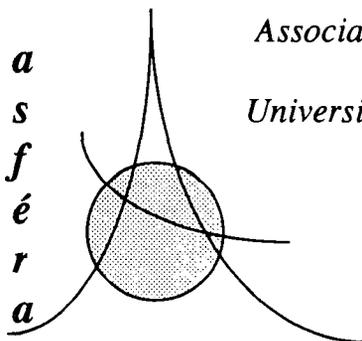


a
s
f
é
r
a



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 : 0145 17 13 62 - Fax : 0145 17 13 61

**ACTES DES 12èmes JOURNEES
d'ETUDES SUR LES AEROSOLS
Paris, 4 - 5 décembre 1996**

Pr Dr André RENOUX

12èmes JOURNEES D'ETUDES SUR LES AEROSOLS

4 - 5 décembre 1996

P A R I S

-- S O M M A I R E --

- | | PAGES |
|--|--------|
| - <i>Introduction des 12èmes Journées. Professeur A. RENOUX, Président de l'ASFERA.</i> | 1 - 2 |
| - Conférence Plénière par le Docteur M. ATTOUI, Université Paris XII.
Les nanoparticules dans l'air, génération, détection et granulométrie. | 3 - 16 |

LES AEROSOLS DANS L'ENVIRONNEMENT

- | | |
|--|---------|
| - Evaluation de l'impact sur l'échantillonnage de l'ozone et du dioxyde de soufre des particules déposées dans les lignes d'échantillonnage.
R. THIELEKE, G. VALFRE.
<i>AIRFOBEP, route de la Vierge, 13500 Martigues.</i> | 17 - 21 |
| - Vers une maîtrise de la pollution de l'air sur les lignes du métro parisien.
S. MAZOUÉ(1)(2), D. GABAY(1), A. RENOUX(2), M. ATTOUI(2)
(1) RATP LAC A67, 54 Quai de la Rapée, 75599 Paris cédex 12. (2) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Avenue du Général de Gaulle 94010 CRETEIL Cedex. | 23 - 28 |
| - Origine des composés organiques présents dans l'aérosol urbain de la ville de Grenoble.
J. SUAREZ, V. HOYAU, P.M. CLAIN, P. MASCLET.
<i>Université de Savoie, Laboratoire TEPE, ESIGEC 73376 Le Bourget lu Lac</i> | 29 |
| - Caractérisation des aérosols diesel d'un autobus R 312. Etude comparative de carburants plus ou moins désulfurés.
C. LE GUERNE(1)(2), C. PARFAIT(2), A. RENOUX(1), M. ATTOUI(1).
(1) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Avenue du Général de Gaulle 94010 CRETEIL Cedex. (2) RATP - Département Environnement et Sécurité - D2E/EQA - 13 rue Jules Vallès 75011 PARIS. | 31 - 33 |
| - Composés organiques présents dans l'aérosol polaire.
V. HOYAU, J. SUAREZ, P.M. CLAIN, P. MASCLET.
<i>Université de Savoie, Laboratoire TEPE, ESIGEC 73376 Le Bourget lu Lac</i> | 37 |

PHYSIQUE DES AEROSOLS ET APPLICATIONS

- | | |
|--|---------|
| - A new electrical route towards micro-reactor droplets for homogeneous powders production.
J.P. BORA, D. CAMELOT, J.C.M. MARJINISSEN, B. SCARLETT.
<i>Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas du CNRS, Ecole Supérieure d'Electricité Plateau du Moulon, 91192 Gif-sur-Yvette, France.</i> | 39 - 44 |
| - Rotation d'une particule sphérique piégée dans un faisceau laser.
H. POLARET, G. GREHAN, G. GOUESBET
<i>Laboratoire Energétique des Systèmes et Procédés, URA CNRS 230, CORIA, INSA de Rouen, B.P. 08, 76130 Mont Saint Aignan.</i> | 45 - 50 |

- Détermination des forces d'interaction sur deux gouttes de rayons différents dans un écoulement linéaire quelconque. 51 - 56
F. PIGEONNEAU, F. FEUILLEBOIS.
LPMMH-ESPCI, 10 rue Vauquelin, 75231 Paris Cedex 5.
- Evaluation des dépôts d'aérosols par thermo et diffusiophorèse à partir de la connaissance de grandeurs thermohydrauliques. Application au cas d'un écoulement stationnaire dans une conduite cylindrique verticale. 57 - 62
A. ZOULALIAN (1), T. ALBIOL (2).
(1) Université Henri Poincaré, Nancy 1, B.P. 239, 54506 VANDOEUVRE les Nancy. (2) Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, Centre de Cadarache, 13108 Saint Paul Lez Durance.
- Resuspension de particules : mesure simultanée de la hauteur et de la vitesse de particules le long d'une paroi 63 - 71
H. BULTYNCK(1), G. GREHAN(1), G. GOUESBET(1), D. BOULAUD(2).
(1) Laboratoire Energétique des Systèmes et Procédés, URA CNRS 230, CORIA, INSA de Rouen, B.P. 08, 76130 Mont Saint Aignan (2) Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, Département de Prévention et d'Etude des Accidents, Service d'Etudes et de Recherches en Aérocontamination et en Confinement, CEA/Saclay, bât. 389, 91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex, France.
- Détermination du coefficient de diffusion du ^{218}Po . 73 - 78
J. MALET(1)(2), N. MONTASSIER(1), D. BOULAUD(1), A. RENOUX(2).
(1) Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, Département de Prévention et d'Etude des Accidents, Service d'Etudes et de 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.
- Confinement dynamique par rideau d'air appliqué à l'industrie agroalimentaire. 79 - 85
K. JURSKI(1), E. GEHIN(1), M. ATTOUI(2), G. PIAR(1).
(1) Laboratoire d'Energétique et de Thermique Industrielle de l'Est Francilien. (2) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Avenue du Général de Gaulle 94010 CRETEIL Cedex.
- Application de l'Anémométrie Phase Doppler à des milieux d'accès optique difficile. 87 - 94
D. BLONDEL, T. GIRASOLE, G. GREHAN, 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.
- **Conférence Plénière** par Monsieur J.F.CHASSAING. 95 - 102
- Les zones à atmosphère contrôlée dans l'industrie.
Cabinet CLEAN CONCEPT Ingénierie, 47 rue de la Coussaye, 95880 ENGHEN-LES-BAINS.

BIOAEROSOLS ET FILTRATION

- Comportement des filtres à l'air de ventilation générale vis-à-vis des aérosols biologiques. 103 - 108
A. GINESTET(1), S. MANN(2), S. PARAT(2), S. LAPLANCHE(1), J.H. SALAZAR(1), D. PUGNET(1), S. EHRLER(2), A. PERDRIX(1).
(1) CETIAT, 27 bd. du 11 novembre 1918, B.P. 2042, 69603 Villeurbanne Cedex, France. (2) IUMTE Service de Médecine du Travail, RCH Hôpital A. Michallon, B.P. 217, 38043 Grenoble Cedex, France.
- Une solution innovante pour lutter contre l'aérocontamination : le Lamelior. 109
C. DROAL.
France Air, rue des Baronnères, B.P. 406, 01704 BEYNOST
- Etude comparative de différentes techniques de contrôle microbiologique de surface. 111 - 115
P. GARRY(1), F. GENSDARMES(1)(2), R. GONZALEZ(1)(2), J.L. VANDEUVRE(1).
(1) CTSCV, 7 avenue du Général de Gaulle, 94700 MAISONS ALFORT. (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.

- Elaboration d'un protocole expérimental de contamination des matériaux de construction par un aérosol bactérien. 117 - 122
E. ROBINE(1)(2), M. ATTOUI(2), D. DERANGERE(1), R. MOREAU(3).
(1) Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, 84 avenue J. Jaurès, 77421 Marne La Vallée.
(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. (3) Microbiologie Appliquée, Université PARIS XII, Faculté des Sciences, Avenue du Général de Gaulle, 94010 CRETEIL Cedex.
- Solid and liquid aerosol particle loading effect on fibrous filter material performance : an experimental study. 123
K.L. SCURRAH, J.I.T. STENHOUSE.
Aerosol Technology Group Université de LOUGHBOROUGH, Angleterre.

METROLOGIE DES AEROSOLS

- Mesure de particules cylindriques par anémométrie phase Doppler. 125 - 133
N. GAUCHET, T. GIRASOLE, K.F. REN, G. GREHAN, 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.
- Développement de techniques pour mesurer la distribution en dimension des produits à vie courte du radon. 135 - 139
C. HUET(1), G. TYMEN(1), N. MONTASSIER(2), 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) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Avenue du Général de Gaulle 94010 CRETEIL Cedex.
- Mobilité des particules ultrafines radioactives. Nouvelle technique de mesure. 141 - 146
B. MESBAH(1), B. FITZGERALD(1), P.K. HOPKE(1), M. POURPRIX(2)
(1) Department of Chemistry, Clarkson University, Box 5810, POTSDAM, NY 13699-5810.
(2) Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, DPEA, CE Saclay, 91191 Gif sur Yvette.
- Efficacité d'échantillonnage des appareils de prélèvement de la fraction alvéolaire d'un aérosol. 147 - 159
P. GÖRNER(1), R. WROBEL(1), V. MICKA. (2), J. DENIS(3), J.F. FABRIES(1).
(1) INRS, Laboratoire de Métrologie de la Pollution par les Aérosols, B.P. 27, avenue de Bourgogne, 54501 Vandoeuvre-les-Nancy. (2) Institut d'Hygiène du Travail d'Ostrava, Laboratoire National de Référence pour le Risque dû à l'Empoussièrement, Partyzanské Nam. 7, 72892 Ostrava, République Tchèque. (3) Université Henri Poincaré, Faculté des Sciences de Nancy I, 54500 Vandoeuvre-les Nancy.
- Une nouvelle méthode pour la détermination de la densité et de la masse des aérosols.. 161 - 166
E. LE BRONEC(1), D. BOULAUD(2), M. POURPRIX(2), R. GOUGEON(3), A. RENOUX(1)
(1) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII, Avenue du Général de Gaulle 94010 CRETEIL Cedex. (2) Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, DPEA, CE Saclay, 91191 Gif sur Yvette. (3) AEROCINESIS, 29 rue Jean Rostand, 91893 ORSAY Cedex.
- Utilisation des filtres fibreux pour la mesure de la radioactivité des aérosols. 167 - 174
L. GRIVAUD, S. FAUVEL
Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, DPEA, CE Saclay, 91191 Gif sur Yvette. Cedex

EXPOSANTS

- AEROCINESIS, Parc Club Orsay Université, 29, rue Jean Rostand, 91893 Orsay cedex. 175
- ECOMESURE - Etudes, Contrôle, Mesure - B.P. n° 13 - 91640 BRIIS SOUS FORGES. 177
- INSTRUMAT, 4 Avenue des Andes - Zone d'activités de Courtaboeuf - B.P. n° 86 91943 LES ULIS Cedex A (FRANCE) 179

- ITS/ICS - 91, rue de Général de Gaulle - B.P. n° 1 - 27109 LE VAUDREUIL Cedex.	181 - 182
- Liste alphabétique des auteurs	183 - 184
- Liste des participants	185 - 189
- Annonce de E A C, HAMBOURG, 15 - 19 septembre 1997	191 - 192

A S F E R A

Association Française d'Etudes et de Recherches sur les Aérosols

Le Président

Voici les actes de notre Congrès annuel sur les aérosols, qui s'est tenu, les 4 et 5 décembre 1996 à l'INA à Paris. Deux conférences plénières (par le Dr. M. ATTOUI sur les nanoparticules et par M. J. F. CHASSAING sur les zones à atmosphère contrôlée). 24 conférences montrent la vitalité de la Science des Aérosols française. Je tiens à remercier tout particulièrement les Membres du Bureau de l'ASFERA, qui m'ont aidé à établir ce programme. Nous avons, en plus, eu le plaisir d'accueillir quatre exposants, et j'ai tenu à ce qu'une notice expliquant leurs activités figure dans ce recueil.

J'insiste bien sur le fait que l'ASFERA n'est pas, LOIN DE LA, réservée aux seuls Physiciens des Aérosols. Elle doit réunir le MAXIMUM de personnes travaillant sur les aérosols : Chimistes, Biologistes, Microbiologistes, Médecins, Pharmaciens ... Physiciens (quand même!) et Industriels. Je rappellerai à mon ami le Pr. R. MOREAU la promesse qu'il nous a faite de nous amener des Pharmaciens. Je me suis également réjoui de voir une timide mais réelle apparition des Industriels français qui doivent, de plus en plus, s'inspirer de leurs collègues anglais, japonais, américains, allemands, qui, dans leurs pays, n'hésitent jamais à participer à des manifestations identiques à la nôtre.

Du reste, d'une façon générale, chacun d'entre nous devrait être le propagandiste de nos journées Aérosols en suscitant des interventions et des participations de la part des spécialistes qu'il côtoie. Pour notre part, nous allons, en février 1997, lancer une campagne de sensibilisation à nos prochaines journées de DECEMBRE 1997.

Sur le plan international, nous avons commencé à régler une partie de la dette de l'EAC BLOIS 94, du fait de la déconfiture du GAMS. Nos amis allemands du GAeF ont eu la délicatesse d'annuler le reste de notre dette, je les en remercie très chaleureusement.

Vous le savez, l'ASFERA est l'un des Membres Fondateurs de l'EAA (European Aerosol Assembly) et Membre du Bureau Directeur de l'IARA (International Aerosol Research Assembly). Le Dr. D. BOULAUD nous a brillamment représentés à Delft en Septembre 1996 (EAA) et à ORLANDO en Octobre 1996 (IARA).

Par ailleurs, le Journal of Aerosol Science va, dans son prochain numéro (vol. 28, n°2) publier les résumés de notre congrès de décembre 1995, comme il publiera ceux de cette année.

La prochaine "European Aerosol Conference" (EAC 97) aura lieu du 15 au 19 Septembre 1997 à HAMBOURG. Tâchons d'y venir nombreux. On en trouvera l'annonce à la fin de ce volume.

En souhaitant que cette année 1997 soit la meilleure possible pour tous, j'espère aussi que l'ASFERA va continuer à se développer et, pour celà, les membres du bureau et moi même AVONS BESOIN DE VOUS. De sorte que je suis certain que notre congrès de décembre 1997 sera encore plus réussi que celui de cette année et que nous y serons encore plus nombreux.

André RENOUX

LES NANOPARTICULES DANS L'AIR, GENERATION, DETECTION ET GRANULOMETRIE

Michel B. ATTOUI

Laboratoire de Physique des Aérosols et Transferts des Contaminations
Université Paris XII, Avenue du Général de Gaulle, Créteil.

Résumé :

L'aérosol nanométrique (particules dont le diamètre est inférieur à 10 nm) est présent dans l'air atmosphérique en concentrations élevées. Il résulte essentiellement de la conversion gaz - particule. L'aérosol radioactif naturel (descendants du radon) sous forme libre est lui aussi de dimensions nanométriques et même subnanométriques. On rencontre également l'aérosol nanométrique dans un certain nombre d'industries telles : fours électriques, combustion, réacteurs chimiques pour matériaux synthétiques, décharges électrostatiques, nanostructures, céramiques et frittés, nouveau matériaux à nanostructures etc. Dans cet article, nous passons en revue les méthodes de génération, de détection et de mesure de la granulométrie de cet aérosol.

Abstract

Nanoaerosol (diameter below 10 nm) is present in the atmosphere with high concentrations. It are formed from the gaz phase by homogeneous our heterogeneus condensation. Natural radioactive aerosol (Radon progeny) has also nanometric dimensions and even subnanometric. We found the nanometrics aerosol also in some industries like : furnaces, combustion, chimecal reactors for synthetics materials, nanostrutures,ceramics etc.... In this paper we review the nanometric aerosol generators, methods, detection.

1°/ INTRODUCTION

L'aérosol nanométrique ($dp < 10\text{nm}$) est de plus en plus étudié aussi bien en Science des aérosols qu'en technologie des nanostructures. En effet dans ce domaine de dimensions, nous retrouvons le large champ de dynamique des aérosols, (dans lequel les physiciens des aérosols sont présent depuis plus d'un quart de siècle), la physique des solides et la chimie à l'échelle du nanomètre. Cependant, cet aérosol était connu et étudié depuis le siècle dernier (Coulter 1875, Aitken 1888). Aitken a été le premier à mesurer dans l'air la concentration de ces noyaux de condensation, (appelés parfois noyaux d'Aitken), en 1910 ($1,5 \cdot 10^5 \text{ p cm}^{-3}$). Pollack et Murphy en 1951 confirment ses résultats ($2 \cdot 10^5 / \text{cm}^3$). O'Connor *et al.* (1961) montrent que la majorité de ces noyaux qui proviennent de la conversion gaz-particule a un diamètre inférieur à 110 angströms et est neutre électriquement. L'aérosol produit par les algues après que la mer se soit retirée (marée basse) est lui aussi nanométrique et présent en grande concentration dans l'air, d'après les travaux de Paugam (1978).

D'autre part, l'aérosol radioactif naturel, (descendants du radon) dans l'air sous forme libre a des dimensions qui vont de quelques angströms à quelques nanomètres (Malet *et al.* 1996a et b, Hopke 90). Cet aérosol radioactif naturel suit les lois de la physique des aérosols, bien sûr, de la même manière que les aérosols non radioactifs et, de plus il se détecte avec des techniques de radioactivité (Renoux 1996, Kerouanton *et al.* 1996, Mesbah 1996, Olawin *et al.* 1995). La conversion gaz particules dans l'air marin au niveau des continents donne lieu à des concentrations d'aérosol nanométrique élevées (Tymen *et al.* 1995). Mais on rencontre dans bien d'autres domaines (combustion, les réacteurs chimiques, fours électriques, décharges électriques, . . .) l'aérosol nanométrique.

De par ses dimensions, cet aérosol est fortement influencé par l'agitation des molécules du gaz porteur. Il est donc soumis au mouvement brownien résultant de ses interactions mécaniques avec les

molécules gazeuses. Il obéit à la loi d'Einstein qui donne son déplacement quadratique moyen en fonction du temps et de son coefficient de diffusion, lui même une fonction de la taille de l'aérosol. Malet *et al.* (1996b).

Dans cette article nous passons en revue les moyens de génération de cet aérosol ainsi que les techniques de mesure de sa taille et de sa concentration dans l'air.

II°/ DETECTION DE L'AEROSOL NANOMETRIQUE

Pour détecter cet aérosol, on utilise sa capacité à "grossir" jusqu'à une taille relativement facile à exploiter, ou sa capacité à porter des charges électriques de façon à produire un courant électrique mesurable. Il existe deux appareils de mesure de la concentration particulaires capables de détecter l'aérosol nanométrique, basés sur ces deux propriétés. Le compteur de noyaux de condensation grossit l'aérosol avant de le détecter optiquement, l'électromètre mesure un courant électrique (en général faible) induit par un courant d'air chargé d'aérosols préalablement chargés électriquement.

1°- Le compteur de noyaux de condensation (C.N.C.)

Le compteur de noyaux de condensation (C.N.C.) est l'appareil de détection des particules fines, ultrafines et nanométriques. Il peut "voir" des particules dont le diamètre va jusqu'au nanomètre. C'est un appareil dont le principe est le même que celui du premier compteur (Aitken 1888, 1891), c'est à dire le grossissement de particules par vapeurs condensables avant comptage. Aitken utilisait de la vapeur d'eau pour former des gouttelettes d'eau, par condensation, sur chacun des noyaux, qu'il comptait ensuite, individuellement de manière visuelle. Le compteur de Pollak (Nollan et Pollak 1946) a été le premier à introduire le comptage photoélectrique en utilisant l'atténuation par les gouttelettes, toujours d'eau, d'un rayon lumineux. Ces compteurs, ainsi que les versions commerciales qui s'en sont suivies, utilisaient la détente adiabatique pour faire condenser la vapeur d'eau sur les particules. Bricard *et al.* (1972, 1974, 1976) en France, Sinclair et Hoops (1975) aux Etats Unis proposent un compteur dit "à flux continu" utilisant des vapeurs butyliques pour grossir l'aérosol à détecter. L'air chargé d'aérosols, introduit au dessus d'un réservoir de buthanol, passe dans un tube horizontal chauffé pour se saturer en vapeur et arrive ensuite dans un deuxième tube maintenu à basse température. Ce tube dit condenseur, est le siège de la condensation sur les particules d'aérosol. Les gouttelettes ainsi formées de dix à douze microns (Agarwal *et al.* 1977) sont détectées par un dispositif optique. Cet appareil, (figure 1), décrit et calibré par Agarwal et Sem (1980) a été commercialisé par TSI sous la dénomination de CNC 3020. Il possède une efficacité de comptage de 50% pour des diamètres de 10 nm avec un débit de prélèvement de 0,3 litre par minute. TSI introduit dans cet appareil deux systèmes de comptage (photométrique et individuel) qui permettent de mesurer des concentrations allant de 0,01 à 10^7 particules par centimètre cube. Une optique laser et une boucle de dérivation sur le circuit d'air permettent à TSI quelques années plus tard de descendre le diamètre détectable à 7 nm et le débit de prélèvement à 1,4 litre par minute. Le débit d'aérosol grossi étant toujours égal à 0,3 litre par minute. Le C.N.C. donne une mesure intégrale de l'aérosol. Il n'a pas de moyen de remonter au diamètre initial du noyau. Nolan (1972), Liu *et al.* (1975) donnent une revue et un historique des développements des différents types de CNC.

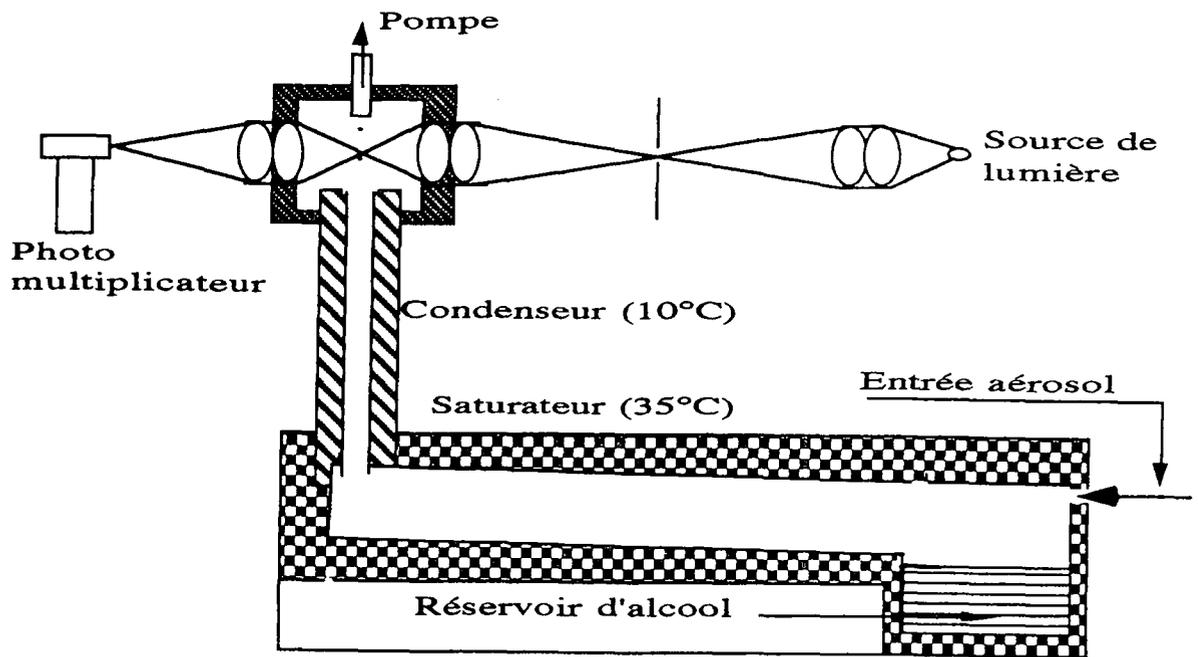


Fig. - 1 - Schéma de principe du C.N.C. à flux continu.

