059  
2 Pl. Jussieu  
75251 PARIS 05  
44 27 36 40

GOURONNEC A.M.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
69 08 60 00

GOURDEAU J.  
LEPI  
UNIVERSITE DE TOULON  
B.P. 132-83957  
LA GARDE CEDEX  
94 14 25 94

GÖRNER P.  
INSTITUT NATIONAL DE  
RECHERCHE ET DE  
SECURITE B.P.27  
Av. de Bourgogne  
54501 VANDOEUVRE  
83 50 20 00

GRASSIN D.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

GREHAN  
LESP  
INSA de ROUEN URA  
CNRS 230, CORIA BP 08  
76131 MONT St AIGNAN  
35 14 64 60

GUICHARD J.C.  
INERIS  
Parc Technologique  
ALATA BP 2  
60550 VERNEUIL EN  
HALATTE  
44 55 66 77

HERVE P.  
UNIVERSITE PARIS X  
Chemin Desvallières  
92410 VILLE d'AVRAY  
47 09 16 45

HUET  
L P A R A  
U.B.O. de Bretagne  
Occidentale B.P.809  
6, Av. V. Le Gorgeu  
29285 BREST CEDEX  
98 01 67 23

JURSKI K.  
LETIEF URA 508 IUT  
UNIVERSITE PARIS XII  
Av. du Gal de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 10 63

KEROUANTON D.  
L P A R A  
U.B.O. de Bretagne  
Occidentale B.P.809  
6, Av. V. Le Gorgeu  
29285 BREST CEDEX  
98 01 67 23

KLEITZ A.  
EDF  
6 Quai Watier BP 49  
78401 CHATOU CEDEX  
30 87 77 08

LABORDE J.C.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
69 08 60 00

LE BIHAN O.  
L P A R A  
U.B.O. de Bretagne  
Occidentale B.P.809  
6, Av. V. Le Gorgeu  
29285 BREST CEDEX  
98 01 67 23

LEBRONEC E.  
L P A T C  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 60

LE GUERN C.  
LPATC  
UNIVERSITE PARIS XII  
Av. du Gal de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

LE TOULOUZAN J.N.  
LESP  
INSA de ROUEN URA  
CNRS 230, CORIA BP 08  
76131 MONT St AIGNAN  
35 14 64 60

MALET J.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
69 08 44 81

MARTIN G.  
INSTITUT PASTEUR  
28 rue du Docteur Roux  
75015 PARIS  
45 68 81 70

MAZOUÉ S.  
RATP  
22-24 Rue Faidherbe  
75011 PARIS  
49 25 62 94

MICHELI F.  
ONERA  
29 Av. de la Division  
Leclerc BP 27  
92322 CHATILLON  
46 73 40 40

MOCHO V.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
69 08 58 15

MONTAMAT  
L N E 1 rue G. Boissier  
75724 PARIS CEDEX 15  
40 43 37 00

MONTASSIER N.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
69 08 62 37

MOREAU R.  
UNIVERSITE PARIS XII  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 70 56

ONOFRI F.  
LESP  
INSA de ROUEN URA  
CNRS 230, CORIA BP 08  
76131 MONT St AIGNAN  
35 14 64 60

PARFAIT C.  
RATP  
124 Rue Mont Cenis  
75889 PARIS CEDEX 18  
49 25 64 54

PELTRE G.  
INSTITUT PASTEUR  
28 rue du Docteur Roux  
75015 PARIS  
45 68 81 70

PICARD H.  
RATP  
54 Quai de la Rapée  
75599 PARIS  
44 68 32 07

PIGEONNEAU  
LPMMH  
URA CNRS 857  
10 rue Vauquelin  
75231 Paris cedex 05  
40 79 45 53

PILOT G.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
69 08 60 00

PREVOST C.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
69 08 60 00

QUISEFIT J.P.  
QUALITE CHIMIQUE ET  
BIOLOGIQUE DES  
ATMOSPHERES  
U.P. VII Tour 44-45  
Boite 7059  
2 Pl. Jussieu  
75251 PARIS 05  
44 27 36 40

RANGE K.  
Laboratoire PMMH  
CNRS URA 857  
ESPCI  
10 rue Vauquelin  
75005 Paris  
40 79 47 52

RAPTIS H.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

RENOUX A.  
L. P. A. T. C.  
U. P. XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL Cedex  
45 17 13 62

ROBLOT D.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
69 08 60 00

ROGER F.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

TANDRAYEN S.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

TEXTE  
LABORATOIRE NAT.  
D'ESSAIS  
1 rue G. Boissier  
75724 PARIS CEDEX 15  
40 43 37 00

TIRET C.  
CENTRE D'ETUDE DU  
BOUCHET Sce PHD  
B.P. N° 3  
91710 VERT LE PETIT  
69 90 82 63

SPURNY K. R.  
Aerosol Chemist  
Eichenweg 6  
57392 SCHMALLEMBERG  
ALLEMAGNE  
02 972 6503

TEDESCHI G.  
LEPI  
UNIVERSITE DE TOULON  
B.P. 132-83957  
LA GARDE CEDEX  
94 14 25 94

THIELEKE R.  
AIRFOREB  
Ruote de la Vierge  
13500 MARTIGUES  
42 13 01 20

TYMEN G.  
L P A R A  
U.B.O. de Bretagne  
Occidentale B.P.809  
6, Av. V. Le Gorgeu  
29285 BREST CEDEX  
98 01 67 23

VERVIN C.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
45 17 13 59

WEISS D.  
LPMMH  
URA CNRS 857  
10 rue Vauquelin  
75231 Paris cedex 05  
40 79 45 53

WITSCHGER O.  
INSTITUT NATIONAL DE  
RECHERCHE ET DE  
SECURITE B.P.27  
Av. de Bourgogne  
54501 VANDOEUVRE  
83 50 20 00