Dans ce domaine de la métrologie (détection optique après grossissement), la recherche scientifique a pris, à partir de cet appareil, deux directions principales. Aux Etats Unis, elle est axée sur la détection de diamètres de plus en plus fins. En France, on a surtout travaillé sur l'augmentation du débit de prélèvement. Les recherches sur le diamètre ont abouti à des appareils disponibles sur le marché comme nous allons le voir en premier. Pour des raisons industrielles, commerciales et autres, les appareils à grands débits ne sont pas sur le marché bien qu'un brevet ait été déposé et vendu par le CEA.

a - C.N.C. ultrafin

Le CNC dit "ultra fin" (TSI 3025) possède une efficacité de comptage de plus de 50% pour des aérosols de 3 nm. Il détecte des diamètres plus bas mais avec des efficacité beaucoup plus faibles. Cet appareil fait suite aux travaux portant sur la condensation hétérogène dans un conduit réfrigéré de Metayer et Madelaine (1980) Metayer (1982), Liu *et al.* (1982), Wilson *et al.* (1983), Stolzenburg et McMurry (1984), Bartz *et al.* (1985), Keady *et al.* (1988), Stolzenburg, (1988). Le principe de fonctionnement reste le même sauf pour la partie condensation principalement. En effet l'injection d'aérosol se fait au centre du condenseur qui est cette fois ci coaxial. De l'air filtré, saturé en vapeur de buthanol, accompagne l'aérosol le long du condenseur pour diminuer les pertes par diffusion sur les parois. Toujours pour diminuer les pertes, l'aérosol ne traverse pas toute la longueur du saturateur. La majeure partie du prélèvement (air chargé d'aérosol) est filtré, séché pour passer dans le saturateur avant de rencontrer le reste du prélèvement (0,5 centimètre cube / seconde) qui a traversé un capillaire de quelques centimètres seulement de long. Cela permet donc de réduire au minimum les pertes par diffusion de l'aérosol ultra fin et d'activer des noyaux de plus en plus fins. Ce C.N.C. (Modèle 3025 de T.S.I.) appelé ultra fin (UCNC) détecte des aérosols de 3 nm avec une efficacité de plus de 50% pour des concentrations ne dépassant pas 10^5 particules par centimètre cube afin d'éviter les problèmes de coagulation.

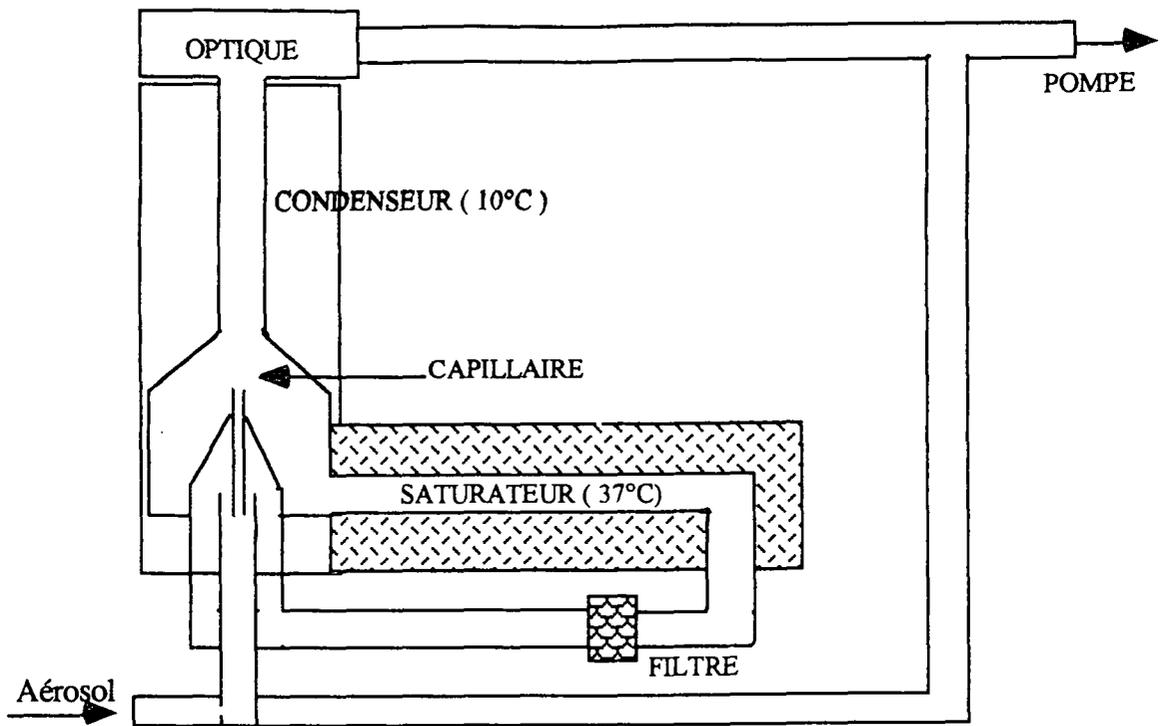


FIG. - 2 - SCHEMA DE PRINCIPE DU C.N.C. (ULTRA-FIN) 3025

b - CNC à haut débit.

La recherche française sur le C.N.C. (CEA - Université Paris XII) s'est penchée sur le problème du débit. Suite aux travaux de Metayer (1982), Assa Achy (1987) a mis au point un C.N.C. à grand débit. Il dimensionne un nouveau CNC (toujours sur le principe du flux continu), capable de détecter des aérosols de 10 nm avec une efficacité supérieure à 50% et aspirant à 28,4 litres par minute! Rappelons que les CNC type TSI ne dépassent pas 1,4 litre par minute. Cet appareil (fig. 3) a donné lieu à un brevet C.E.A., acheté par une société américaine qui ne l'a jamais commercialisé. D'autre part, on a vu apparaître des travaux sur une éventuelle discrimination des noyaux, à partir des gouttelettes formées. En effet, Stolzenburg (1988), Ahn (1990) parlent de dépendance de la taille du noyau sur la goutte finale. Rebours *et al.* 1992, Rebours (1994) reprennent les travaux de Metayer (1982), Assa Achy (1987) et donnent à partir d'un système de grossissement de particules (S.G.P.) à fort débit une relation de dépendance univoque entre les dimensions des gouttes et la taille des noyaux lorsque cette dernière est comprise entre 4 et 20 nm, d'où la faisabilité d'un granulomètre nanométrique et à grand débit. De plus, l'efficacité d'activation de cet appareil (fig. 4) pour des noyaux de 4 nm. est de 100%

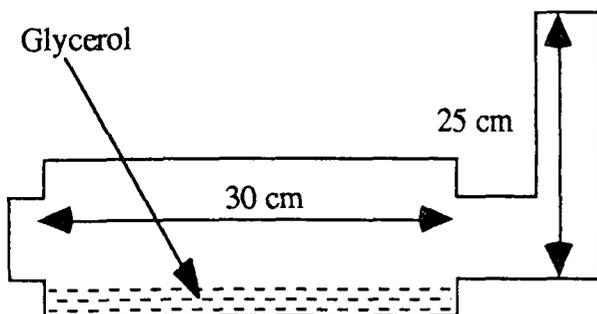


FIG. - 3- SCHEMA DE PRINCIPE DU CNC A GROS DEBIT (ASSA ACHY 1987)

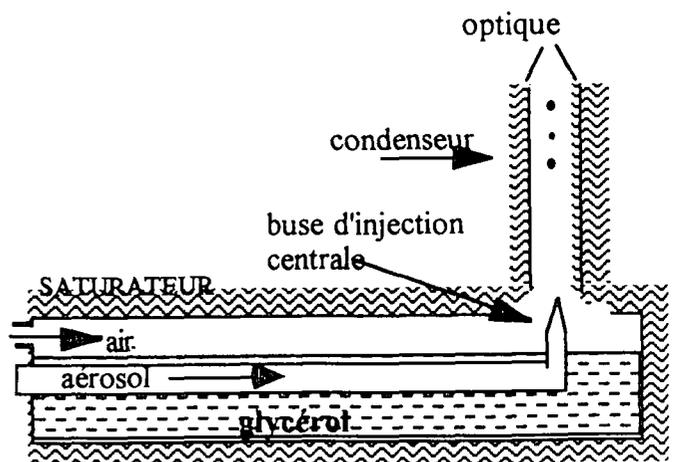


FIG. - 4 - SCHEMA DE PRINCIPE DU S.G.P. REBOURS (1994)

2°- L' ELECTROMÈTRE

L'électromètre, (fig. 5), est un dispositif constitué d'une cage de Faraday et d'un ampèremètre capable de mesurer des courants très faibles (de l'ordre de 10^{-15} A). Grâce à cet appareil, on peut mesurer la concentration volumétrique d'un aérosol, si on connaît la charge électrique portée par chaque particule Liu et Pui (1974), Sem (1975). De plus l'efficacité de captation ou de détection de l'électromètre ne dépend pas de la taille (Winklmeyer *et al.* 1991, Wiedensohler *et al.* 1994). L'air chargé de particules d'aérosols chargées électriquement entre dans la cage de Faraday pour rencontrer un filtre à très haute efficacité. Le filtre placé sous une grille métallique, capte les particules tandis que ses charges électriques sont récupérées par la grille pour s'écouler vers un détecteur électrique (électromètre). Comme pour le CNC, l'électromètre donne la concentration de l'aérosol mais pas la taille. Le courant I, mesuré est une fonction du débit volumique Q_v , d'aérosol entrant dans la cage, du nombre n, de charges portées par les particules, de la charge élémentaire e, et de la concentration n en particules. I est donné par la relation suivante

$$I = C n e Q_v$$

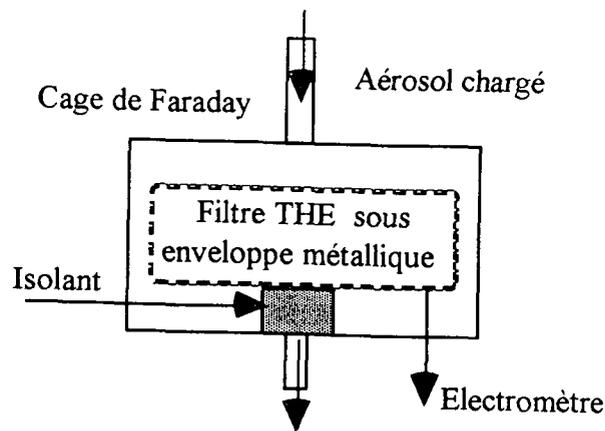


FIG. -5- SCHEMA DE PRINCIPE DE L'ELECTROMETRE

III / GÉNÉRATION DE L'AÉROSOL NANOMÉTRIQUE.

Il existe plusieurs types de générateurs d'aérosols polydispersés ou quasimonodispersés nanométriques. On peut citer, les générateurs à fil chauffé (O'Conner and Roddy 1966), à explosion de fil Phalen (1972), à arc électrique (Boffa and Pfender 1973), la torche à plasma (Tarroni *et al.* 1974). Ils présentent tous cependant un défaut majeur, une instabilité de génération dans le temps. Seuls les générateurs utilisant la condensation homogène et l'électrospraying peuvent donner un aérosol nanométrique stable.

a- Générateur par évaporation condensation

On trouve dans la littérature un certain nombre de générateurs, ils sont décrits par Spurny et Hampl (1965), Spurny et Lodge (1968, 1972, 1973), Spurny *et al.* (1980), Sutugin *et al.* (1971a et b), Soderholm(1977) et Kousaka *et al.* (1982). Ils utilisent tous un four pour vaporiser une substance qui, par condensation homogène produira un aérosol hautement concentré, polydispersé ($\sigma_g \approx 2,5$). Intéressons nous aux dispositifs qui donnent un meilleur σ_g .

Pour obtenir des concentrations élevées d'aérosols nanométriques, Scheibel et Porstendorfer (1983) proposent de vaporiser une substance (NaCl ou Ag) dans un four tubulaire, sous un courant d'azote. Le mélange vapeur azote est refroidi à la sortie du four à la température ambiante dans le prolongement du tube (fig. 6). Ils obtiennent un aérosol pas très polydispersé ($\sigma_g \approx 1,3$ à $2,0$). La concentration volumique en aérosol est supérieure à 10^6 particules par cm^3 . Les diamètres les plus élevés sont obtenus

pour les hautes températures (12 nm à 1300 °C pour Ag, 825°C pour NaCl et 2 nm à 1065°C pour Ag, 600 °C pour NaCl.). Ce générateur produit un aérosol dont la taille devient instable au bout d'une heure environ et l'utilisateur n'a aucun moyen d'agir sur sa concentration. .

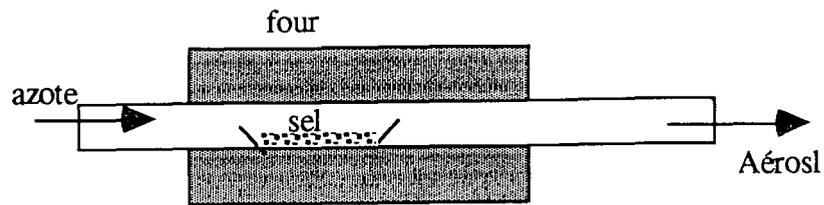


FIG - 6 - GENERATEUR NANOMETRIQUE (SCHEIBEL ET PORSTENDORFER 1983)

Bartz *et al.* (1987) proposent un générateur d'aérosols nanométriques légèrement différent découlant d'un générateur utilisé par Liu et Levy (1980) pour produire des aérosols d'acide sulfurique (fig. 7). Ils pulvérisent un aérosol dissout dans un liquide (NaCl dans de l'eau par exemple), dans un atomiseur de type Collison avant de le sécher et de l'envoyer dans un four tubulaire pour y être vaporisé. Ces vapeurs sortant du four entrent dans une section de mélange par une buse pour être accélérées et mélangées à de l'air comprimé, filtré et froid. L'aérosol ainsi produit, passe dans une section de refroidissement pour être ramené à température ambiante. Les sections de refroidissement et de mélange permettent un meilleur contrôle de la condensation des vapeurs sortant du four. L'apport d'air comprimé filtré évite, par dilution, la coagulation de l'aérosol. Le générateur permet ainsi une stabilité de l'aérosol supérieure à 12 heures. Dans ce générateur, la taille finale de l'aérosol nanométrique est obtenue en jouant sur la température du four, le taux de dilution et la concentration de la solution atomisée. Cela permet d'améliorer encore le σ_g de l'aérosol.

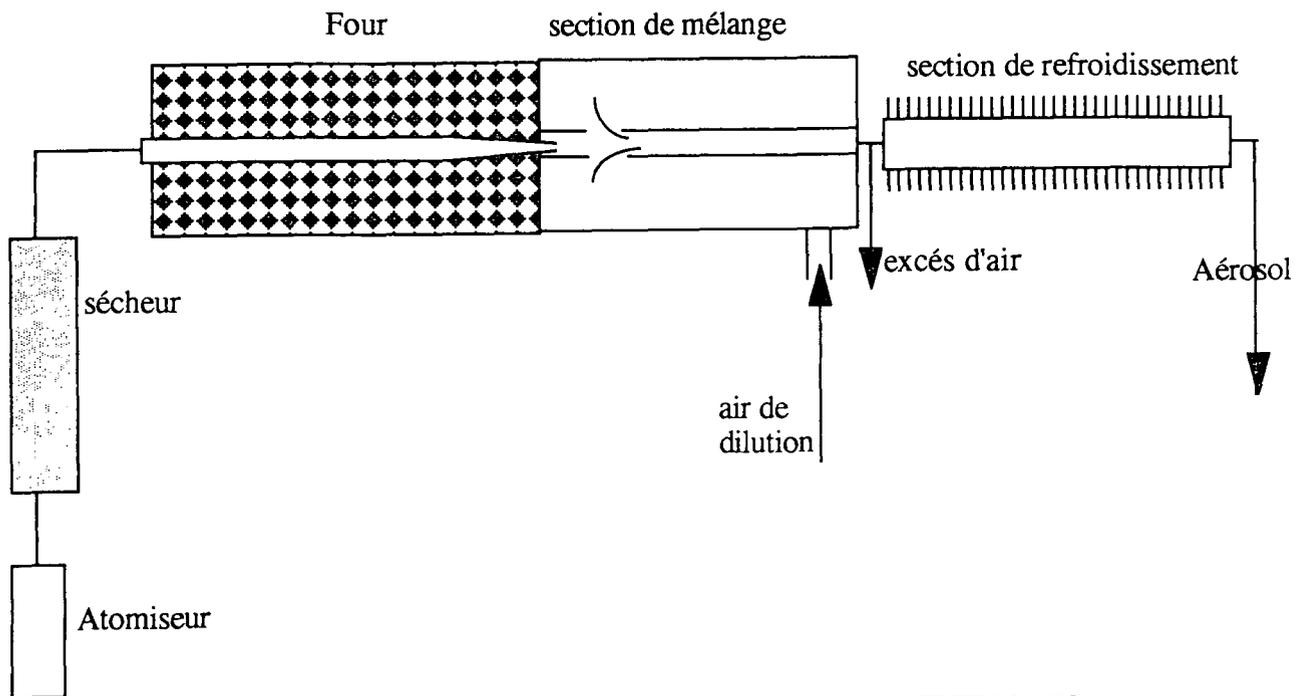
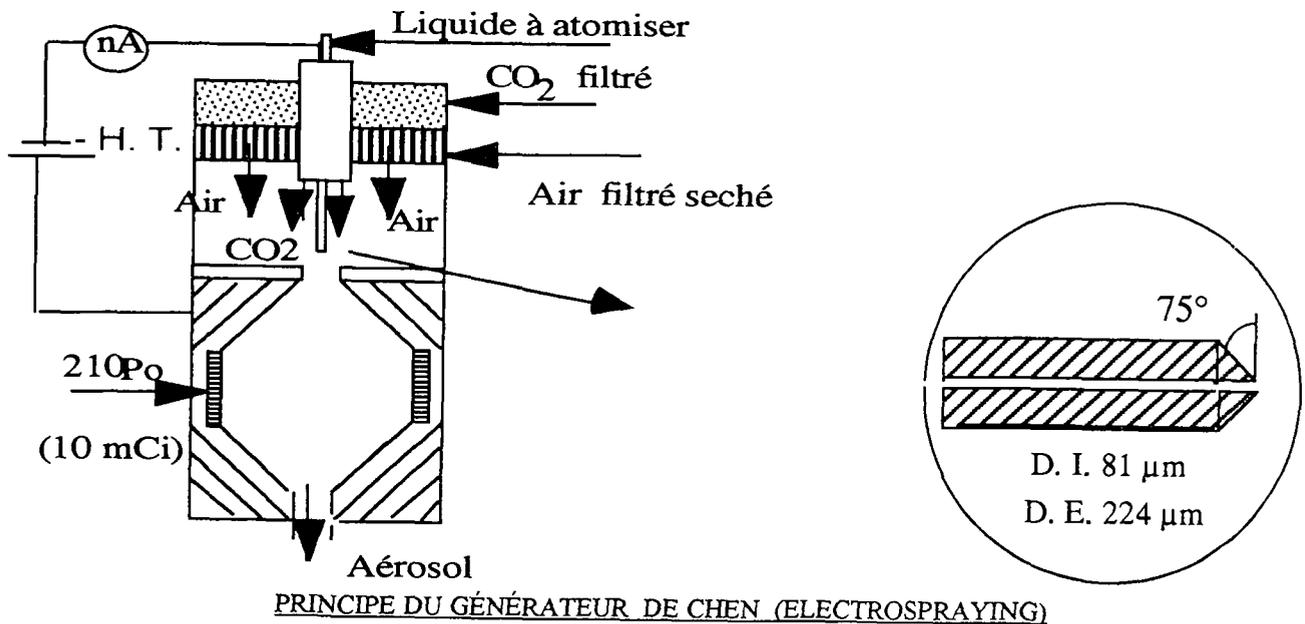


FIG - 7 - GENERATEUR D'AEROSOLS NANOMETRIQUES

b - Electro spraying.

Chen *et al.* (1995) proposent un générateur (fig. 8) de particules de 4 nm à 1,2 µm en utilisant l'électrospraying de liquides conducteurs. Ces travaux initiés par Vonnegut et Neubauer (1952), ont donné lieu à un générateur d'aérosols fins (Grace et Mareijnissen 1994, Loscertals et Fernandez de la Morra 1994). Le phénomène de l'électrospraying est détaillé par Cloupeau et Prunet-Foch (1989, 1990, 1994). De plus la revue *Journal of Aerosol Science* a consacré un numéro spécial (Vol. 25 n° 6 1994) à ce phénomène.



Les générateurs photochimiques enfin (Dubstov et Baklanov 1996, Dubstov *et al.* 1996, 1995) produisent des aérosols relativement monodispersés de quelques angstroms à une dizaine de nanomètres. Des clusters sont obtenus dans un réacteur par irradiation avec une lampe à mercure haute pression avant d'être grossis dans des vapeurs sursaturées de dibuthyle phtalate.

IV° / GENERATION D'AEROSOLS NANOMETRIQUES MONODISPÉRÉS

Les générateurs que nous venons de voir ne donnent pas un aérosol rigoureusement monodispersé. Pour ce faire, on utilise la classification électrostatique, par l'intermédiaire de la mobilité électrique des aérosols dans un champ électrique. Il existe deux dispositifs qui permettent de le faire, l'ADME et le SMEC.

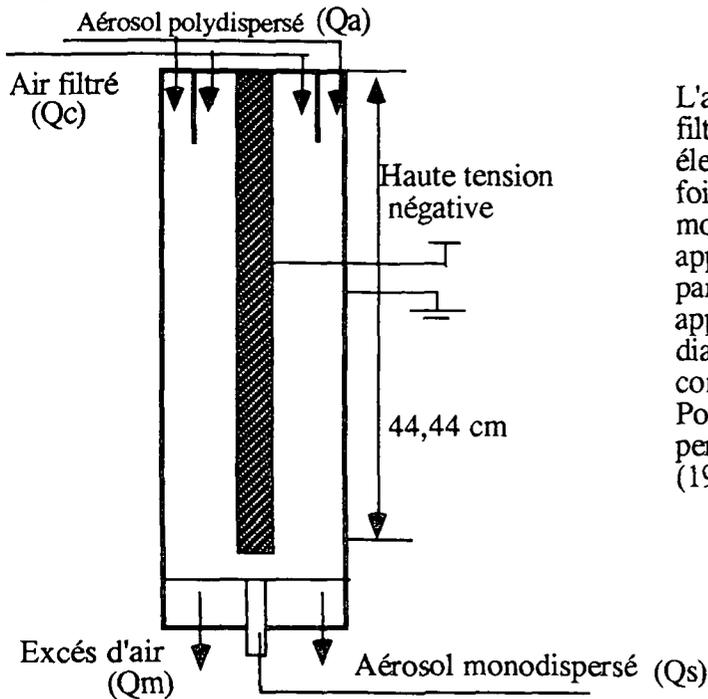
1° Analyseur de mobilité électrique (A. D. M. E.)

Pour obtenir des aérosols monodispersés nanométriques, à partir des générateurs précédemment décrits, on utilise les propriétés électriques des aérosols dans l'analyseur de mobilité électrique (ADME) Zeleny (1915, Hewit (1957), Knutson et Whitby (1975), Knutson (1976). Cet appareil, appelé DMA en anglais (Differential Mobility Analyser), génère des particules jusqu'à 7 nm. La précision sur la taille peut aller jusqu'à 2% (Liu et Pui 1974).

L'ADME est constitué de deux cylindres coaxiaux entre lesquelles on établit un champ électrique horizontal, (fig. 9). L'aérosol polydispersé préalablement porté à l'équilibre électrique de Boltzman est introduit le long des parois internes du cylindre extérieur. De l'air filtré séché circule le long du cylindre interne, sur lequel est disposée une fente d'extraction. Une haute tension (généralement négative) variable de 0 à 12 kV permet ainsi de faire varier la force électrique ($F = qE$) à laquelle est soumise la particule qui pénètre dans la zone de sélection. Une deuxième force s'exerce sur cette même particule, elle est due à l'écoulement, de haut en bas, de l'air filtré le long des parois de l'électrode interne.

L'aérosol doit être préalablement chargé électriquement et la loi de charge globale doit être connue si on veut avoir une idée précise de la quantité de charges élémentaires portée par chacune des particules. On rencontre en général pour cet appareil la loi de charge de Boltzman (Liu et Pui 1974b). La charge globale est nulle dans cet état de charge, ce qui veut dire que nous avons autant de particules chargées

positivement que négativement (Liu et Pui 1974 c). De ce fait à l'intérieur de la zone de sélection, les particules neutres passent sans être déviées, les particules négatives se déposent sur les parois internes du tube extérieur, sont donc piégées ou sélectionnées que les particules chargées positivement. Ceci a pour conséquence une baisse de la concentration de particules sélectionnées par rapport à la concentration de particules injectées. Ce générateur dépasse rarement 10^5 particules par centimètre cube.



L'aérosol est soumis à la force de Stokes due à l'air filtré de débit Q_c et à la force électrique due au champ électrique. Pour une meilleure résolution Q_c est dix fois Q_s . Ce dispositif permet de sélectionner une mobilité électrique, Z_p , donnée à travers la tension appliquée. Connaissant le nombre de charges portées par la particule on peut remonter à son diamètre. Cet appareil permet ainsi de générer des particules de diamètre connu et portant un nombre de charge connu.

Pour des diamètres nanométriques on observe des pertes par diffusion très importantes Kousaka et al. (1986)

FIG. - 9 - SCHEMA DE PRINCIPE DE L'ANALYSEUR DE MOBILITE ELECTRIQUE (ADME ou DMA)

Afin de réduire les pertes par diffusion dans l'ADME, on utilise le "short DMA" (spécialement mis au point pour l'aérosol nanométrique.) identique dans le principe au DMA mais de longueur beaucoup plus courte (11,11cm, au lieu de 44,44 cm). Winklmayr et al. (1991)

2° LE SPECTROMETRE DE MOBILITE ELECTRIQUE (S.M.E.C.)

L'autre dispositif a été mis au point au CEA, Pourprix et al. (1990), Pourprix et Daval (1990), et étudié par Mesbah (1994), Zhang et al. (1995), Boulaud et al. (1996) Fissan et al. (1996), Lebronnec et al. (1996). Le SMEC, (dénommé par les américains Radial DMA) est constitué de deux plaques circulaires entre lesquelles est introduit l'air filtré. Cet appareil à géométrie circulaire fonctionne bien sûr de la même manière que le ADME (géométrie cylindrique). Un champ électrique est établi entre les plaques par la mise sous tension de la plaque inférieure (fig. 10). L'aérosol polydispersé, injecté par une fente sur la plaque supérieure, est repris avec l'excès d'air par une fente sur la même plaque. L'aérosol (monodispersé) sélectionné est extrait par une buse à la partie inférieure de l'appareil sur la deuxième plaque. La géométrie de cet appareil, la distance entre les plaques, la longueur de la zone de sélection en font un appareil beaucoup plus facile à construire que le DMA, plus compact et moins encombrant. De plus, il devrait présenter moins de pertes par diffusion que les appareils de sa génération.

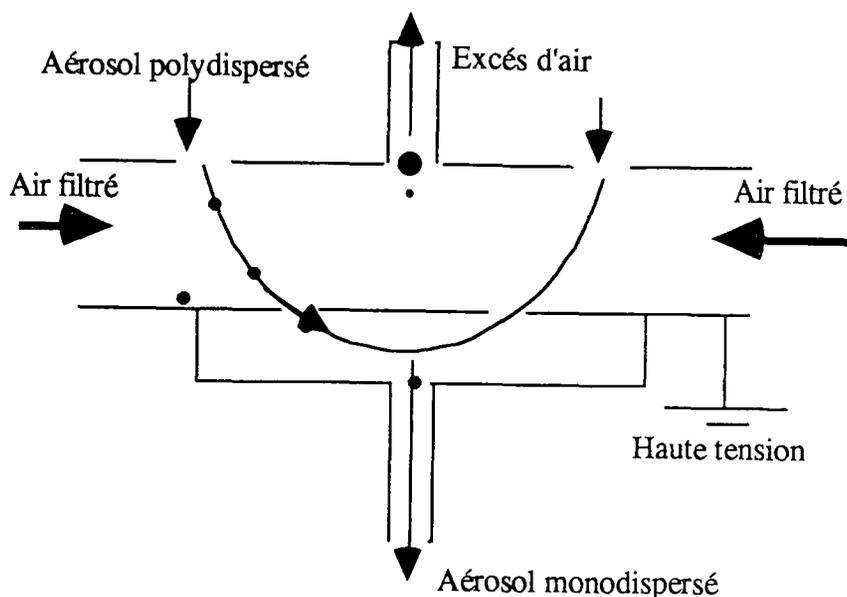


FIG. - 10 - SCHEMA DE PRINCIPE DU S.M.E.C.

V° / GRANULOMETRIE DE L'AEROSOL NANOMETRIQUE

Après avoir passé en revue les méthodes de génération et de classification de l'aérosol nanométrique, nous allons voir maintenant les différentes méthodes et techniques qui permettent de déterminer la taille de cet aérosol. On utilise pour cela les propriétés électriques, aérodynamiques (ou mécaniques) ou optiques après grossissement de ces aérosols.

1° / LE SYSTEME DMPS / SMPS

Avec l'introduction du CNC ultrafin, on arrive maintenant et dans des temps raisonnables, à faire une granulométrie à partir de 5 nm jusqu'à 1 µm. Grâce à un système DMPS (Differential Mobility Particle Size) constitué d'un analyseur de mobilité électrique (ADME / DMA), un compteur de noyaux de condensation, un microordinateur (PC) et d'un programme d'inversion de données Keady et al (1983). L'idée avait été proposée par Knutson dès 1976. La réalisation du DMPS a été rendue possible avec l'arrivée de la microinformatique et surtout grâce à un programme d'inversion de données donné par Fissan et al. (1983). Kousaka et al. (1985), Hopel (1978), Haaf (1980), Reischl (1981), Alofs et Balakumar (1982) et ten Brink *et al.* (1983) qui ont résolu les problèmes posés par la charge en milieu bipolaire et les charges multiples. Le temps de réponse était de 2 à 3 mn suivant la précision demandée. Un logiciel plus puissant, plus rapide et sous environnement Windows, forme avec le système précédent (DMA-CNC-PC) ce qui est appelé le SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer). Le SMPS de la firme américaine TSI (Thermo System Incorporation) donne la granulométrie en 60 ou 30 secondes à partir de 5 nm, (Wang et Flagan 1990). Avec l'apparition du short DMA on devrait espérer dans un temps très court à voir descendre la limite de détection de ce système à 3 nm qui est pour le moment imposée par le CNC.

2 / LA BATTERIE DE DIFFUSION

Comme nous l'avons signalé dans l'introduction, l'aérosol nanométrique est soumis au mouvement Brownien. A cause de ce mouvement, cet aérosol ne suit pas les lignes de courant du fluide porteur. Dans une conduite il a tendance à diffuser vers les parois et à y rester fixé car les forces d'adhésion sont fortes. Il y a donc perte de particules sur les parois et la concentration d'aérosols diminue au fur et à mesure que l'air s'écoule dans la conduite. Cet effet, très souvent indésirable, est utilisé dans les batteries de diffusion pour obtenir des informations sur la dimension d'un aérosol. Il existe plusieurs types de batterie de diffusion: batterie à plaques parallèles, à tubes cylindriques, à grilles, (fig.-11-) etc.... Cependant, seule la batterie à grilles est commercialisée, car c'est celle dont le traitement des données est au point. En effet, dans ce type de mesure de la granulométrie, le problème presque insoluble est la restitution des spectres granulométriques qui sont des solutions numériques d'une équation intégrale du type Fredholm instable.

Deux types de mesures peuvent être faites sur les batterie de diffusion: La mesure de la pénétration ou la mesure du dépôt sur la paroi interne de la batterie en fonction de l'abscisse de captation. En effet, à l'aide d'un compteur de noyaux de condensation on peut avoir la concentration amont et aval donc la pénétration, ou la concentration en un point donné.

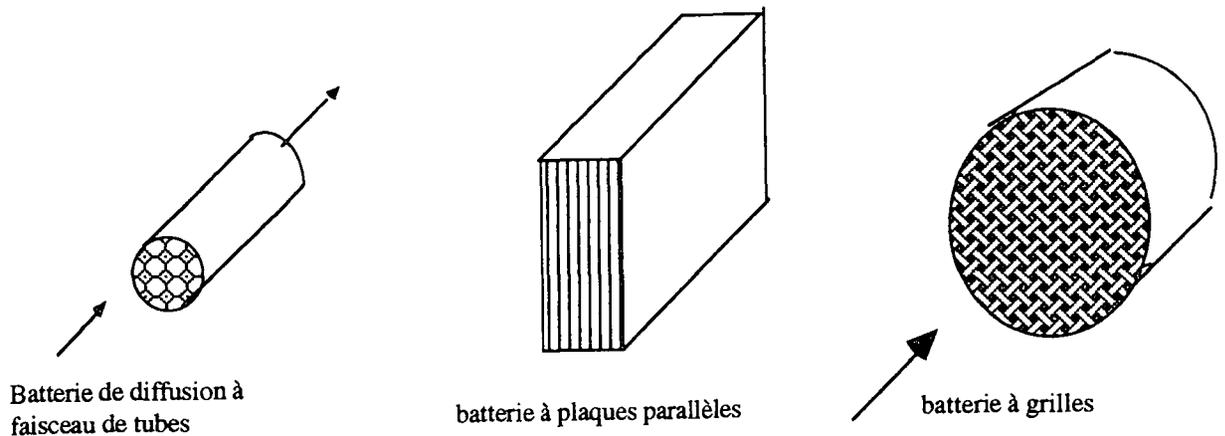


FIG. - 11 - QUELQUES TYPES DE BATTERIE DE DIFFUSION.

La batterie à grilles a donné lieu à un appareil de mesure de granulométrie pouvant aller jusqu'à 2 nm Dubstov et al. (1995, 1996) Eremenko et al. (1995) La batterie de diffusion à grilles à plusieurs étages mise au point par Sinclair et Hoopes (1975), Sinclair et al. (1979), est la seule qui soit commercialisée (TSI). Elle possède 10 étages, munis de n grilles chacun.

n varie en fonction de i, le numéro de l'étage, suivant la relation $n = i(i+1)/2$.

La théorie qui gouverne cette batterie est donnée par Cheng et Yeh (1980). Sinclair (1986) donne une excellente revue sur le sujet. Elle a été la plus étudiée ces dernières années (Yeh 1982, Yamada et al. 1988, Cheng et al. 1980, Cheng et al. 1988, Scheibel 1984, Wang 1993, Skaptsov 1996.). Elle est pour le moment la seule à donner la granulométrie de l'aérosol nanométrique en temps réel quand elle est couplée à un CNC ultrafin, telle celle représentée ci dessous.

Cependant des batteries de diffusion spécifiques pour l'aérosol radioactif par exemple développées en laboratoire peuvent détecter des aérosols de 0,5 nm (Ramarmurthi et al. 1993).

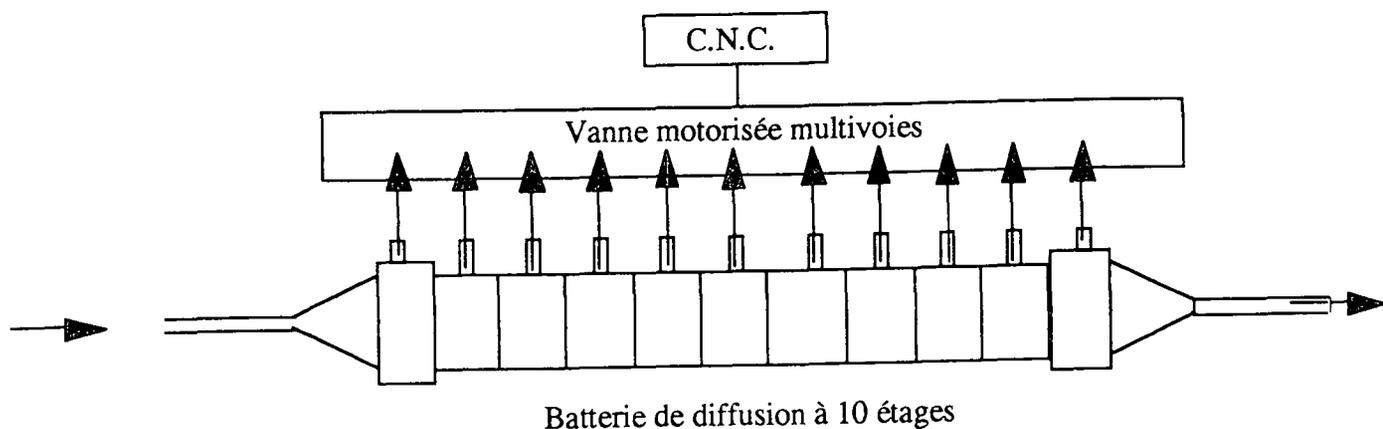


FIG - 12 - SCHEMA DE PRINCIPE DE LA BATTERIE DE DIFFUSION AUTOMATIQUE TSI

L'IMPACTEUR HYPERSONIQUE.

L'impacteur hypersonique (Fernandez de la Morra 1990a , 1990b) repose sur le principe du découplage d'aérosol de son gaz porteur par onde de choc. L'onde de choc est produite de manière séquentielle par expansion d'un jet d'air à la pression atmosphérique à travers un orifice sur une plaque plane (infinie) située dans une cavité où règne une pression de quelques tors seulement (fig. 13). La distance plaque orifice détermine la taille de l'aérosol à découpler ou à déposer. La détection de cet aérosol se fait grâce à un électromètre ou un détecteur (fig. 14) radioactif Olawoyin et al. (1995).

Pour $P_0 / P_1 \gg 1$ et $d_n \ll L$, Fernandez de la Morra (1990) , montre que le nombre de Stokes critique So de l'écoulement est donné par la relation $So = 0,1983 \rho_p d_p C_0^2 / (d_n P_0)$, où ρ_p est la densité de la particule, d_p son diamètre et C_0 la vitesse du son dans l'air.

L'efficacité de collection de la plaque ainsi que le diamètre des particules captées dépendent de L / d_n et de P_0 / P_1 .

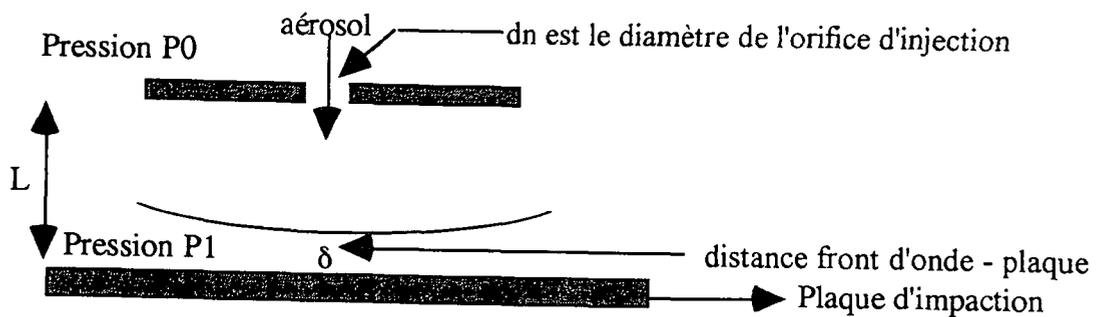


FIG. - 13 - PRINCIPE DE LA CREATION DE L' ONDE DE CHOC.

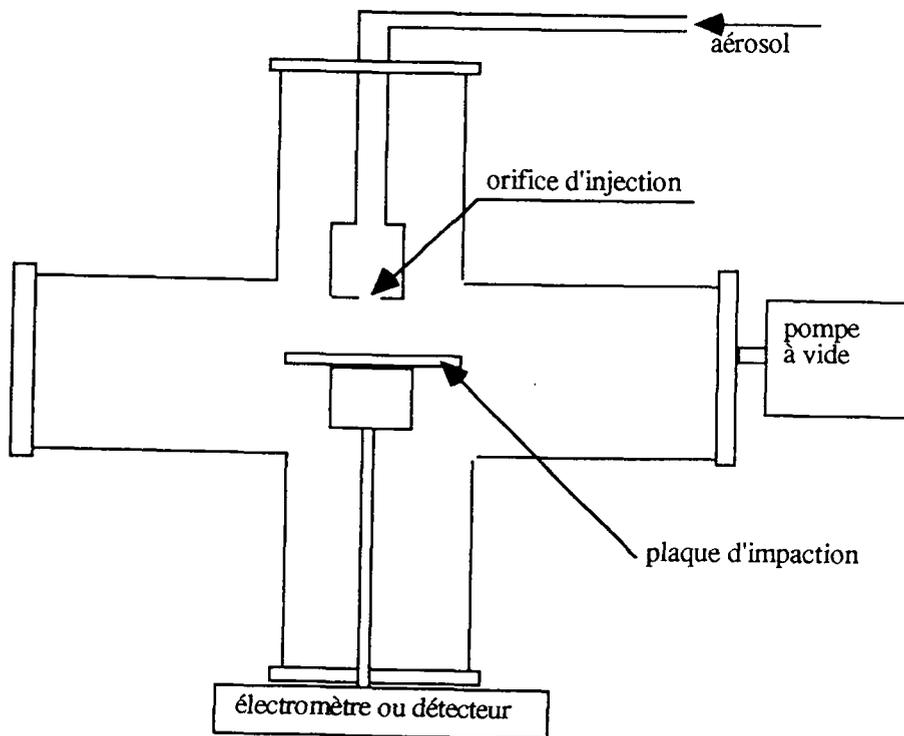


FIG. - 14 - SCHEMA DE PRINCIPE DE L'IMPACTEUR HYPERSONIQUE

CONCLUSION

Comme nous venons de le voir, la Physique des aérosols a commencé à s'intéresser à l'aérosol nanométrique depuis plus d'un siècle. Cependant, ces dernières années l'intérêt va en grandissant surtout dans le domaine de la métrologie. De plus en plus d'équipes travaillent de par le monde sur cet aérosol. En effet, on a besoin d'avoir de plus en plus de renseignements sur sa formation que ce soit dans l'air atmosphérique, les générateurs, les réacteurs chimiques, les incinérateurs etc.....

Pour la balance radiative de la planète, il est de première importance de comprendre l'effet de la nucléation homogène sur la concentration d'aérosol qui servent de noyaux de condensation pour la formation des nuages et des précipitations.

Pour l'industrie des nanostructures qui se développe de plus en plus, les besoins de connaissance sur cet aérosol sont de plus en plus importants et ne peuvent qu'augmenter. Comme nous l'avons vu, des progrès restent à faire dans tout les domaines (détection, génération, granulométrie,). On ne peut oublier l'importance de cet aérosol pour l'industrie nucléaire en cas d'accident de réacteur nucléaire.

La physique de l'aérosol nanométrique a encore de beaux jours devant elle puisque la protection de l'environnement, l'évolution des climats, la météorologie, l'industrie des nanostructure, la microélectronique, . . . lui présentent de nouveaux besoins et de nouveaux défis.

Bibliographie

- Agarwal, J. Sem, G. J. (1980) *J. Aerosol Sci.* **11**, 343
Agarwal J. K., Sem, J., Pourprix, M. (1977) *Proceedings of Ninth International Conference on Atmospheric Aerosols Condensation and Ice Nuclei*. Galway, Ireland.
Aitken, J. (1888/89) *Proc. R. Soc. Edinburgh* **16**, 135
Aitken, J. (1890/91) *Proc. R. Soc. Edinburgh* **18**, 39
Alofs, D.J., Balakumar, P., (1982), *J. Aerosol Sci.* **13**: 513
Assa Achy, M., (1987) Thèse de l'Université Paris XII. France.
Balkanov, A. M., Dubstov, S. N., Caldow, R., Havlicek, M., Sem, G. (1995). *J. Aerosol Sci.* **26**, S751
Boulaud, D., Pourprix, M., Gougeon, R., Lebronec, E., Renoux, A., (1996) *J. Aerosol Sci.* **27** : S307
Cheng, Y.G., Keating, J.A., Kanapilly, G.M., (1980) *J. Aerosol Sci.* **11** :549
Cheng, Y.G., Yamada, Y., Yeah, H.C. (1990) *Aerosol Sci. Technol.* **12** :286
Dubstov, S. N., Balkanov, A. M., Makela J.M., Augustin J. (1996) *J. Aerosol Sci.* **27**, S401
Dubstov, S.N., Koutzenogii, K.P., Levykin, A.N., Skubneskaya, G.I. (1995) *J. Aerosol Sci.* **26**, 705.
Bartz, H. Fissan, H., Helsper, C., Kousaka, Y., Okuyama, K., Fukushima, N., Keady, P.B., Kerrigan, S., Fruin, S.A., McMurry, P.H., Pui, D.Y.H., Stolzenburg, M.R. (1985) *J. Aerosol Sci.* **16**, 443.
Boffa, C. V., Pfender, E. (1973) *J. Aerosol Sci.* **4**, 103.
Boulaud, D., Pourprix, M., Gougeon, R., Lebronec, E., Renoux, A. (1996) *J. Aerosol Sci.* **27**, S307.
Bricard, J. Madelaine, G., Reiss, P., Turpin, P.V., (1972) *C.R. Acad. Sc. Paris t.* **275**, 837
Bricard, J. Delattre, P. Madelaine, J. (1974) In *Proceedings of the third conference on the climatic impact assessment program*. Rep. DOT-TCS-OST-74-15, US Dept. Transp. Washington, D.C.
Bricard, J. Delattre, P., Madelaine, J., Pourprix, M. (1976) In *Fine particles* (Edited by Liu, B. Y. H.) Academic Press, New York.
Chen, D. R., PUI, D.Y.H., Kaufman, S.L. (1995) *J. Aerosol Sci.* **6**, 963
Cloupeau, M. Prunet - Foch, B. (1989) *J. Electrostatics* **22**, 135
Cloupeau, M. Prunet - Foch, B. (1990) *J. Electrostatics* **25**, 165
Cloupeau, M. Prunet - Foch, B. (1994) *J. Aerosol Sci.* **25**, 1021.
Coulier, M. (1875) *J. Pharm. Chimie* **22**, 165 ff.
Eremenko, S.I., Caldow, R., Baklanov, R. A.M., Havlicek, H., Sem, G. (1995) *J. Aerosol Sci.* **26** S 747
Fernandez de la Morra, J., Hering, S.V., Rao, N., McMurry, P.H. (1990a) *J. Aerosol Sci.* **21** : 2
Fernandez de la Morra, Rao, N., McMurry, P.H. (1990b) *J. Aerosol Sci.* **21** : 889
Fissan, H., Hummes, D., Stratmann, F., Buscher, P., Neumann, S., Pui, D.Y.H., Chen, D. (1996) *Aerosol Sci. Technol.* **24**, 1
Fissan, J.J., Helpser, C., Thielen, J.H., (1983) *J. Aerosol Sci.* **14**: 354
Grace, J.M., Marijnissen, J.C.M., (1994) *J. Aerosol Sci.* **25** : 1005.
Haaf, W. (1980), *J. Aerosol Sci.* **11**: 201
Hewitt, G. W., (1957) *Trans. Am. Inst. Elect. Engrs.* **76**, 300

- Hopke (1990), *U.S. Department of Energy Office of Energy Research* N° DE-FGO2-89ER60878.
- Hopel, W.A., (1978), *J. Aerosol Sci.* 9: 41
- Keady, P.B., Denler, V.L., Sem, G.J. (1988) *12th International Conference on Atmospheric Aerosols and Nucleation*, Vienna, Austria.
- Keady, P.B., Quant, F.R., Sem, G.J. (1983) *TSI Quarterly* 9:3
- Kerouanton, D., Tymen, G., Boulaud, D. *J. Aerosol Sci.* 27 : 345 et al. (1996)
- Knutson, E. O., Whitby, K.T. (1975) *J. Aerosol Sci.* 6, 443.
- Knutson, E. O. (1976) In *Fine Particles* (Edited by Liu, B. Y. H.) Academic Press, N.Y.
- Kousaka, V., Niida, T., Okuyama, K., Tanaka, H., (1982) *J. Aerosol Sci.* 13, 231.
- Kousaka, V., Okuyama, K., Adachi, M., (1985) *Aerosol Sci. Technol.* 4: 209
- Kousaka, V., Okuyama, K., Adachi, M., Mimura, T. (1986) *J. Chem. Engng. Jpn.* 19, 401
- Lebronec, E., Boulaud, D., Gougeon, R., M. Pourprix, M., Renoux, A. (1996) ASFERA, Paris
- Liu, B. Y. H., Pui, D. Y. H. (1974a) *J. Colloid and Interface Sci.* 47, 155
- Liu, B. Y. H., Pui, D. Y. H. (1974b) *J. Colloid and Interface Sci.* 49, 305
- Liu, B. Y. H., Pui, D. Y. H., Hogan, A. W., Rich, T. A. (1975) *J. appl. Met.* 14, 46
- Liu, B. Y. H., Pui, D. Y. H., McKenzie, R. L., Agarwal, J. K., Jaenicke, R., Pohl, F. G., Preining, O., Reichel, G., Szymansky, W. Wagner, P. E. (1982) *J. Aerosol Sci.* 13, 429
- Liu, B. Y. H., Pui, D. Y. H. (1975) *J. Aerosol Sci.* 6, 249-264.
- Liu, B. Y. H., Levy, J. (1980) . In *Generation of aerosols and Facilities for Exposure Measurements* (K. Willeke, ed.) Ann Arbor Science Publishing, Ann Arbor, MI.
- Loscertals, I. G., Fernandez de la Morra, J. (1993) *Proc. Int. Workshop on the Synthesis and Measurement of Ultrafine Particles*, Delft, 28-29 May (Edited by Marijnissen, J. C. M. and Pratsinis, S.). Delft University Press, Netherland
- Malet, J., Montassier, N., Boulaud, D., Renoux, A. (1996a). *J. Aerosol Sci.* 27 : S261.
- Malet, J., Montassier, N., Boulaud, D., Renoux, A. (1996b). Actes ASFERA Paris.
- Mesbah, B. (1994) Thèse de l'Université Paris XII. France.
- Mesbah, B., Fitzgerald, B., Hopke, P., Pourprix, M. (1996). Actes de l'ASFERA Paris.
- Metayer, Y. (1982) Thèse de l'Université Paris XII. France.
- Nolan, P. J. et Pollak, L. W. (1946) *Proc. R. Irish. Acad.* Dublin 51 A2, 9
- Nolan, P. J. (1972) *Sc. Proc. R. Dublin Soc.* A4, 161
- O'Connor, T. C. Roddy, A. F. (1966) *J. Rech. Atmos.* 2, 239.
- O'Connor, T. C., Sharkey, W. P., Flanagan, V. P. (1961) *Q. J. R. M. S.* 87, 105.
- Olawoyin, O. O., Raunemaa, T. M., Hopke, P. K. ((1995) *Aerosol Sci. Technol.* 23 : 121
- Paugam, (1978) Thèse de l'Université de Bretagne Occidentale de Brest.
- Phalen, R. F. (1972) *J. Aerosol Sci.* 3, 395
- Pourprix, M., Daval, J. Berne, P. (1990) *AAAR 90 Meeting*, Philadelphia, PA, June 18-22
- Pourprix, M., Daval, P. (1990) (S. Masuda and K. Takahashi, eds.) Pergamon Press, New York, Vol. 2
- Rebours, A., Boulaud, D., Renoux, A., (1992) *J. Aerosol Sci.* 23, S189.
- Rebours, A. (1994) Thèse de l'Université Paris XII. France.
- Reischl, G. P. (1981) *Proceedings of 9th Annual Conference of GESELLSCHAFT Fur Aerosolforschung*, Duisburg, West Germany.
- Renoux, A., (1996) *IDOJARAS* 100 : 89
- Scheibel, H. G., Porstendorfer, J. (1983) *J. Aerosol Sci.* 14, 113.
- Scheibel, H. G., Porstendorfer, J. (1984) *J. Aerosol Sci.* 15, 673.
- Sem, G. J. ((1975) *Analysis Instrumentation* Vol. 13., *Proceedings of the 21st Annual ISA Analysis Instrumentation Symposium*, Instrument Society of America, 400 Stanwix St., Pittsburgh, Pa. 15222.
- Skapsov, A. Z. S., Baklanov, A. M., Dubtsov, S. N., Laulainen, N. S., Sem, G., Kaufman, S. (1996) *J. Aerosol Sci.* 27 S 167
- Sinclair D., Hoops, G. S. (1975) *J. Aerosol Sci.* 6, 1
- Sinclair, D. (1986) *Aerosol Sci. Technol.* 5 : 187
- Soderholm, S., (1977) Ph.D. Thesis University of Rochester.
- Spurny, K., Hampl V. (1965) *Coll. Czech. Chem. Commun.* 30, 507.
- Spurny, K., Lodge, J. P. (1968) *Atmos. Environ.* 2, 429.
- Spurny, K., Lodge, J. P. (1972) *A. J. H. A. J.* 33, 431.
- Spurny, K., Lodge, J. P. (1973) *Staub-Reinalt. Luft.* 33, 166.
- Spurny, K., Opiela, H., Weiss, G., Lodge, J. P. (1980) *Atmos. Environ.* 14, 871.
- Stolzenburg, M. R., McMurry, P. H. (1984), in *Aerosol* (Edited by Liu, B. Y. H., Pui, D. Y. H., Fissan, H. J.) Elsevier N.Y.
- Stolzenburg, M. R. (1988) Ph.D. thesis University of Minnesota, Minneapolis.
- Sutugin, A. G., Fuchs, N. A., Kostev, E. J. (1971a) *J. Aerosol Sci.* 2, 361.
- Sutugin, A. G., Kostev, E. J., Fuchs, N. A. (1971b) *Kolloid. Zh.* 33, 425

- Taroni, G., Prodi, V., Melandri, L., Bompane, G.F., Zaiacomo, T. Formignani, M. (1974) *Proceeding of the GAef-meeting* Bad Sooden, Germany.
- ten Brink, H.M., Plomp, A., Spoelstra, H., van de Vate J.F., (1983) *J. Aerosol Sci.* **14**: 589
- Tymen, G., Le Bihan, O., Droal C. (1985) *Actes ASFERA*, Paris.
- Vonnegut, B., Neubauer, R.L. (1952) *J. Colloid Sci.* **7** : 616
- Wang, S.C., Flagan, R. C., (1990) *Aerosol Sci. Technol.* **13** : 2
- Wang, H.C. (1993) *Aerosol Sci. Technol.* **18** : 180
- Wiedensohler, A., Aalto, P., Covert, D., Heintzenberg, J., McMurry, P.H. (1994) *Aerosol Sci. Technol.* **21**: 95
- Wilson J. C., Hyun, J. H., Blackshear E. D., (1983) *J. Geophys. Res.*, **88**, 6781.
- Winklmayer, W., Reischeil, A.O., Lindner, A.O., Berner, A. (1991) *J. Aerosol Sci.* **22**, 289
- Yamada, Y., Cheng, Y.S., Orman, M.M. (1988) *J. Aerosol Sci.* **19** : 733
- Yeah, H.C., Cheng, Y.S. Orman, M.M. (1982) *J. Colloid Interface Sci.* **86** : 12
- Zhang, S.H., Akutsu, Y., Russell, L.M., Flagan, R.C., Seinfeld, J.H. (1995) *Aerosol Sci. technol.* **23**, 357.
- Zeleny, J. (1915) *Proc. Camb. Phil. Soc.* **18**, 71.

Evaluation de l'impact sur l'échantillonnage de l'ozone et du dioxyde de soufre des particules déposées dans les lignes d'échantillonnage

Roland THIELEKE / Gilles VALFRE

AIRFOBEP, Association de surveillance de la qualité de l'air de la région de l'étang de Berre
Route de la Vierge - 13500 MARTIGUES

Evaluer le risque sanitaire et environnemental lié à une dégradation sensible de la qualité de l'air depuis le début de l'ère industrielle, maîtriser la pollution atmosphérique par la mise en place de politiques de prévention portant sur les sources fixes (industries notamment) et mobiles, informer et sensibiliser la population, nécessitent en tout premier lieu de disposer de données précises et fiables sur la pollution atmosphérique.

En France cette mission de service public est confiée aux 30 associations de surveillance de la qualité de l'air, agréées par le Ministère de l'environnement et financées principalement par des fonds publics. Elles regroupent des industries, des collectivités territoriales, des services de l'état et des associations de défense de l'environnement.

Elles couvrent les principales unités urbaines, et le cas échéant des zones industrielles.

Parmi celles-ci, AIRFOBEP exerce son activité sur l'ouest du département des Bouches du Rhône, autour de l'étang de Berre, accueillant l'un des pôles industriels majeurs français (raffinage, pétrochimie, sidérurgie, activités portuaires et aéroportuaires...) et près de 400 000 habitants. C'est la toute première association créée en France, en 1972.

Les polluants qui font l'objet d'une surveillance sont principalement ceux dont les valeurs d'immission sont réglementées par des normes européennes ou des recommandations de l'O.M.S. : le dioxyde de soufre, les oxydes d'azote, l'ozone, les particules en suspension...

En aucun cas, la recherche scientifique ne constitue une des missions prioritaires des associations, dont les moyens techniques et humains sont généralement modestes et orientés principalement vers la mesure, la gestion des procédures d'alerte et d'information, la fourniture réglementaire de données, la gestion administrative de la structure...

Elle est notamment confiée au Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air (LCSQA), regroupant des services de l'INERIS, du LNE et de l'Ecole des mines de Douai.

Cependant, AIRFOBEP s'est dotée de quelques moyens pour répondre à certaines questions légitimes portant sur la qualité des mesures, qu'elle doit garantir.

Objet de l'étude :

Il consiste à évaluer l'impact sur l'échantillonnage de l'ozone et du dioxyde de soufre des particules déposées sur les parois internes des lignes d'échantillonnage. Le dioxyde de soufre dont la source est principalement industrielle et l'ozone, polluant secondaire issu de réactions photochimiques, constituent les deux préoccupations essentielles en matière de qualité de l'air dans la région de l'étang de Berre, du fait de la forte industrialisation et de l'ensoleillement méditerranéen.

Ces lignes d'échantillonnage, en Téflon, peuvent atteindre 6 mètres de longueur et peuvent rester en service plusieurs années dans des ambiances particulièrement agressives (rue "canyon", proximité d'industries, bord de mer...). Les dépôts de particules peuvent alors être visibles à l'oeil nu. Par ailleurs l'ozone est un gaz instable, susceptible de se détruire au contact des surfaces ou chimiquement avec des composés organiques. Le dioxyde de soufre est nettement moins réactif, hormis avec l'eau.

Dispositif expérimental :

Il est constitué d'un générateur de polluant (dioxyde de soufre ou ozone), d'un analyseur de polluant, des lignes L1 à L3, de deux électrovannes (E.V. 1 et E.V.2) et de deux téés (T 1 et T 2), comme le montre le schéma suivant :

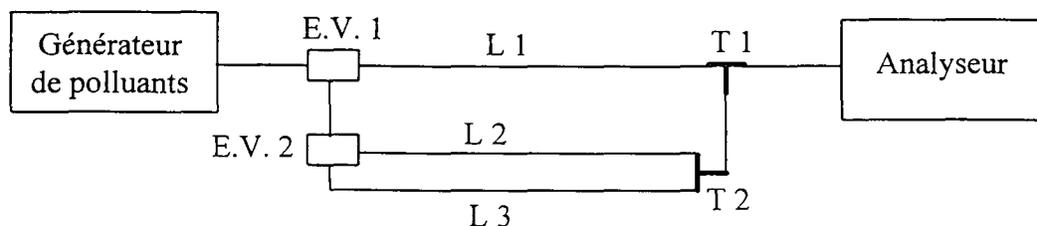


Fig. 1 : Dispositif expérimental

Il permet à l'échantillon de circuler alternativement dans les lignes L1 (ligne de référence permettant de vérifier la stabilité du générateur au cours de l'expérience) et dans les lignes L2 et L3 (lignes en test).

Ce montage présente les avantages suivants :

- utilisation d'un analyseur unique,
- tests en parallèle des deux lignes ou éléments (L 2 et L 3),
- automatisation des opérations (limitation des incertitudes expérimentales et longues durées d'expérimentation).

Un micro-ordinateur commande automatiquement les électrovannes et acquiert les mesures de l'analyseur.

Quelques résultats :

La ligne testée (L3) provient de la station de Marignane (Bouches du Rhône). Elle mesure 6 mètres et est restée en fonctionnement plus de deux ans. Les dépôts de particules sur ses parois internes sont visibles à l'oeil nu. La ligne L2 présente les mêmes caractéristiques que L3 mais elle est neuve.

Les résultats présentés (fig. 2) sont obtenus pour l'ozone.

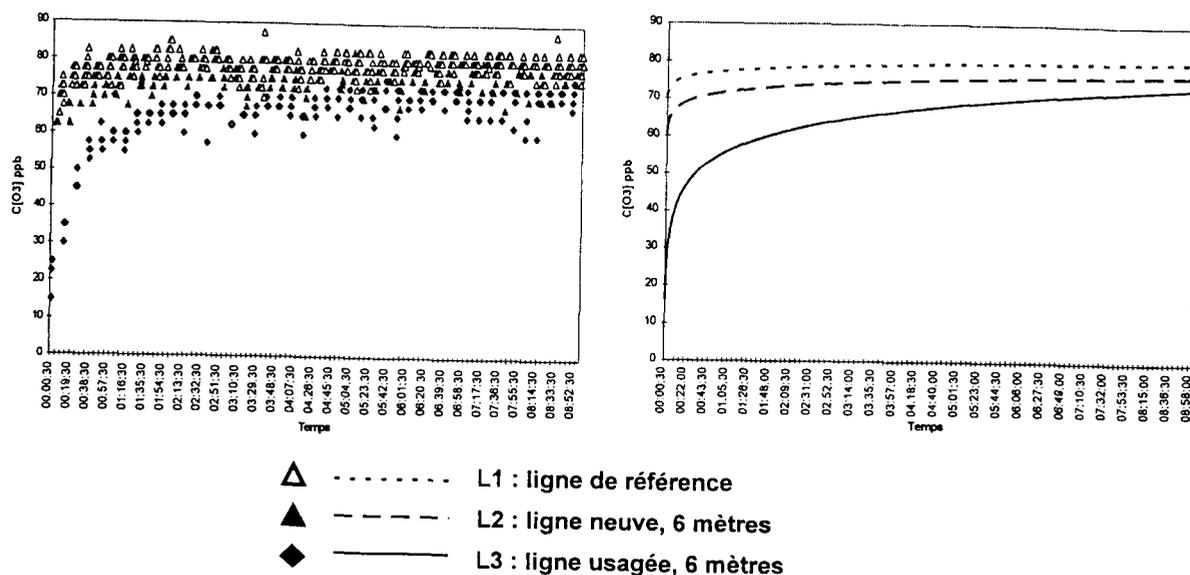


Fig. 2 : Comparaison de la ligne de la station de Marignane à une ligne neuve (données brutes et courbe de tendance logarithmique)

Le générateur est très stable après sa période de montée en puissance : la valeur moyenne sur les neuf heures de fonctionnement est de 79 ppb avec un écart type égal à 3 ppb. Les lignes neuve (L2) et usagée (L3) présentent un écart très important qui culmine à plus de 20 ppb en moyenne pendant la première demi-heure, celui-ci se réduit ensuite à 6 ppb.

Pendant les deux premières heures l'écart peut s'expliquer par un phénomène de saturation des lignes (le temps de saturation est plus important pour la ligne usagée que pour la ligne neuve) et par une destruction thermodynamique de l'ozone au contact de la surface de la ligne et des particules déposées. Puis la ligne étant saturée, l'écart final est le résultat de la seule destruction thermodynamique. D'autres expériences ont mis en évidence une désaturation rapide de la ligne (de l'ordre de l'heure).

Une analyse par chromatographie gazeuse et spectrométrie de masse a montré que la nature des particules déposées dans les lignes d'échantillonnage est essentiellement minérale ou organique mais de structure principalement carbonée (issues probablement de combustions incomplètes). Ceci permet d'exclure une

destruction par réaction chimique de l'ozone par les particules déposées dans la ligne.

Conclusions :

Cette étude exploratoire permet d'avancer quelques éléments de réponse et quelques hypothèses explicatives.

Pour l'ozone, nous montrons une altération importante de l'échantillon se traduisant par une perte d'ozone de quelques pour-cent pour une ligne peu usagée à plus d'une dizaine de pour-cent pour une ligne dans laquelle les dépôts sont importants. Elle est occasionnée par une destruction thermodynamique de l'échantillon au contact des particules déposées dans les lignes d'échantillonnage. Nous constatons également des phénomènes d'adsorption et de désorption, dépendant dans une certaine mesure de l'état de la ligne. Après la phase de saturation de la ligne, une nouvelle augmentation de la concentration d'ozone est enregistrée immédiatement.

Pour le dioxyde de soufre nous n'avons pas mis en évidence de phénomènes d'adsorption/désorption. L'impact sur l'échantillonnage du dioxyde de soufre des particules solides déposées dans les lignes est moins important que pour l'ozone (2% dans le cas le plus défavorable).

Le "nettoyage" à l'eau des lignes (pratique parfois observée) ne permet pas une amélioration sensible de la qualité de l'échantillonnage, même si celle-ci est mesurable.

Nous avons également évalué l'impact sur l'échantillonnage des filtres et porte-filtres généralement utilisés entre la ligne d'échantillonnage et l'analyseur. Ils engendrent une altération de l'échantillon (pour l'ozone environ 4% et pour le dioxyde de soufre environ 2%). L'état du filtre (empoussièrément) ne semble pas avoir d'impact sur l'échantillon.

La présence d'eau dans les lignes est à éviter car elle altère durablement (plusieurs heures) et considérablement l'échantillonnage de l'ozone et du dioxyde de soufre.

Cette étude a permis de définir de nouvelles opérations de maintenance pour franchir une étape supplémentaire vers une meilleure qualité des données. Elles consistent notamment à changer annuellement les lignes d'échantillonnage de l'ozone ce qui nécessite une évolution de l'ensemble du dispositif d'échantillonnage. Dans tous les cas l'utilisation de lignes les plus courtes possibles est préférable.

Par ailleurs, cette étude semble ouvrir la voie à de nouvelles investigations plus systématiques (par exemple avec des lignes provenant de sites à caractère urbain marqué) et plus rigoureuses, échappant alors au domaine d'action d'AIRFOBEP.

BIBLIOGRAPHIE

- 1 - G. VALFRE
" Etude du système d'échantillonnage et de la mesure de l'ozone troposphérique et proposition de solutions pour l'amélioration de sa surveillance"
Rapport interne AIRFOBEP, **1996**
- 2 - G. VALFRE
" Etude bibliographique des normes américaines sur la surveillance de la qualité de l'air"
Rapport interne AIRFOBEP, **1996**
- 3 - Technical Assistance Document for the Calibration of Ambient Ozone Monitors
EPA Publication, Departement E (MD-77), Research Triangle Park, NC 27711
- 4 - Proposed Recommended Practices for Atomic Absorption Spectrometry
ASTM Book of Standards, part 30, pp 1596-1608, **July 1973**
- 5 - Elfers, L.A.
"Field operating guide for automated air monitoring equipment"
U.S. NTIS. p 202, 249, **1971**
- 6 - Hughes, E.E.
"Development of standards reference material for air quality measurement"
ISA Transactions, 14:281-291, **1975**
- 7 - Althuller, A.D. and A.G. Wartburg
"The interaction of ozone with plastic and metallic materials in a dynamic flow system"
International Journal of Air and Water Pollution, 4:70-78, **1961**



**VERS UNE MAITRISE DE LA POLLUTION DE L'AIR
SUR LES LIGNES DU METRO PARISIEN**

S. MAZOUÉ (1) (2), D. GABAY (1), A. RENOUX (2), M. B. ATTOUI (2)

(1) RATP, Département des Projets, LAC A67, 54 quai de la Rapée, 75599 Paris Cedex 12

(2) LPATC, UFR Sciences, Université Paris XII, 61 av. du Général de Gaulle, 94010 Créteil

ABSTRACT

Since 1970, RATP has been concerned with comfort problems due to an important increase of temperature in the underground. An important ventilation program has been realized in the eighties. Then, new questions about the air quality appeared. So several actions have been developed by RATP: characterisation of odours, measurements, creation of an air quality monitoring network (SQUALES project)... But this stage must come with a research on technical solutions, in order to reduce the underground's pollution.

This paper gives the results of RATP's researches on technical solutions and it describes a new software, which is able to give the spread of gaseous products in the underground.

Introduction

Depuis une quinzaine d'années, la Régie Autonome des Transports Parisiens (RATP) se préoccupe des problèmes de qualité de l'air sur son réseau. Différentes actions de recherches spécifiques ont été entreprises, telles que la caractérisation des odeurs, la réalisation de mesures ponctuelles en divers points du réseau, ou encore, la création d'un réseau de surveillance en continu de la qualité de l'air (projet SQUALES : Surveillance de la Qualité de l'Air et de l'Environnement Souterrain).

Parallèlement à ces actions, la RATP a choisi d'explorer deux voies complémentaires :

- la prévision des phénomènes à partir de simulations, afin de mieux connaître la dispersion des polluants gazeux et particulaires en milieu souterrain, en régime stationnaire ou transitoire, lié aux mouvements des trains.
- la recherche de solutions techniques fiables, peu coûteuses, faciles à mettre en place et à maintenir en état, en vue d'améliorer la qualité de l'air dans l'enceinte du métro parisien.

I. Le réseau RATP

Le réseau RATP se compose de 15 lignes de métro et de 2 lignes de RER, sur lesquelles circulent chaque jour plus de 6 millions de voyageurs. Le volume d'air total contenu dans le réseau est de l'ordre de 8 millions de m^3 . Or, cet air est en permanence brassé par la circulation des trains, ou encore par la ventilation mécanique ou naturelle, qui assure le renouvellement d'air de la station.

1.1 - La ventilation :

Les ouvrages de ventilation sont situés en tunnel et fonctionnent selon deux modes distincts :

En été, l'air pénètre par les accès de la station et ressort par l'ouvrage de ventilation : c'est le mode d'extraction. En hiver, pour des raisons de confort bioclimatique, l'air suit le parcours inverse ; c'est le mode d'insufflation (figure 1) [1].

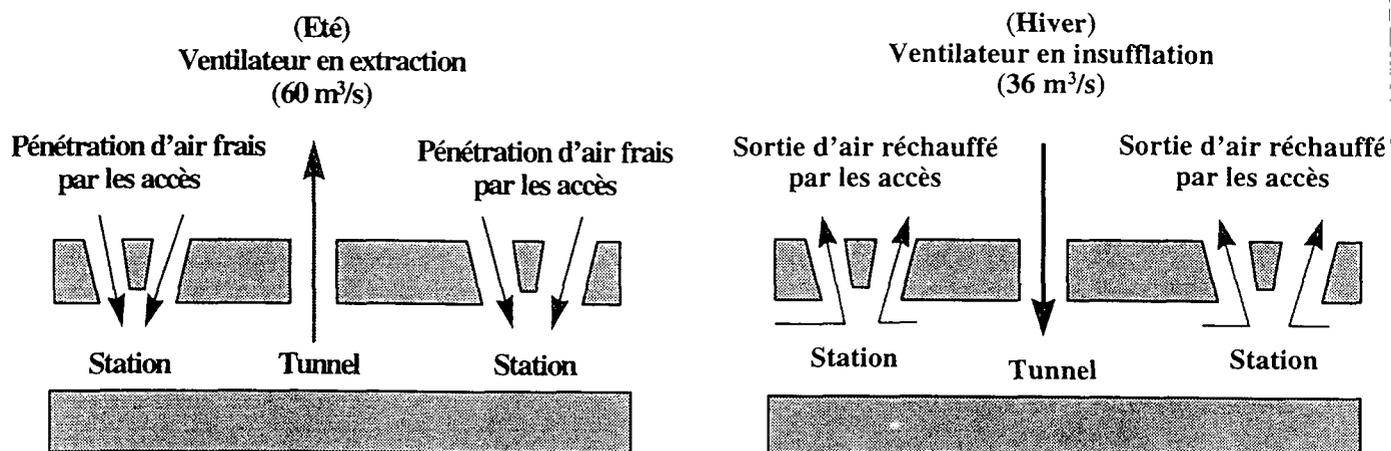


figure 1 : Principe de ventilation mécanique du métro.

1.2 - La qualité de l'air :

La qualité de l'air intérieur dépend donc à la fois du trafic ferroviaire et du trafic routier, qui représentent respectivement une source interne et externe de pollution.

1.2.1 - les aérosols :

Les aérosols représentent un problème fort complexe, lié tant à leurs origines diverses, qu'à leur mode de mise en circulation.

Le matériel roulant, les voyageurs, de même que les travaux d'entretien (génie civil, installation électromécanique, nettoyage), génèrent un grand nombre de particules, dont le diamètre varie entre 2 et 10 μm ; tandis que des fines particules (10^{-2} - 1 μm) sont apportées dans le milieu souterrain par l'air extérieur. Une étude granulométrique a permis de montrer que 60 % en masse des particules rencontrées dans le métro ont un diamètre inférieur ou égal à 3 μm [2]. Ces particules, capables de pénétrer dans le système alvéolaire, constituent un facteur de risque sanitaire important [3].

Signalons que le taux d'empoussièrement mesuré en milieu souterrain peut atteindre des valeurs très supérieures à celles de l'extérieur, de l'ordre de 100-150 $\mu g/m^3$, pour les stations les plus critiques.

1.2.2 - les polluants gazeux :

Cette pollution est principalement d'origine externe. En effet, l'air extérieur introduit sur le réseau divers polluants gazeux, résultant pour la majorité de la circulation routière. Le monoxyde de carbone (CO), gaz à forte dispersion, n'est présent qu'à l'état de traces dans l'enceinte du métro. Les profils journaliers des concentrations en oxydes d'azote (NO_x) sont, quant à eux, sensiblement plus faibles qu'à l'extérieur (entre 50 et 250 $\mu g/m^3$ de NO et entre 50 et 150 $\mu g/m^3$ de NO_2). Seul le dioxyde de

carbone (CO₂) provient d'une source interne, qui est la respiration humaine. Sur les quais, les concentrations varient de 410 à 1650 ppm, avec une moyenne de 770 ppm [4].

Bien que les valeurs observées ne soient pas alarmistes, la RATP réfléchit à la définition et à la faisabilité de la mise en place d'un système de traitement d'air sur son réseau à partir des ouvrages existants. Pour y parvenir, une recherche préalable passe par une meilleure connaissance des mouvements d'air se produisant dans l'enceinte du métro. C'est avec cet objectif que la RATP s'est dotée de l'outil « *fluidyn-RATP* ».

II. Le logiciel « *fluidyn-RATP* »

2.1 - Ses caractéristiques :

Depuis un an, la RATP développe, en collaboration avec la Société Transoft International, un logiciel permettant de prédire la dispersion des flux gazeux et/ou particulaires en milieu souterrain, à partir des équations de Navier-Stokes. Ce logiciel, baptisé, *fluidyn-RATP*, est un logiciel de mécanique des fluides tridimensionnel en volumes finis, adapté aux configurations du métro.

Contrairement aux schémas probabilistes (modèles gaussiens), *fluidyn-RATP* propose une simulation déterministe avec une meilleure analyse de la variation de chaque paramètre. La construction d'un maillage curviligne, qui épouse le terrain et les différents obstacles, permet de représenter de manière la plus précise possible l'écoulement près de la surface et dans la couche limite. En outre, le logiciel a un modèle de turbulence préconçu, qui dépend de divers paramètres, tels que les obstacles, les reliefs de surface, ou encore les variations de température.

Différents types de résultats peuvent ainsi être obtenus : température, pression, courbes d'isoconcentrations...

2.2 - Application à la station Franklin Roosevelt :

La station de métro Franklin Roosevelt a été choisie, car elle doit être prochainement instrumentée dans le cadre du projet SQUALES. Notons par ailleurs que cette station est peu enterrée et constitue donc un bon indicateur de l'impact de la pollution extérieure sur la qualité de l'air en milieu souterrain.

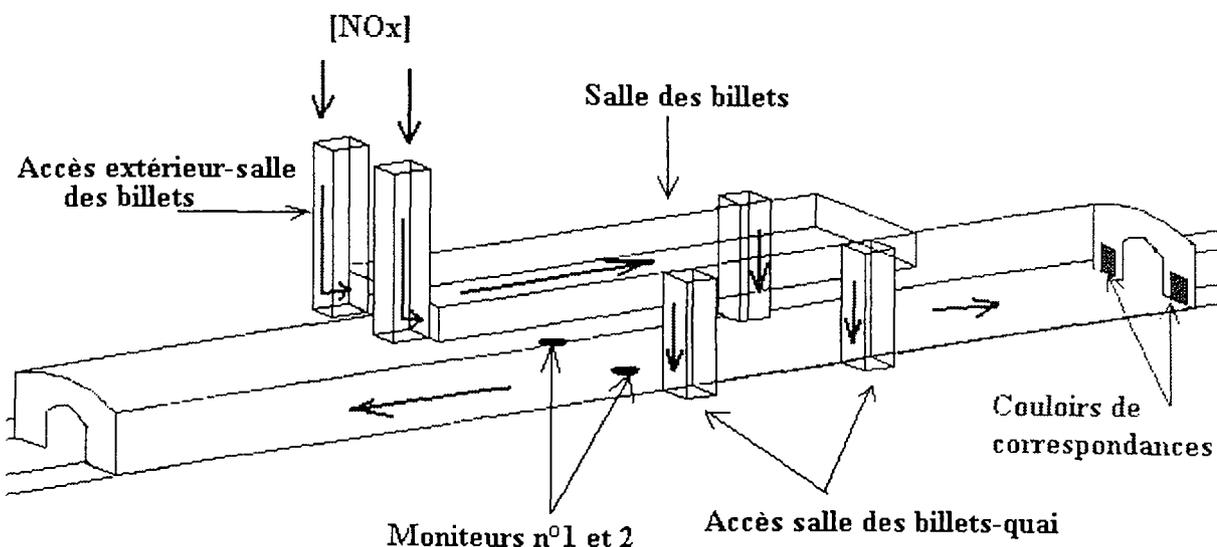


figure 2 : Représentation schématique de la station Franklin Roosevelt.

2.2.1 - modélisation et simulation numériques :

La station présente deux accès menant de la salle des billets vers l'extérieur (représentés par des puits verticaux), ainsi que trois accès entre la salle des billets et les quais. Les « moniteurs » marquent le positionnement des capteurs lors des mesures. Ceux-ci sont placés au milieu de chaque quai à 1.50 m du sol.

Notre étude est réalisée à partir du modèle de turbulence standard (k-ε) en régime stationnaire. On suppose que l'introduction de polluants se fait par les accès extérieurs, et on choisit comme données d'entrée les données réelles de mesures (valeurs fournies par le réseau Airparif). On impose comme conditions aux limites un débit d'extraction de $60 \text{ m}^3/\text{s}$.

2.2.2 - résultats numériques :

La figure 3 montre la propagation de la pollution par les oxydes d'azote dans un plan longitudinal horizontal (niveau quai), obtenue après 150 secondes de simulation. On constate (figures 3 et 4) que la pollution se propage progressivement des accès vers le tunnel. Au niveau des moniteurs 1 et 2, les concentrations sont alors respectivement de 143 et de $135 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

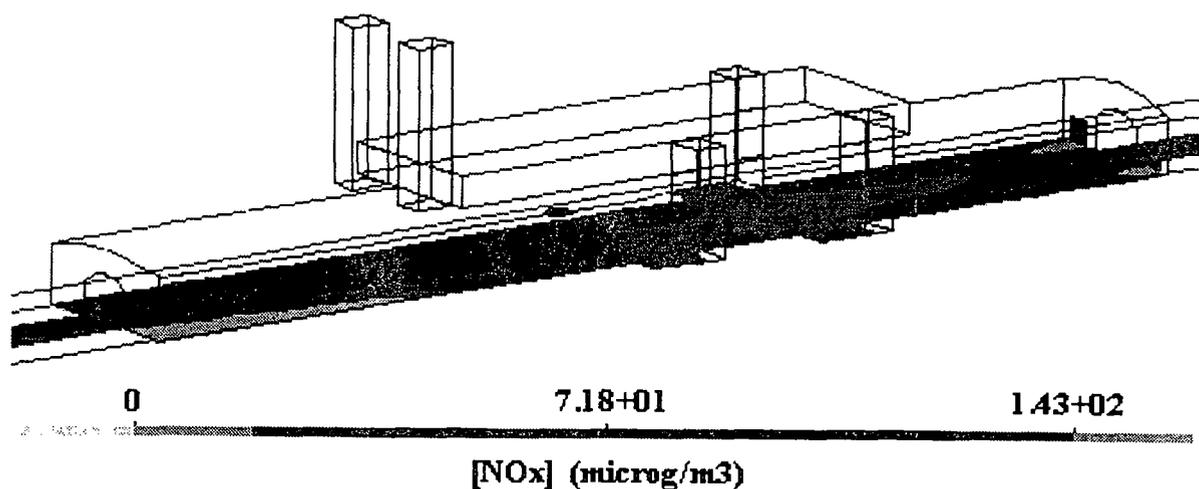


figure 3 : Concentrations en NO_x au niveau du quai, au temps $t = 150 \text{ s}$.

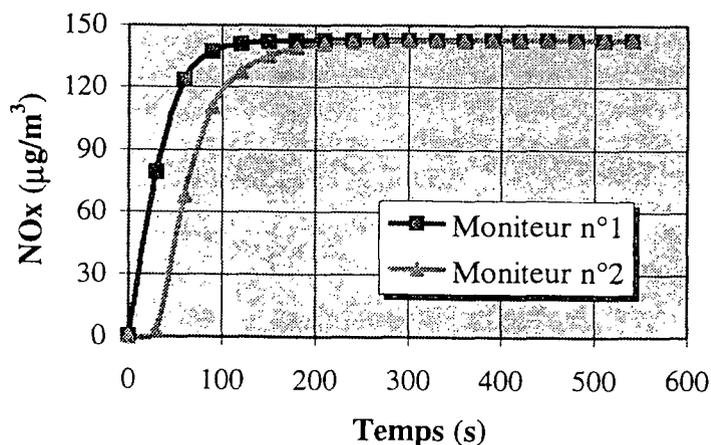


figure 4 : Evolution du taux de NO_x en fonction du temps.

La figure 4 représente l'évolution des concentrations de NO_x, en fonction du temps, au niveau des quais. Les oxydes d'azote, émis de manière continue, se dispersent rapidement et uniformément dans toute la station. On voit que la concentration maximale de 143 µg/m³, concentration équivalente à celle de l'extérieur, est atteinte près de 4 minutes après le début de l'émission. La présence d'un accès supplémentaire sur le quai 1 par rapport au quai 2 peut expliquer le décalage obtenu entre les deux courbes.

2.2.3 - résultats des mesures :

Une campagne de mesures a été réalisée sur dix jours (du 7 au 16 août 96) par le département Environnement et Sécurité de la RATP [5]. Les concentrations en oxydes d'azote ont été déterminées par chimiluminescence avec un appareil AC 31M (Environmental SA).

Ces mesures ont notamment permis de constater que les concentrations en NO_x, en milieu souterrain, suivent les profils extérieurs avec un léger retard, correspondant au temps de renouvellement de l'air de la station. Les niveaux moyens journaliers sont proches sur les dix journées de mesures (135-155 µg/m³).

Ces résultats, associés à nos calculs numériques, mettent donc en évidence la forte influence de la pollution extérieure sur les concentrations en oxydes d'azote dans l'enceinte du métro. De plus, ils confirment que la pollution de l'air peut se propager très rapidement sur de grandes distances en fonction des écoulements régnant dans la station.

Le cas des NO_x nous permet d'entrevoir les différentes applications du logiciel. En effet, *fluidyn*-RATP peut par exemple être un outil de prévision essentiel en cas d'accident grave, ou de pic de pollution. La simulation en temps réel permettra d'établir les procédures à suivre pour pallier cet état de crise.

D'autres tests de validation sont en cours de réalisation, notamment dans la station St Sulpice (ligne 4). Dans ce but, le logiciel est utilisé pour répondre aux questions relatives à la dispersion des particules en milieu souterrain.

III. Les solutions techniques

Notre préoccupation initiale est de rechercher toutes les techniques existantes et envisageables, en vue de réduire le taux d'empoussièrement sur le réseau métropolitain. Seulement, le problème est complexe, car cette réduction doit être observée, aussi bien aux entrées d'air extérieures, que dans les stations et tunnels, où les poussières proviennent de sources diverses. En outre, les solutions envisagées doivent être compatibles avec les ouvrages existants, et en particulier avec le dimensionnement des chambres de ventilation. Rappelons que le fonctionnement des ventilateurs induit des vitesses d'air pouvant atteindre 10 m/s dans l'ouvrage de ventilation. Aussi, il ne nous est pas possible de recourir aux systèmes de filtration classiques.

Parmi les systèmes de filtration examinés, les filtres électrostatiques présentent de nombreux avantages. Leur perte de charge est faible, ils sont faciles à mettre en place (encombrement peu important) et à maintenir en état (filtres lavables), et demeurent peu onéreux.

La filtration de l'air pollué pourrait alors s'effectuer en 6 étapes : [6][7] (figure 5)

- Passage au travers d'un préfiltre en tricot métallique, afin d'homogénéiser le flux et d'arrêter les grosses particules.
- Passage du flux d'air dans une zone d'ionisation par effet couronne, où les particules en suspension sont chargées électriquement.
- Attraction des aérosols chargés par des plaques sous tension.

- Passage à travers un capteur spécifique, en charbon actif par exemple.
- Contrôle et rééquilibrage ionique automatique.
- Expulsion et diffusion de l'air recyclé.

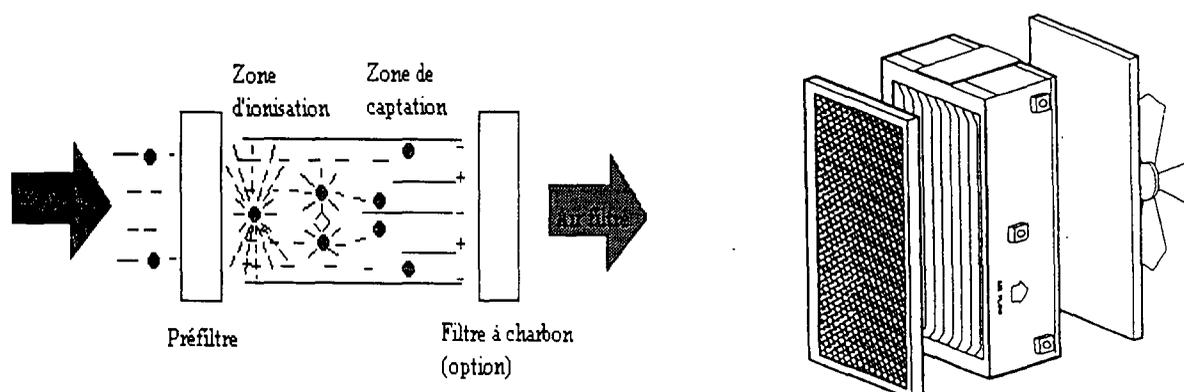


figure 5 : Principe de fonctionnement des filtres électrostatiques.

Compte tenu des vitesses d'écoulement rencontrées sur le réseau, la longueur des plaques du montage devra être suffisamment importante pour obtenir une efficacité de filtration satisfaisante. Des tests d'efficacité doivent prochainement être réalisés dans l'environnement du métro.

IV. Conclusion

Notre prédiction des phénomènes de dispersion de la pollution de l'air dans le métro parisien donne des résultats fort satisfaisants. Le logiciel *fluidyn-RATP* est en particulier un atout considérable pour la gestion de crise d'une pollution accidentelle. Une phase de validation, à partir des résultats des mesures in situ, a doré et déjà été amorcée. Cependant, de nouveaux efforts doivent être fournis, afin d'obtenir un outil de prévision en temps réel.

En ce qui concerne les poussières et les aérosols, la recherche passe par l'adaptation de solutions techniques connues à des situations plus complexes. Les premiers développements ont été réalisés sur les filtres électrostatiques, qui nous paraissent les plus adaptés.

Références bibliographiques

- [1] D. GABAY, 1989, Ventilation du métro et du RER de Paris, Revue générale de thermique.
- [2] R. BIGAULT, 1996, Validation d'un appareil de détection par mesure optique : le MIE modèle RAM-S pour la caractérisation des particules dans le métro parisien, Rapport du DESS SAGA, Paris XII.
- [3] ORS Ile de France - ERPURS, 1994, Impact de la pollution atmosphérique urbaine sur la santé en Ile de France, Publications ORS.
- [4] Laboratoire d'Hygiène de la Ville de Paris, 1995, Surveillance sanitaire du réseau ferré de la RATP dans le cadre de la convention RATP/Ville de Paris.
- [5] F. MILLARD, 1996, Définition d'un indice de qualité d'air pour le métropolitain.
- [6] K. WILLEKE, P.A. BARON, 1993, Aerosol Measurement : Principles, Techniques and Applications, Van Nostrand Reinhold.
- [7] A. MILLARD, 1992, La purification de l'air par précipitation électrostatique, son intérêt, ses limites, COFERA, 9^{èmes} Journées d'étude sur les aérosols.



ECOLE SUPERIEURE D'INGENIEURS
DE CHAMBERY

Université
de Savoie

CHAMBERY ANNIERS

CONFERENCE ASFERA PARIS

LABORATOIRE TEPE

ESIGEC - UNIVERSITE DE SAVOIE

Joseph SUAREZ, Valérie HOYAU, Marie-Paul CLAIN et Pierre MASCLET

RÉSUMÉ

Des échantillons d'aérosols atmosphériques ont été collectés, en site urbain dans la ville de Grenoble, pendant le mois de Juin 1996, dans le cadre du projet IMPAS (IMPact de la Pollution Atmosphérique sur la Santé humaine).

Les échantillons ont été extraits et les extraits analysés par GC/MS.

A l'issue de cette première campagne de prélèvements, nous observons une certaine diversité des origines des composés organiques présents dans l'aérosol urbain. L'aérosol urbain est, d'une part, un aérosol primaire composé essentiellement d'hydrocarbures tels que les alcanes, les alcènes et les aromatiques mono et polycycliques. Ces composés proviennent généralement de la combustion de l'essence ou du gasoil. Ce sont les principaux polluants en milieu urbain, d'autant que nombre d'entre eux sont toxiques ou cancérigènes.

A côté de cet aérosol primaire non oxygéné, on a mis en évidence un aérosol oxygéné, minoritaire, constitué d'autres composés primaires comme les acides monocarboxyliques (acide hexadécanoïque, traceur des émissions culinaires) et de composés secondaires tels que les acides dicarboxyliques, formés, dans l'atmosphère, par réaction des alcènes (acide dipropanoïque), avec les oxydants atmosphériques.

Des composés azotés ont aussi été mis en évidence: pyridine et nicotine.

Une second campagne doit avoir lieu en hiver 96-97 afin d'étudier la variabilité temporelle de ce type d'aérosol.

CARACTERISATION DES AEROSOLS DIESEL D'UN AUTOBUS R312

ETUDE COMPARATIVE DE CARBURANTS PLUS OU MOINS DESULFURES

C. LE GUERN⁽¹⁾, C. PARFAIT⁽²⁾, A. RENOUX⁽¹⁾, M. ATTOUT⁽¹⁾.

⁽¹⁾ Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université PARIS XII Créteil, Faculté des sciences, Avenue du Général de Gaulle, 94010 CRETEIL Cedex.

⁽²⁾ RATP - Département Environnement et Sécurité - D2E/EQA - 13, rue Jules Valles 75011 PARIS.

INTRODUCTION

Il y a quelques années encore, le moteur Diesel était considéré comme relativement propre. Aujourd'hui, les risques potentiels⁽¹⁾ liés aux aérosols nous amènent à connaître plus précisément leur nature chimique et leur granulométrie. C'est pourquoi nous développons cette étude qui consiste à caractériser les aérosols Diesel d'un autobus laboratoire équipé d'un système de prélèvement à volume constant (C.V.S) et de montrer l'influence de l'utilisation de carburants plus ou désulfurés.

1 - EXPERIMENTATION

Les prélèvements particuliers sont effectués sur un autobus laboratoire de type R312 (moteur RENAULT MIDS 06 20 45 D). Notre autobus est équipé d'un système de prélèvement à débit constant : une fraction proportionnelle au débit total des gaz d'échappement est prélevée, puis diluée avec de l'air extérieur dans un tunnel. Le débit de gaz circulant dans ce tunnel est de $12,36 \text{ m}^3 / \text{min}$.

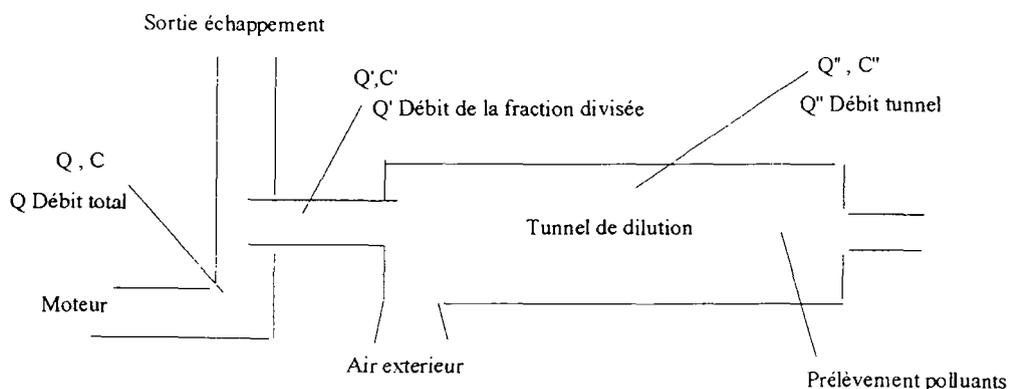


Fig.1: Représentation schématique du banc de dilution

Les rapports de division et de dilution, définis à partir des rapports des différents débits obtenus en fonction des régimes moteurs, sont déterminés respectivement par les rapports Q'/Q et Q''/Q' (Fig 1). Les rapports de division (R_{div}) et de dilution (R_{dil}) d'échappement en fonction du régime moteur sont de la forme :

$$R_{div} = -8.5 E^{-5} * (\text{Régime}) + 0.41$$

$$R_{dil} = -4.6 E^{-3} * (\text{Régime}) + 13.22$$

La concentration totale (C_E) d'un polluant émis à l'échappement est déterminée par la concentration cumulée lors de l'essai mesurée dans le tunnel (C_T), les rapports de division et de dilution et la concentration extérieure (C_0) du polluant. Elle est donnée par la relation :

$$C_E = R_{div} \times R_{dil} \left[C_T - C_0 \left(1 - \frac{1}{R_{dil}} \right) \right]$$

Nous effectuons l'échantillonnage dans le tunnel de dilution à une température inférieure à 50°C, afin de respecter la norme de prélèvement des aérosols. La caractérisation des émissions particulières porte d'une part sur l'analyse physique et chimique (quantitative et qualitative) des aérosols et d'autre part sur la mesure de la pollution visible. Nos différentes techniques de mesure sont les suivantes :

MÉTROLOGIE

Analyses gravimétriques : Par pesée.

Analyses granulométriques : Par spectromètre inertiel et diffusionnel d'aérosols SDI2000 ⁽²⁾.

Analyses qualitatives : Phase particulaire par GC/MS (chromatographie gazeuse couplée à un spectromètre de masse).

Mesure de la pollution visible (directement à l'échappement): Par un opacimètre BEN MULLER.

A partir de cela, nous pouvons caractériser les émissions particulières de notre autobus alimenté successivement par trois types de carburants. Ce véhicule circule sur un circuit routier selon un mode de conduite bien défini et surtout reproductible. Les carburants testés sont :

- un gazole commercial à 0.2 % de soufre
- un gazole TBTS à 0.05 % de soufre.
- un gazole Finlandais (FIN) contenant 0.01% de soufre.

Les caractéristiques de ce mode de conduite sont une vitesse moyenne de 19 km / h et une distance parcourue de 11.2 km, avec des arrêts de 5 secondes tous les 200 mètres.

La figure 2 nous montre le profil de la vitesse et du régime moteur de cet autobus pour un tour de circuit.

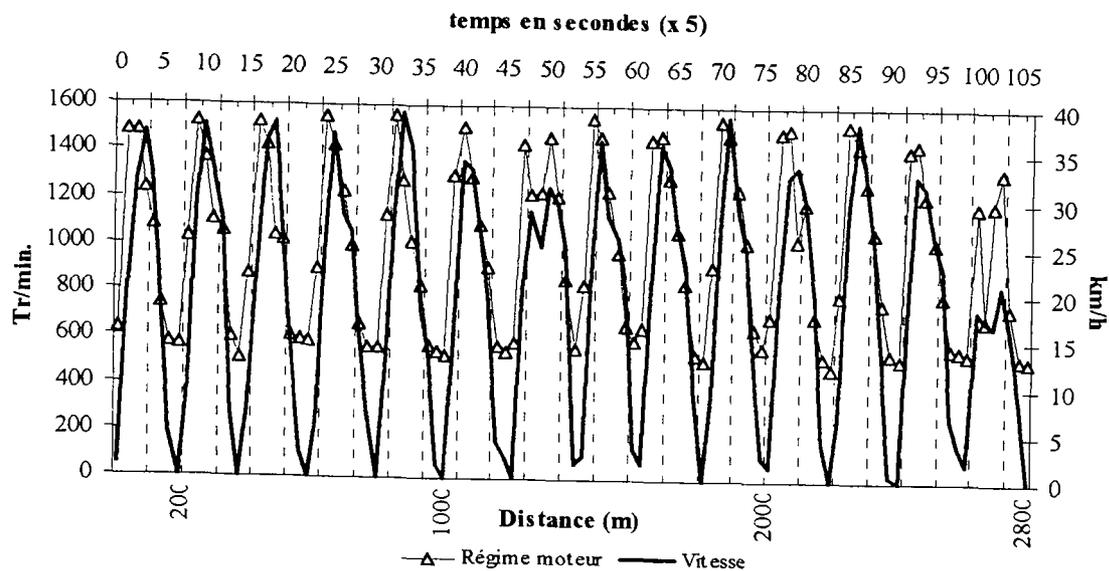


Fig.2 : Profil des vitesses et du régime moteur sur le cycle de conduite RATP.

2 - RESULTATS

Mesure de la pollution visible

La mesure de la pollution visible est réalisée par un opacimètre en sortie d'échappement.

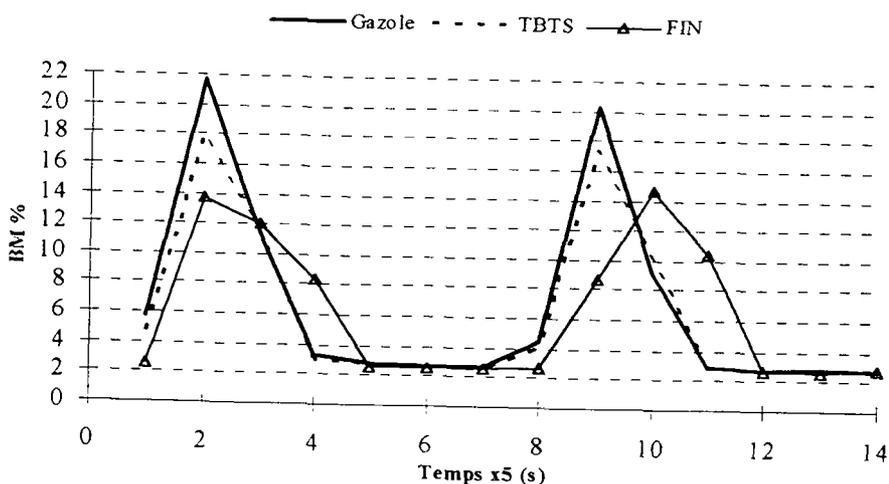
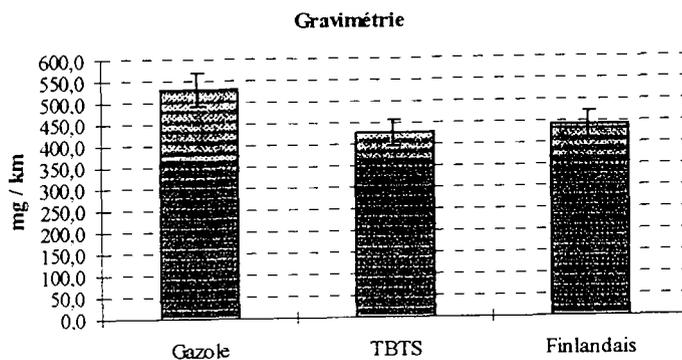


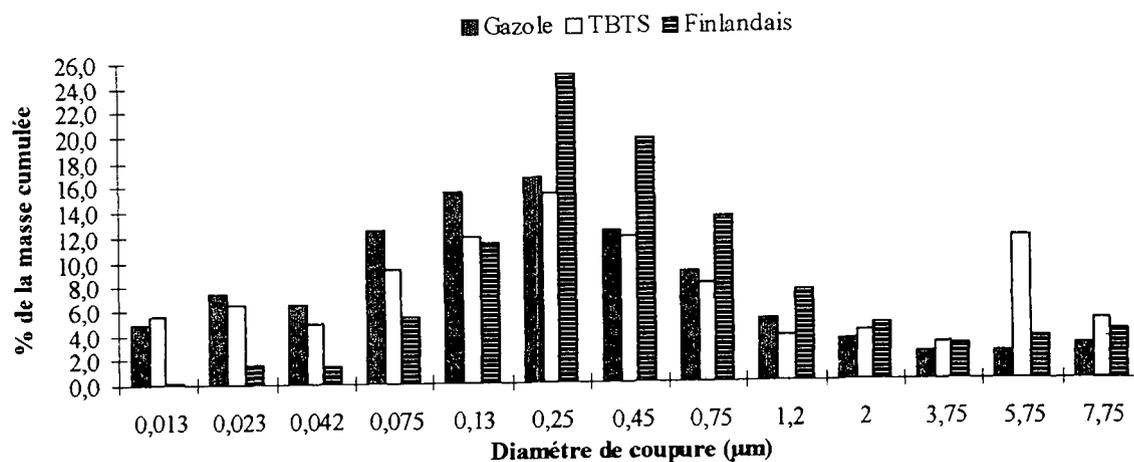
Fig.3 : Réponse de l'opacimètre Ben Muller lors des deux premières accélérations.

Analyses physico-chimiques des aérosols

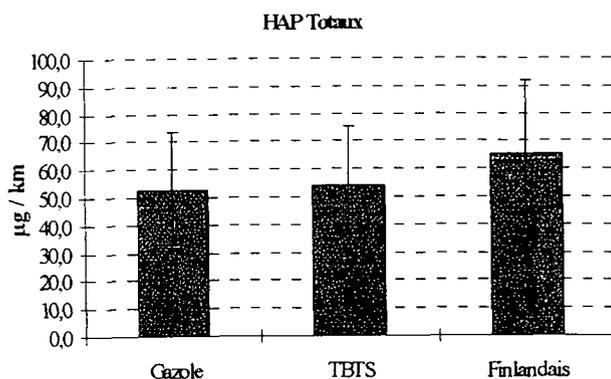
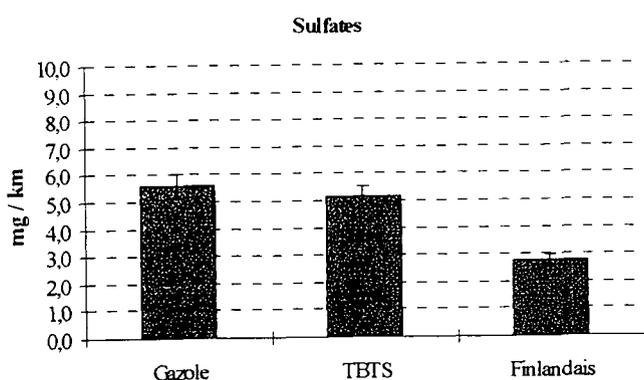
Mesure pondérale des particules :



Profil de la granulométrie des aérosols :



Caractérisation chimique des aérosols



3 - CONCLUSION

Nos résultats montrent que l'emploi de carburant plus ou moins désulfuré par rapport au gazole qui est notre référence:

- diminue les émissions de fumées, de l'ordre de 7 à 20% selon le carburant,
- diminue les émissions particulaires de l'ordre de 15 %,
- n'a pas d'incidence sur les émissions de HAP particulaires.

La composition des HAP est identique quelque soit le carburant. Ils sont constitués principalement de pyrène, de fluoranthène, de phénanthrène et d'anthracène.

L'emploi du carburant Finlandais diminue considérablement les émissions de sulfates particulaires (de l'ordre de 40%), alors que ce n'est pas le cas avec le TBTS.

L'analyse granulométrique massique montre que la fraction particulaire est constituée de très fines particules (de dimensions inférieures à 0.1 μm) et de particules situées autour de 0.2 μm . On observe également une fraction non négligeable supérieure à 1 μm .

En fait, le spectre granulométrique est sensiblement identique d'un carburant à un autre. Toutefois, par rapport au gazole de référence, un enrichissement des particules de dimensions supérieures à 1 μm est observé avec le TBTS au détriment des très fines particules. On observe également un léger déplacement de la granulométrie des aérosols avec le carburant finlandais des particules très fines vers des particules situées autour de 0.25 à 0.75 μm .

Remerciements

Ce travail s'inscrit dans le cadre d'une convention "*Bus propre*" entre la RATP et le Conseil Régional d'Ile de France.

Bibliographie

- (1) M.Chevrier (1987) - Toxicité comparée des gaz d'échappement Diesel et essence - Congrès S.I.A. "Moteurs Diesel pour véhicules automobiles et utilitaires" - Lyon 13-14 mai - pp.36-42
- (2) M.Diouri (1987) - Contribution à l'étude du comportement aérodynamique des aérosols - mise au point d'un spectromètre diffusionnel et inertiel (SDI2000) - Rapport CEA-R5412.



LABORATOIRE TEPE

ESIGEC - UNIVERSITE DE SAVOIE

Valérie HOYAU, Joseph SUAREZ, Marie-Paul CLAIN et Pierre MASCLET

RESUME

Dans le cadre du programme TAGGSI (Transfer of Aerosol and Gases to Greenland Snow and Ice) des campagnes de prélèvements ont été menées à Summit, au Groenland central, en 1993 et 1995. Des aérosols et de la neige superficielle ont été collectés. L'extraction de la matière organique dans les aérosols atmosphériques et dans la phase particulaire de la neige a permis l'identification de nombreux composés organiques.

Deux méthodes d'analyse ont été utilisées conjointement: la CPG/MS et la HPLC/Fluorescence. Par CPG/MS, on a pu mettre en évidence la prépondérance de composés ayant subi des dégradations chimiques et photochimiques au cours du transport à mésoéchelle. L'aérosol polaire apparaît comme un aérosol secondaire. Sa composition reflète, qu'après l'émission, la matière organique particulaire subit des transformations physico-chimiques pendant son transport atmosphérique, sous l'effet des oxydants de l'atmosphère. L'aérosol est constitué de composés ayant atteint un stade ultime d'oxydation. Ainsi, la présence d'acides et de certains esters met en évidence l'importance de ces réactions atmosphériques (notamment attaques des radicaux hydroxyles et oxydation). Ces familles chimiques, mais également les alcools, les éthers et quelques composés azotés, qui sont également très oxydés, apparaissent comme de bons traceurs de la réactivité atmosphérique de l'aérosol.

Par HPLC il a été possible d'établir un suivi des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP). Par comparaison des résultats relatifs à des échantillons d'aérosols, de neige et de glace on a mis en évidence les zones sources (Eurasie, Amérique du nord), vers le site récepteur que constitue la calotte glaciaire. Les HAP, composante minoritaire de la matière organique particulaire, peuvent être considérés comme d'excellents traceurs géochimiques des combustions d'origine anthropiques et naturelles.

A NEW ELECTRICAL ROUTE TOWARDS MICRO-REACTOR DROPLETS FOR HOMOGENEOUS POWDERS PRODUCTION

BORRA J-P*, CAMELOT D., MARIJNISSEN J.C. M., SCARLETT B.

Particle Technology Group, Department of Chemical Technology & Material Science, Delft University of Technology, Julianalaan 136, 2628 BL, Delft, The Netherlands.

*Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas du CNRS, Ecole Supérieure d'Electricité Plateau du moulon, 91192 Gif-sur-Yvette, France

ABSTRACT: The paper is devoted to the validation of basic principles of the process. First, the production of charged droplets with defined mass of solute per unit charge is achieved by electrosprays of two liquids in opposite polarities. Then, electrostatic forces lead to neutral droplets with defined relative amounts of reactants. Due to the homogeneous mixing of liquid droplets, the same chemical reaction is induced in separate droplets considered as homogeneous micro-reactors.

The final dried powder is shown to exhibit well defined properties with reference to macroscopic parameters. The particle composition arises from the composition of the initial solutions to be sprayed. The size distribution varies with the liquids properties (i.e. mainly with the solvent) and liquid flowrates. The morphology (surface to volume ratio, hollow-dense) depends on the reactivity of mixed compounds from droplets of opposite polarities, but also on the evaporation and heating/cooling rates. Before any optimisation, the massic yield of the process varies from 10 to 30 % for different experimental conditions and can be used to achieve monodisperse powder production.

1 INTRODUCTION

Interest of powders is mainly related to the way they are made, because it defines the quality of the powder in terms of size distribution, chemical and structural homogeneity [1]. Aerosol routes are often used for their low energy cost and especially droplet-to-particle routes. One promising way of monodisperse droplets production is the breaking-up of a liquid jet by Electro-HydroDynamic Atomisation of liquids (EHDA). Then, these droplets lead to particles by evaporation of the solvent. Due to the electrical charge of the droplets/particles so-produced, the EHDA was only used for thin films deposition on earthed electrodes (printers, coating [2]).

Charged powders are hardly suitable for industrial purposes because of losses encountered during transport in tubes and because of surface reactivity. Thus, different means have been tried to neutralise the sprays produced by EHDA with either unipolar gaseous ions produced by electrical discharge in reverse polarity [3] or with bipolar gaseous ions produced by radioactive material[4]. Nevertheless, the low massic yield of droplet neutralisation (<7 %w of solutes[4]) arises from the bipolar charge distribution, and limits the applicability of EHDA.

Moreover, it was, up to now, impossible to spray chemically reactive solutions if viscous or even solid products were formed in the solution by crystallisation, precipitation, polymerisation, leading to clogging of spraying nozzles. Thus, the actual way to induce chemical reactions in suspensions of droplets is based on heterogeneous reactions so as to bring into the liquid phase the needed amount of gaseous reactants. Such reactions with interfacial steps are most often kinetically limited by the dynamic of gas diffusion, adsorption on the surface, dissolution and diffusion in the liquid.

To fulfil the needs for neutralising charged droplets (so as to get a free aerosol) and for inducing the same chemical reaction in separate droplets considered as micro-reactors, without any more limiting steps of reactants mixing, we present a new electrical principle for homogeneous powder production. EHDA of liquids (containing the reactants to be mixed) initially deliver two sprays of charged droplets with defined composition and reverse polarities.

II EXPERIMENTAL SET-UP (Figure 1)

Reactor specifications: the positive and negative sprays are created at the top of a mixing chamber, in which droplet neutralisation is achieved by electrostatic forces acting on droplets of reverse polarities. An extra mixing force arises from the gas flow in the mixing chamber.

Electro-spray characteristics: the high voltage electrodes are nozzles, which contain the liquid to be sprayed by EHDA ($\pm 10 < V_{\text{nozzle}} < \pm 15\text{kV}$). Due to the acceleration of charges at the liquid surface, the liquid takes a conical shape which ends in a filament of liquid (also referred as the jet). This jet breaks up in small droplets in the micron range with narrow size, charge and velocity distributions[3].

The earthed electrode is a ring located a few centimetres away from the nozzle. First, it creates the high electric field required for the EHDA process, and then it constitutes a shielding electrode which is needed to reduce the space charge influence on the electric field in the production volume (i.e. around the jet). Thus, it enables mixing and accumulation of space charges a few centimetres away from the spray heads without any destabilisation of the sprays.

Liquid flowrate is regulated by syringe pumps feeding the nozzles from 1 to 50 ml/h depending on liquid properties (conductivity, surface tension, density, viscosity). The liquid flowrate and the voltage determine the droplet composition per unit charge (0,1 to 10 mol/C).

Gas conditioning system: on the one hand, gas flow is required to continuously extract from the reactor the neutral droplets so-produced. On the other hand, the partial pressure of solvent in the reactor is controlled by the ratio of flowrates of saturated air produced with the saturation device (bubblers filled with solvent) and of "clean" air (see figure 1).

Drying/heating step : in our case, it consists of a classical oven tube in quartz where droplets/particles blown away from the production and neutralisation reactor by the gas flow are then heated to different temperatures (100 to 800°C). The residence time in the oven has been kept constant to ten seconds in this set of experiments.

Collection step : the final particles are collected onto an inorganic alumina membrane filter , with a pore size of 0,22 μm , because it could withstand the high temperature range.

Analysis step : the aerosol concentration was monitored either just at the exit of the reactor or after the oven tube with a Condensation Nuclei Counter (CNC model 3022 from TSI™). The shape as well as the size distribution of the collected particles were determined by SEM. The internal structure of the particles was observed by TEM and the chemical composition was

defined by local Energy Dispersive X-Ray measurements and mapping.

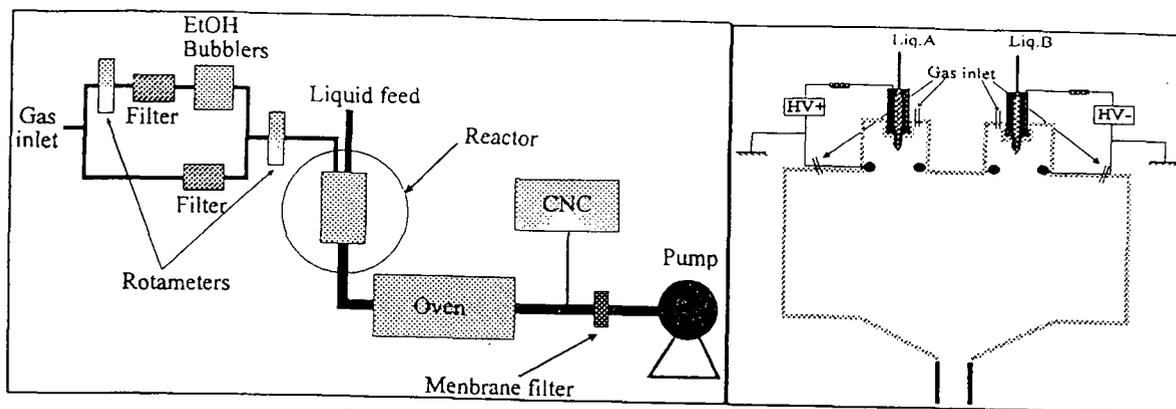


Figure 1: Synoptic view of the experimental set-up and reactor for production (EtOH=Ethanol).

III RESULTS AND DISCUSSION

III.1 Validation of the basic principles

Neutralisation: from figure 2, can be seen that the numeric concentration of particles at the exit of the reactor is increased by almost two orders of magnitude when droplets of both polarities are sprayed simultaneously compared to when only one spray is producing charged droplets. Moreover, the numeric concentration is not altered with more than 10% when the connection tube from the reactor to the CNC is earthed. Thus, less than 10% of the number of particles coming from the mixing chamber are charged, which confirms the efficiency of the neutralisation. Finally, before any improvement of the mixing and of the flow patterns in the reactor, the massic yield of neutralisation varies from 10 to 30%w for different conditions.

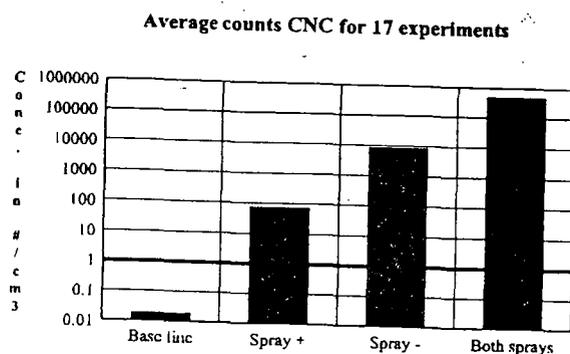


Figure 2: Average number concentration of particles per cubic centimetre at the exit of the mixing chamber for different conditions of production.

Homogeneous liquid droplets mixing: by spraying different alcoholic solutions of metal organic compounds in positive and negative polarity (Tin tetraacetate and Titanium tetrabutylate) in saturated air with solvent, we have observed with EDX mapping analysis of final dried particles constituting the powder, that they all contain both compounds in each particle. This confirms the efficiency of homogenisation of the droplet resulting from neutralisation of two liquid droplets of opposite polarity with different composition.

Reactivity at the micro-reactor scale: we mixed positive metal organic dissolved in alcoholic solvent with negative ethanol-water droplets to induce sol-gel reactions i.e. the formation of a metal hydroxide, leading to oxides by inorganic polymerisation and calcination [1]. Chemical analysis still have to be performed. However, as can be seen from figure 3, when neutralising the metal organic droplets by only ethanol droplets, i.e. by preventing from reaction with water, the shrivelled morphology has always been observed (fig. 3a), whereas by inducing the reaction with water-ethanol droplets, it has never been observed (fig 3b). This indicates that for reactive mixing, the crust properties were different than for non reactive mixing. The reproducibility of this observation confirms that the reaction has taken place in the case of reactants mixing (3b) leading to different liquid products and thus to different crust properties.

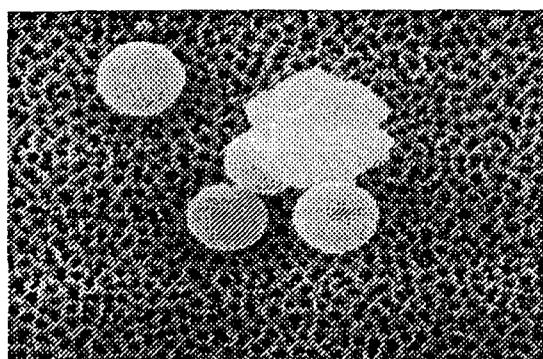


Figure 3a: Particle morphology for non reactive mixing.

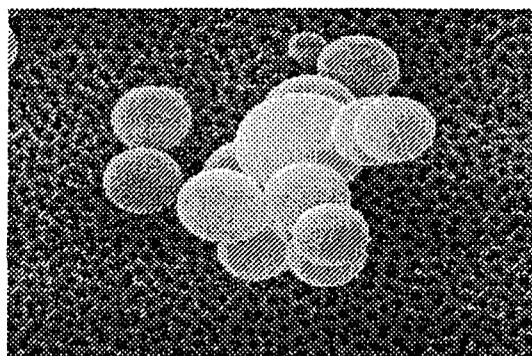


Figure 3b: Particle morphology for reactive mixing

III.2 Variation of the droplet/particles properties versus the regulation parameters

Particles size: at first, by varying one *liquid flow-rate* from 2,5 to 10 ml/h with saturated air, we succeeded to produce different size distributions, characterised by a main mode diameter increasing with the square root of the liquid flow rate from 2,4 to 5 μm (see figure 4). This remark is important, because it confirms that the size of the dried residu is directly related to the initial droplet size, which is known to vary with the square root of the liquid flow-rate [5].

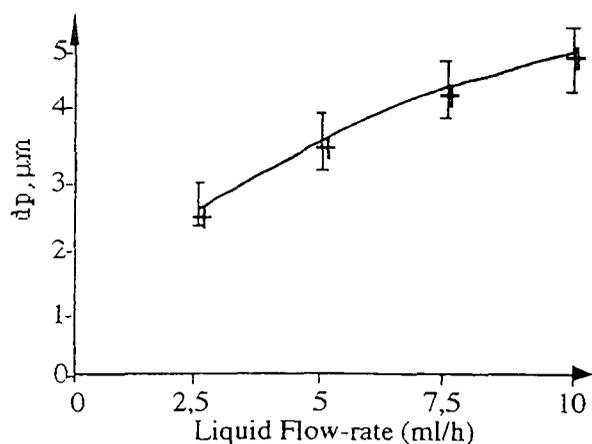


Figure 4: Variation of the main mode diameter versus the liquid flow-rate.

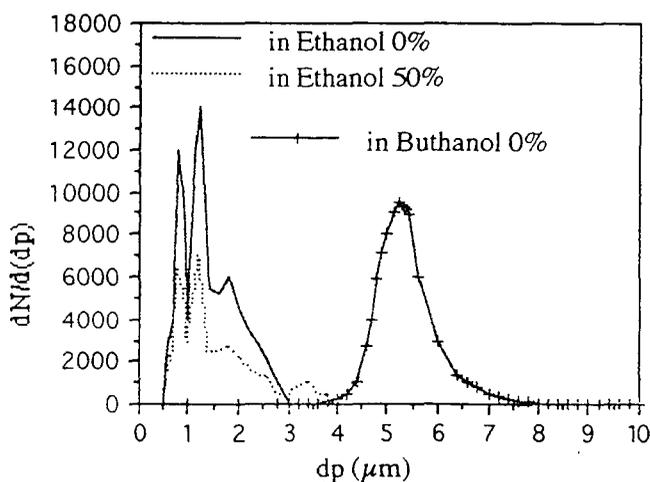


Figure 5: Number size distribution for different pressure of ethanol in the air flow and for butanol.

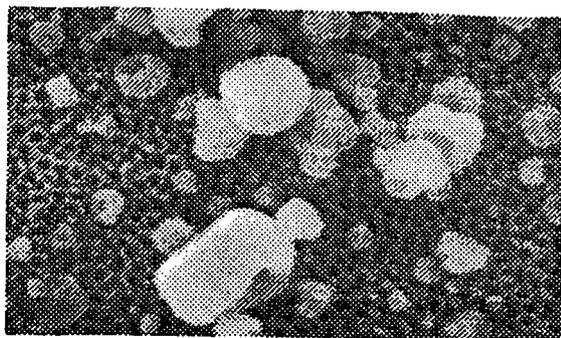
By decreasing the *solute concentration*, it has been observed that the mean particle size can be reduced from a few micrometers down to a few tens of nanometres.

By working *with different solvents*, one can first note that the bigger diameter of the size distributions, which corresponds to the particle resulting from the neutralisation of the main mode of droplets produced in cone jet mode of atomisation ($d_p = 3,7 \mu\text{m}$ in ethanol and $5,33 \mu\text{m}$ in butanol), depends on the solvent properties for similar concentration of titanium tetrabutylate (0,022 mol/l). It is probably caused by the modification of the solvent properties (mainly a conductivity variation), which leads to different initial drop size to be neutralised.

Secondly, the size distribution of the powder is multi-modal with a volatile solvent like ethanol whereas a monodisperse distribution (standard deviation = 1,15) is obtained with less volatile solvent like butanol. Nevertheless, by varying the *partial pressure of solvent in the pushing air* from 0% to 50% of the ethanol saturation vapour pressure, the relative population of smaller modes (created by Rayleigh explosion due to evaporation of charged drops before neutralisation) is reduced while the bigger mode (resulting from the direct neutralisation of the main drops before any explosion) is increased (see figure 5). Thus, it is thought that, added to the classical bi-modal size distribution reflecting the production of main mode by regular break-up of the jet (10-20 μm) and the random satellites formation in between two drops (0,5-3 μm) [3], an extra intermediate multiple-mode is formed by the Rayleigh break-up. Actually, the break-up of charged droplets is known to occur by increasing electrical surface stress as the droplet size decreases by evaporation. It is shown that this alteration of the size distribution can be controlled and cancelled by preventing from evaporation i.e. by saturating the air with solvent (see figures 5, 6a and 6b).

Morphology: depending on the development of a reaction in the drop, the liquid species can be modified to such an extent that the resulting crust presents different thermic properties which modifies the final powder morphology (see figures 3a, 3b).

From figure 6, one can see that, depending on partial vapour pressure of solvent in the reactor (before the drying step), the final particle morphology can be varied from "multi-cup" shape in air free of solvent to nearly spherical shape in air with 2% v/v ethanol (i.e. $p(\text{Et-OH}) = 13,2 \text{ mm Hg}$). This effect is already known and can be attributed to the modification of the evaporation rate, because it determines a critical time constants ratio (precipitation/diffusion in the liquid). The "multi-cup" shape is obtained when a crust is formed in the initial step of evaporation leading to surface precipitation with an empty volume in the centre of a hollow particle. The nearly spherical particles are obtained when the evaporation rate is reduced because it prevents from the crust formation and leads to volume precipitation and to a more dense particle which is then dried without major modification of the morphology.



1 μm

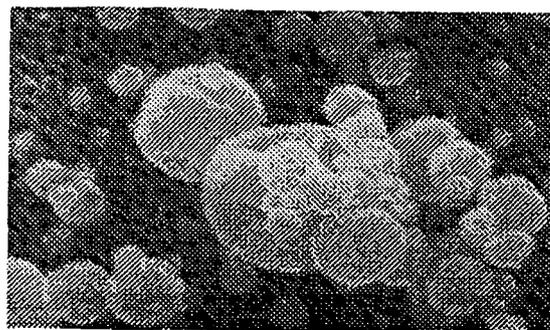


Fig. 6a: Particle morphology in air

Fig. 6b: Particle morphology in partially saturated air

IV CONCLUSIONS

For the first time, this bipolar mixing principle enables the homogeneous mixing of two droplets with a preliminary massic yield i.e. before any improvement of the mixing and of the flow patterns in the reactor, varying from 10 to 30%w for different conditions. It can thus be used to achieve the micro-reactors concept to produce different types of powders with defined size, shape, structure and chemical composition [6]. Moreover, this process has been shown to be flexible with reference to macroscopic experimental parameters.

The final composition of droplets results from the respective amounts of material brought by the initial droplets of opposite polarities which have been mixed.

It has been found that the size of particles so-produced remains closely similar for a given set of production conditions. The size distribution is controlled by the solvent properties, the liquid flowrate and the solution composition from a few tens of nanometres to micrometres.

It has been proved to be necessary to regulate the evaporation rate of charged droplets to get liquid droplets at the moment of neutralisation, so that the mixing in the droplet is complete and that the resulting neutral micro-reactor is homogeneous. This is extremely important when a chemical reaction has to arise from mixing of reactants which have thus to be in the same liquid phase. The evaporation rate is also a key parameter for Rayleigh explosion probability, and consequently for the size distribution.

The final powder structure (homogeneous /multi-layers, specific surface area or surface to volume ratio, hollow/dense, crystalline /amorphous) mainly depends on the reactivity of mixed compounds from droplets of opposite polarities (i.e. on the liquid product properties from eventual chemical reactions) and also on the evaporation and heating/cooling rates.

REFERENCES

- [1] Segal D.L. (1989), *Chemical Synthesis of Advanced Ceramic Material*, Cambridge University Press, England.
- [2] Cross J.A. (1987), *Electrostatics: Principles, problems and applications*, IOP Publishing Limited, Bristol, England.
- [3] Meesters G. (1992), *Mechanism of droplets formation*, Ph-D Thesis from Delft University.
- [4] Chen D-R. et al. (1995), *Journal of Aerosol Science*, Vol. 26, N°6, pp 963-977.
- [5] Ganan-Calvo et al. (1994), *The emitted Current and Droplet Size Laws in Steady Cone Jet Electrosprays*, Fourth Int. Aerosol Conf., pp. 44-45.
- [6] Borra J-P, Camelot D, Hartman R, Marijnissen J, Scarlett B, Dutsch Patent N°1003442 June 27, 1996.

ROTATION D'UNE PARTICULE SPHERIQUE PIEGEE DANS UN FAISCEAU LASER

H. Polaert, G. Gréhan, G. Gouesbet

Laboratoire d'Energétique des Systèmes et Procédés,
URA CNRS 230, CORIA,
INSA de Rouen, BP 08,
76 130 Mont-Saint-Aignan, FRANCE
Tel. (33) 35 52 83 83, Fax (33) 35 52 83 90

Résumé: L'étude de la rotation de particules multicouches dans un faisceau laser gaussien est développée dans le cadre de l'électromagnétisme

Abstract: The study of rotation of multilayered particles trapped in a Gaussian laser beam is developed in the framework of electromagnetism

1 INTRODUCTION

Il est possible de piéger une particule sub ou super micronique dans un faisceau laser focalisé [1]. Cet outil est utilisé en physique des aérosols, en combustion (évaporation de goutte), en diffusion de la lumière. Plus récemment, des applications en biologie apparaissent qui permettent de mesurer des quantités microscopiques [2][3][4][5]. Cet outil qui permet de manipuler des particules ou de mesurer des forces de 0 à 200 pN fait l'objet de diverses études: étude paramétrique[6], calibration[7], miniaturisation de la source[8] pour ne citer que quelques exemples.

Ces études ne prennent pas en compte la rotation de la particule. Cependant, le faisceau peut imposer à la particule de tourner autour de son centre lorsqu'elle est piégée dans le faisceau. Historiquement, la première étude sur la rotation dérivée de l'électromagnétisme débute avec Marston et Crichton en 1984[9]. La rotation est causée par une onde plane polarisée circulairement. Il est déjà mentionné qu'une telle rotation peut avoir lieu avec une polarisation linéaire si la particule reçoit une illumination disymétrique: faisceau gaussien et particule hors axe par exemple. Dans tous les cas, la particule doit être absorbante et il est établi que, pour une onde plane (Théorie de Lorenz-Mie) polarisée circulairement, la composante de la rotation le long de la direction de propagation est proportionnelle à l'énergie absorbée.

Plus tard, Chang et Lee[10], s'intéressent à la rotation en temps qu'application de la lévitation optique. Ils traitent le problème pour un faisceau laser gaussien fortement focalisé. Les expressions théoriques pour les trois composantes cartésiennes de la rotation sont calculées en utilisant une description par point source complexe du faisceau.

Barton, Alexander et Schaub[11] reprendront ces calculs avec leur formalisme pour une forme arbitraire du faisceau. Ils mettront en évidence les phénomènes de résonances déjà bien connus pour l'étude des forces de pression de radiation.

Ici, on obtient les relations pour un faisceau arbitraire avec le formalisme de la GLMT (Théorie de Lorenz-Mie Généralisée)[12]. La simulation proposée porte sur la rotation de sphères homogènes et multicouches (ou stratifiées): ces dernières présentent un indice variable suivant leur rayon. On se rapproche ainsi des cellules biologiques (avec "coeur" et/ou "manteau") ou des gouttelettes en cours d'évaporation (gradient d'indice dû à la température).

Le passage des sphères homogènes à des sphères stratifiées est indépendant de l'éclairage reçu par la particule lorsqu'on utilise la GLMT. Le calcul des coefficients de diffusion est distinct de celui de la forme du faisceau. De récents progrès ont permis d'utiliser un code couvrant de larges domaines en paramètre de taille et nombre de couches[13].

2 CALCUL ANALYTIQUE

Pour ce problème, on reprend la configuration générale de la GLMT [12]: une onde laser se propage dans la direction w et est polarisée linéairement suivant u . Le système de coordonnées principales (Op, x, y, z) est attaché à la particule et l'axe z est parallèle à la direction de propagation du faisceau. Les coordonnées du

centre du faisceau sont (x_0, y_0, z_0) . La sphère a un indice complexe de réfraction $m = n - ik$ avec $k \neq 0$: elle est absorbante.

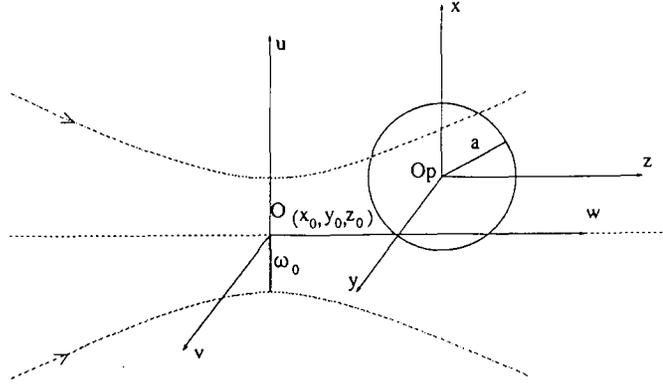


Figure 1: Géométrie du problème

Le couple de la sphère autour de son centre peut être calculé à partir du taux moyen de transport du moment angulaire du champ à travers une surface S entourant la particule [14][9]. Pour l'état stationnaire considéré ici, on prend une surface concentrique S de rayon r englobant la sphère de rayon a ($r > a$).

La loi de conservation du moment angulaire prend alors la forme suivante[14]:

$$\vec{T}_{rot} = - \int_S d\vec{s} \cdot (\vec{T} \times \vec{r}) \quad (1)$$

où \vec{T} est le tenseur des contraintes de Maxwell [14] moyenné dans le temps. Ce tenseur a la forme:

$$\vec{T} = \frac{1}{2} \text{Re} \left[(\epsilon \vec{E} \vec{E}^* + \mu \vec{H} \vec{H}^*) - \frac{1}{2} (\epsilon E^2 + \mu H^2) \vec{I} \right] \quad (2)$$

avec ϵ et μ permittivité et perméabilité du milieu, \vec{E} et \vec{H} champs électrique et magnétique totaux (incidents plus diffusés). \vec{I} est le tenseur unité. L'insertion de (2) dans la relation (1) conduit à:

$$\vec{T}_{rot} = - \int_S \frac{1}{2} \left[(\epsilon E_r E_\varphi^* + \mu H_r H_\varphi^*) \vec{\theta} - (\epsilon E_r E_\theta^* + \mu H_r H_\theta^*) \vec{\phi} \right] r ds \quad (3)$$

L'intégrale de surface qui doit être indépendante de r , est faite pour un rayon très large. Ainsi on peut utiliser les expressions asymptotiques pour les champs \vec{E} et \vec{H} ($kr \rightarrow \infty$). Les trois composantes cartésiennes du couple sont:

$$\begin{aligned} T_x = & -\frac{2M}{c} \frac{1}{k^3} \sum_{p=1}^{\infty} \sum_{n=p}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \frac{(n+p)!}{(n-p)!} \text{Re} \\ & \left\{ \left(g_{n, TM}^{p-1} g_{n, TM}^{p*} - g_{n, TM}^{-p} g_{n, TM}^{-p+1,*} \right) [2|a_n|^2 - (a_n + a_n^*)] + \right. \\ & \left. \left(g_{n, TE}^{p-1} g_{n, TE}^{p*} - g_{n, TE}^{-p} g_{n, TE}^{-p+1,*} \right) [2|b_n|^2 - (b_n + b_n^*)] \right\} \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} T_y = & -\frac{2M}{c} \frac{1}{k^3} \sum_{p=1}^{\infty} \sum_{n=p}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \frac{(n+p)!}{(n-p)!} \text{Im} \\ & \left\{ \left(g_{n, TM}^{p-1} g_{n, TM}^{p*} - g_{n, TM}^{-p} g_{n, TM}^{-p+1,*} \right) [2|a_n|^2 - (a_n + a_n^*)] + \right. \\ & \left. \left(g_{n, TE}^{p-1} g_{n, TE}^{p*} - g_{n, TE}^{-p} g_{n, TE}^{-p+1,*} \right) [2|b_n|^2 - (b_n + b_n^*)] \right\} \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} T_z = & -\frac{2M}{c} \frac{1}{k^3} \sum_{p=-\infty}^{\infty} \sum_{n=|p| \neq 0}^{\infty} p \frac{2n+1}{n(n+1)} \frac{(n+|p|)!}{(n-|p|)!} \\ & \left[\left| g_{n, TM}^p \right|^2 \left(\text{Re}(a_n) - |a_n|^2 \right) + \left| g_{n, TE}^p \right|^2 \left(\text{Re}(b_n) - |b_n|^2 \right) \right] \end{aligned} \quad (6)$$

où M est l'indice du milieu extérieur, k le nombre d'onde ($k = 2\pi/\lambda$), c la célérité de la lumière. Les coefficients g_n^m sont les coefficients de forme du faisceau (GLMT) et les a_n, b_n les coefficients de diffusion de la théorie de Lorenz-Mie. Les moments présentés ici sont normalisés comme cela avait été fait pour la pression de radiation[15].

3 RESULTATS NUMERIQUES

On se place dans la configuration de l'expérience de lévitation optique réalisée par Pouligny[16] [17]. Une particule sphérique en latex est lévitée dans de l'eau ($M=1.34$) par un laser mode TEM₀₀, polarisé linéairement dans la direction u . La longueur d'onde du faisceau λ est $0.5145 \mu\text{m}$. Le faisceau focalisé par un objectif de microscope a un diamètre au col de $7.4 \mu\text{m}$ ($\omega_0 = 3.7$). La particule a un diamètre de $15 \mu\text{m}$ ($a=7.5$). Son indice de réfraction réel est compris entre 1.19 et 1.23. La puissance pour léviter à un point d'équilibre avec la force de pesanteur de telles particules est de 4 à 5 mW.

Si la particule n'est pas absorbante, il n'y a pas de rotation. Ici on prend un indice de réfraction complexe avec k allant de 10^{-7} à 10^{-6} pour les particules les plus absorbantes. Dans la littérature, on trouve pour k des valeurs typiques de : $1.2 \cdot 10^{-9}$ [11], 10^{-7} [10], et qui peuvent monter jusqu'à 10^{-3} .

On n'utilise pas une polarisation circulaire comme Lee et Chang mais une polarisation linéaire. Par conséquent la rotation autour de l'axe de propagation est toujours nulle: $T_x = 0$. Sur l'axe du faisceau, étant donné les symétries: $T_x = T_y = 0$. Quand on s'écarte du faisceau le long de u ou v , seul T_y ou T_x n'est pas nul respectivement. Enfin, comme T_x et T_y sont symétriques par rapport à l'axe de propagation on ne trace que les résultats pour $x_0 > 0$ ou $y_0 > 0$ ($T_x(-y_0) = -T_x(y_0)$ et $T_y(-x_0) = -T_y(x_0)$).

3.1 Particules homogènes

Sur la figure 1a, on représente l'évolution du couple T_x (rotation autour de l'axe x passant par le centre de la particule) en fonction de la position de la particule dans le plan O, v, w (c'est à dire $x_0 = 0$). Le paramètre est z_0 : la coordonnée longitudinale du centre du faisceau vu de la particule. L'indice de la particule est $m = 1.19 - i10^{-7}$.

Fig 1.a Couple exerce sur une sphere de latex piegee dans un laser

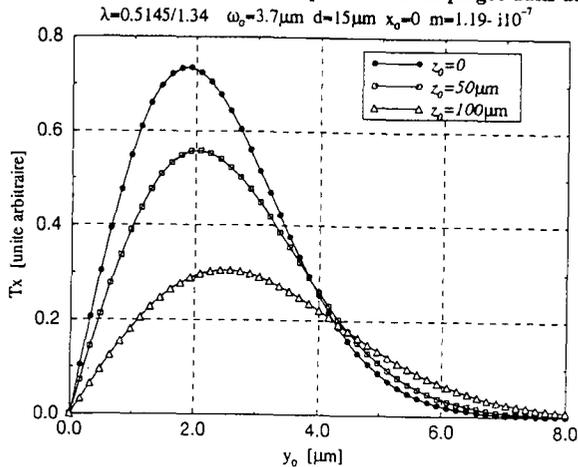
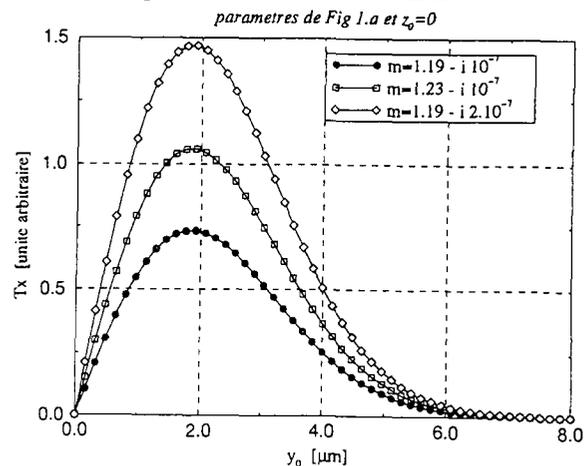


Fig 1.b Influence de l'indice sur la rotation



Sur l'axe du faisceau ($y_0 = 0$), la rotation est nulle. Quand la particule est éloignée de l'axe, elle tourne de plus en plus vite sur elle-même, puis la rotation décroît jusqu'à devenir nulle quand on sort du faisceau. Les modules sont essentiellement ($y_0 \leq 4.2 \mu\text{m}$) plus faibles lorsqu'on s'éloigne du col du faisceau ($x_0 = 100$). Sur la figure 1b on a représenté la rotation de la sphere au centre du faisceau pour des indices variables. Plus la particule est absorbante plus elle tourne. La rotation est également dépendante de l'indice réel n . Les courbes pour T_y en fonction de x_0 sont du même type: les modules sont légèrement plus faibles.

Pour choisir des gradients d'indice significatifs vis à vis de la rotation, on trace d'abord l'évolution de la rotation en fonction de l'indice d'une particule homogène. On étudie séparément les contributions des parties réelle et imaginaire de l'indice (figs 2a et 2b). Les paramètres sont identiques à ceux de la figure 1b et on est

placé au maximum de rotation: $y_0 = 2\mu m$.

Fig 2.a Variation du couple due à la partie réelle de l'indice

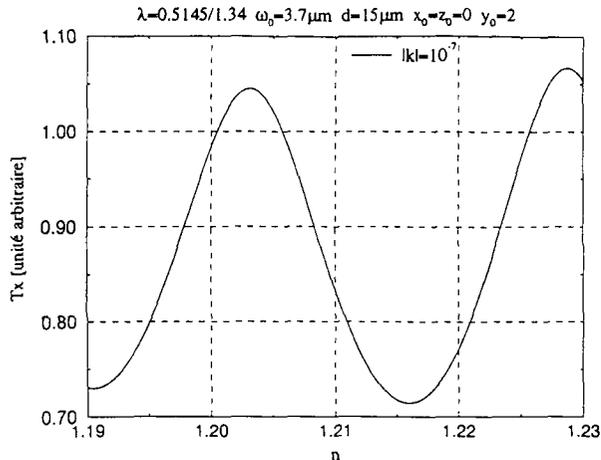
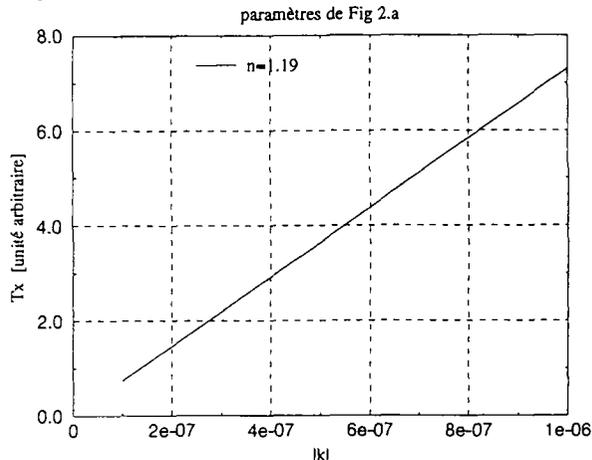


Fig 2.b Variation du couple due à la partie imaginaire de l'indice



L'évolution du maximum de rotation en fonction de l'absorption (k) est linéaire (fig 2b). Quel que soit l'indice k , la pression de radiation exercée par le laser sur la particule est quasi constante: elle augmente très faiblement avec k (calcul fait avec PRESS.FOR [15]). A puissance de lévitation constante, on observe donc une rotation d'autant plus forte que la particule est absorbante. En revanche, quand n varie (fig 2a), on observe des figures de résonance pour T_x . Des résonances de périodes différentes apparaissent aussi pour la pression de radiation longitudinale[15]. L'interprétation de la courbe est donc plus délicate.

La particule, lors de l'étude de la rotation est en équilibre dans le faisceau. Le bilan des forces agissant sur la particule fait intervenir la pression de radiation (composantes longitudinale $C_{pr,z}$ et transversale $C_{pr,y}$ dans notre cas), le poids de la particule et une force \vec{F} pour excentrer la particule. Le poids est compensé par la pression de radiation longitudinale (faisceau vertical ascendant). La composante transversale de la pression de radiation (qui a tendance à ramener la particule sur l'axe) est compensée par la force \vec{F} . On a tracé sur la figure 3, les composantes de pression de radiation $C_{pr,z}$ et $C_{pr,y}$ en fonction du déplacement transversal: y_0 varie de 0 à $15\mu m$.

Fig 3.a Pression de radiation longitudinale

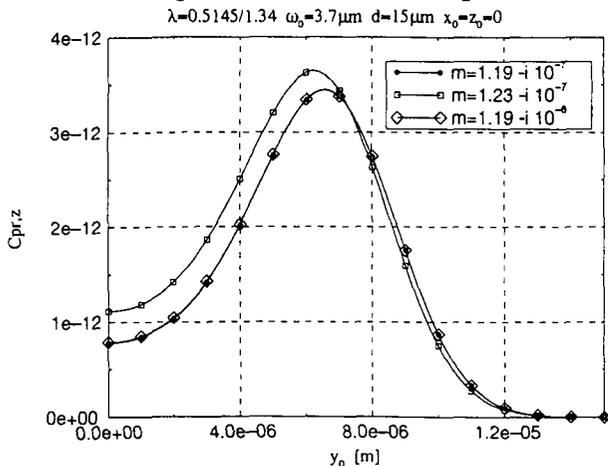
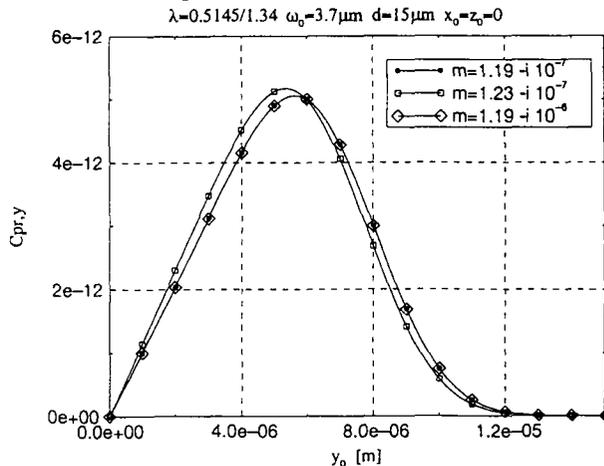


Fig 3.b Pression de radiation transversale



Quel que soit l'absorption (k), la pression de radiation est la même comme cela a déjà été mentionné plus haut. Par contre, une modification de la partie réelle de l'indice induit une modification de l'équilibre. Cette modification est peu importante pour la composante transversale (fig 3.b). Pour la composante longitudinale (fig 3.a) l'effet est plus visible, mais en $y_0 = 2\mu m$ on est encore dans la phase d'évolution en plateau de $C_{pr,z}$. La position d'équilibre n'est donc pas radicalement changée.

Il est à noter que, pour tous les indices, la position du maximum de rotation est distincte de celle des composantes de pression de radiation. Par conséquent, les paramètres (force d'excentration \bar{F} , puissance du laser) pour piéger la particule en $y_0 = 2\mu m$ doivent être correctement ajustés avant d'effectuer les mesures de rotation.

On se focalisera pour la suite sur l'étude de variations d'indice imaginaire k (fig 2b). La rotation est fortement croissante avec k pour une puissance de lévitation donnée dans l'exemple considéré ($|k| = 10^{-7}$ $T_x \simeq 0.7$ et $|k| = 10^{-6}$ $T_x > 7$). De plus, la position d'équilibre est indépendante de k .

3.2 Particules stratifiées

Pour cette partie, n est fixé à 1.19 (indice du latex). On utilisera les différents types de particules illustrés sur la figure 4:

Fig 4 Modèles de particules

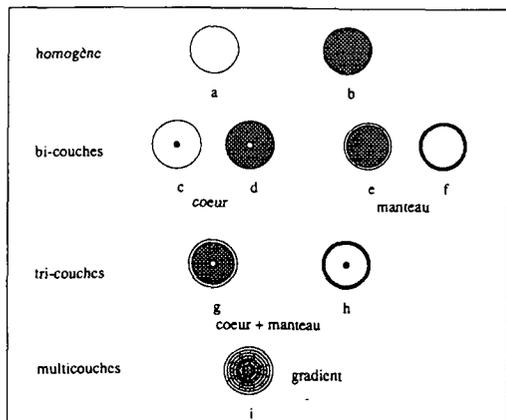
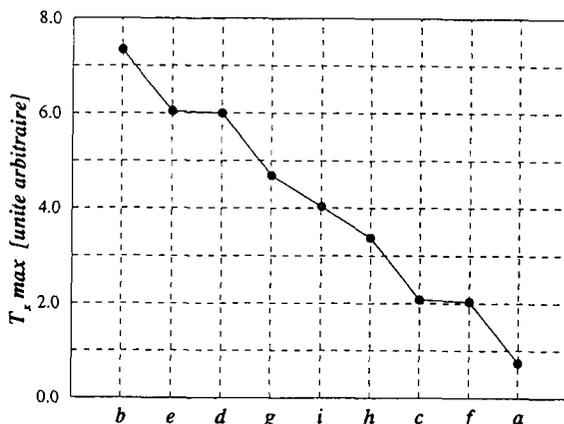


Fig 5 Module du maximum de rotation des particules a-i



Les parties claires comme (a) indiquent une absorption faible ($k = 10^{-7}$) tandis que les parties sombres comme (b) indiquent une absorption forte ($k = 10^{-6}$).

On a différents types de particules:

- bicouches: on distingue "coeur" et "manteau" avec le rapport des rayons: $q = r_1/r_{max}$. Pour le présent calcul on prend $q = 0.2$ (particules de type c et d) et $q = 0.8$ (particules de type e et f)
- tricouches: les 3 couches correspondent à 3 rayons: $r_1 < r_2 < r_{max}$. De même on définit deux rapports de rayons: $q_1 = r_1/r_{max}$ et $q_2 = r_2/r_{max}$. Pour les particules de types g et h, on prend: $q_1 = 0.2$ et $q_2 = 0.8$
- multicouches: les particules de type i présentent un gradient d'indice continu. Pour connaître le nombre de couches minimum, on utilise le critère[13]: $\Delta r < \lambda/4$, soit environ ici 60 couches. Le gradient peut être croissant ou décroissant.

Lorsqu'on trace l'évolution de T_x en fonction de y_0 pour tous les types de particules, on remarque que les courbes sont toutes similaires (voir figure 1b) au module près. Pour comparer plus facilement ces particules, on utilise donc un graphe comportant en abscisse les types de particules (a à i), et en ordonnée les maxima de rotation (c'est à dire en $y_0 = 2\mu m$). On obtient ainsi le classement de la figure 5.

Remarques sur le classement:

- Globalement le résultat obtenu correspond aux attentes: plus la particule est absorbante (plus elle présente de parties foncée), plus elle tourne.
- Le comportement d'une particule à gradient d'indice croissant ou décroissant est identique. En fait, la particule a alors les mêmes caractéristiques qu'une particule qui aurait un indice intermédiaire entre les deux cas limites a et b ($k = 6.5 \cdot 10^{-7}$).
- Les comportements des particules multicouches sont intermédiaires entre les deux cas homogènes peu ou fortement absorbant. Il n'y a pas d'effet particulier.

4 CONCLUSION

En conclusion, on peut obtenir les couples exercés sur une particule piégée dans un faisceau laser pour différents types de particules. Dans le cas de particules homogènes, des phénomènes de résonances sont mis en évidence. Ils sont liés à la partie réelle de l'indice. Ces phénomènes existent aussi pour les cellules multicouches (les résultats ne sont pas présentés ici). Pour les cellules multicouches, la distribution des couches est peu importante: c'est la fraction de volume de la sphère présentant un indice d'absorption élevé qui influe essentiellement la rotation. Enfin, il est prévu de faire des expériences pour valider ces résultats. Les particules utilisées seront des billes de latex colorées et donc absorbantes.

References

- [1] A. Ashkin. Acceleration and trapping of particles by radiation pressure. *Phys. Rev. Lett.*, 24(4):156-159, 1970.
- [2] J. E. Molloy, J. E. Burns, J. C. Sparrow, R. T. Tregear, J. Kendrick-Jones, and D. C. S. White. Single-molecule mechanics of heavy meromyosin and sl interacting with rabbit or drosophila actins using optical tweezers. *Biophysical Journal*, 68:298s-305s, 1995.
- [3] S. C. Kuo and M. P. Sheetz. Force of single kinesin molecules measured with optical tweezers. *Science*, 260:232-234, 1993.
- [4] T. T. Perkins, D. E. Smith, and S. Chu. Direct observation of tube-like motion of a single polymer chain. *Science*, 264:819-822, 1994.
- [5] T. T. Perkins, S. R. Quake, D. E. Smith, and S. Chu. Relaxation of a single DNA molecule observed by optical microscopy. *Science*, 264:822-826, 1994.
- [6] W. H. Wright, G. J. Sonek, and M. W. Berns. Parametric study of the forces on microspheres held by optical tweezers. *Applied Optics*, 33:1735-1748, 1994.
- [7] H. Felgner, O. Müller, and M. Schliwa. Calibration of light forces in optical tweezers. *Applied Optics*, 34:977-982, 1995.
- [8] T. C. Bakker Schut, E. F. Schipper, B. G. de Groot, and J. Greve. Optical-trapping micromanipulation using 780-nm diode lasers. *Optical Society of America*, 18:447-449, 1993.
- [9] P. L. Marston and J. H. Crichton. Rotation torque on a sphere caused by a circularly-polarized electromagnetic wave. *Physical Review A*, 30(5):2508-2516, 1984.
- [10] S. Chang and S. S. Lee. Optical torque exerted on a homogeneous sphere levitated in the circularly polarized fundamental-mode laser beam. *J. Opt. Soc. Am. B.*, 2:1853-1860, 1985.
- [11] J. P. Barton, D. R. Alexander, and S. A. Schaub. Theoretical determination of net radiation force and torque for a spherical particle illuminated by a focused laser beam. *J. Appl. Phys.*, 66:4594-4602, 1989.
- [12] G. Gouesbet, B. Maheu, and G. Gréhan. Light scattering from a sphere arbitrarily located in a Gaussian beam, using a Bromwich formulation. *J.O.S.A. A.*, 5(9):1427-1443, 1988.
- [13] Z. S. Wu, L. X. Guo, K. F. Ren, G. Gouesbet, and G. Gréhan. Improved algorithms for electromagnetic scattering of plane wave and shaped beams by multilayered spheres. *to be published*, 1996.
- [14] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics (2nd edition)*. Wiley, N.Y, 1975.
- [15] K. F. Ren, G. Gréhan, and G. Gouesbet. Radiation pressure forces exerted on a particle arbitrarily located in a Gaussian beam by using the GLMT, and associated resonances effects. *Opt. Comm.*, 108:343-353, 1994.
- [16] M. I. Angelova and B. Pouligny. Trapping and levitation of a dielectric sphere with off-centred Gaussian beams: I experimental. *Pure Appl. Opt.*, 2:261-276, 1993.
- [17] G. Martinot-Lagarde, B. Pouligny, M. I. Angelova, G. Gréhan, and G. Gouesbet. Trapping and levitation of a dielectric sphere with off-centred Gaussian beams: II GLMT analysis. *Pure Appl. Opt.*, 4:571-585, 1995.

Détermination des forces d'interactions sur deux gouttes de rayons différents dans un écoulement linéaire quelconque

F. PIGEONNEAU, F. FEUILLEBOIS
LPMMH-ESPCI
10, rue Vauquelin
75231 Paris Cédex 5

12^{èmes} Journées d'Etudes et de Recherches sur les aérosols, Paris, 4 et 5 décembre 1996

Résumé

Dans le cadre des solutions diluées, on utilise l'hypothèse des interactions entre paires de gouttes. Le calcul des forces d'interactions hydrodynamiques entre deux particules placées dans un écoulement linéaire quelconque est fait dans le cadre des faibles nombres de Reynolds. Les écoulements à l'intérieur et à l'extérieur des gouttes sont alors régis par les équations de Stokes. Nous supposons également que la tension superficielle est grande pour que les gouttes restent sphériques.

La solution est obtenue au moyen du système de coordonnées bipolaires. On simplifie en outre le problème en décomposant l'écoulement linéaire général en somme de plusieurs écoulements simples.

Dans la limite où le rapport de viscosité du fluide des gouttes à celle de la phase porteuse est grand, nos résultats sont très proches de ceux obtenus pour des particules solides.

Abstract

We assume binary interaction between droplets in a dilute dispersion. Hydrodynamic interaction forces of two drops in any linear flow field are calculated in the limit of small Reynolds number. The Stokes equations are applied for the flows inside and outside the drops. We also assume that the surface tension is large enough for the droplets remain spherical.

The solution is obtained with a system of bispherical coordinates. The problem is further simplified by expanding the general linear flow fields as a sum of several simpler flow fields.

When the dynamical viscosity of the drops is much larger than that of ambient fluid, we find a very good agreement between our results and those for solid particles.

1 Introduction

Dans le cadre des solutions diluées, il est courant de se limiter aux interactions hydrodynamiques entre paires de particules. La détermination des forces permet par exemple de déduire les taux de coalescence.

Lorsque le nombre de Reynolds est faible, l'écoulement à l'intérieur et à l'extérieur des gouttes est régi par les équations de Stokes. Les termes non linéaires des équations de Navier-Stokes sont négligés ainsi que les termes instationnaires. Nous supposons également que la tension superficielle est suffisamment grande pour que les gouttes restent sphériques. C'est à dire que le nombre capillaire est petit.

Le calcul des efforts agissant sur deux gouttes se déplaçant dans un fluide au repos a été fait par Haber *et al* [1] et Zinchenko [8]. Dans cette présentation, nous donnons une méthode pour déterminer les forces exercées sur deux gouttes immobiles plongées dans un écoulement linéaire quelconque.

Les efforts sur des particules se déplaçant avec des vitesses quelconques dans un écoulement linéaire sera obtenue par superposition des diverses solutions.

2 Calcul des forces

Nous déterminons ici les forces s'exerçant sur deux gouttes sphériques de rayons a_1 et a_2 . La ligne des centres des gouttes est confondue avec l'axe z (cf. figure 1). La phase porteuse a une viscosité dynamique μ alors que celle des gouttes est μ' . Leur rapport est défini par: $\hat{\mu} = \mu'/\mu$. Le champ de vitesse non-perturbé est donné par la relation:

$$\vec{u}^\infty = \Gamma \cdot \vec{x}, \quad (1)$$

où Γ est la matrice de cisaillement. Elle a la forme générale suivante:

$$\Gamma = \begin{pmatrix} \gamma_{xx} & \gamma_{xy} & \gamma_{xz} \\ \gamma_{yx} & \gamma_{yy} & \gamma_{yz} \\ \gamma_{zx} & \gamma_{zy} & \gamma_{zz} \end{pmatrix}. \quad (2)$$

La recherche des forces passe par la connaissance des champs de pression et de vitesse. L'obtention de ces derniers se fait par une résolution exacte des équations de Stokes rappelées ci-dessous:

$$\begin{aligned} \text{div } \vec{u} &= 0, \\ \mu \Delta \vec{u} &= \text{grad } p. \end{aligned} \quad (3)$$

Les relations (3) sont vérifiées pour les écoulements à l'intérieur et à l'extérieur des gouttes. Il est également nécessaire d'associer à ce système les conditions aux limites:

- continuité des vitesses:

$$\vec{u}^e = \vec{u}^\alpha \quad \text{pour la goutte } \alpha, \quad (4)$$

- condition de flux de masse nul:

$$\vec{u}^e \cdot \vec{n}^\alpha = 0 \quad \text{pour la goutte } \alpha, \quad (5)$$

- continuité des contraintes tangentielles:

$$(\sigma^e \cdot \vec{n}^\alpha) \cdot \vec{\tau}^\alpha = (\sigma^\alpha \cdot \vec{n}^\alpha) \cdot \vec{\tau}^\alpha \quad \text{pour la goutte } \alpha, \quad (6)$$

- condition à l'infini:

$$\vec{u}^e \rightarrow \vec{u}^\infty. \quad (7)$$

La lettre e fait référence à l'écoulement externe alors que l'indice α lié aux gouttes vaut 1 ou 2. \vec{n}^α et $\vec{\tau}^\alpha$ sont des vecteurs unitaires normal et tangentiel à la surface de la goutte α respectivement. σ est le tenseur des contraintes.

En vertu de la linéarité des équations (3), il est possible de décomposer le problème général en six cas énumérés ci-dessous:

- 1^{er} cas d'étude: $\gamma_{zz} \neq 0$,
- 2^{ème} cas d'étude: $\gamma_{yz} \neq 0$,
- 3^{ème} cas d'étude: $\gamma_{xx} \neq 0$, $\gamma_{yy} \neq 0$ et $\gamma_{zz} \neq 0$,
- 4^{ème} cas d'étude: $\gamma_{xy} \neq 0$ et $\gamma_{yx} \neq 0$,
- 5^{ème} cas d'étude: $\gamma_{zz} \neq 0$,
- 6^{ème} cas d'étude: $\gamma_{zy} \neq 0$.

Pour le cas 4, on montre que les forces sur chaque goutte sont identiquement nulles. De même, il est possible de voir que les cas 1 et 2 sont formellement identiques. Cette dernière remarque est également valable pour les cas 5 et 6. Pour le cas 3, le champ de vitesse à l'infini se décompose en une partie axisymétrique et une autre asymétrique. Mais seule la partie axisymétrique donne des forces non nulles sur les particules. Nous avons donc finalement trois cas indépendants à envisager dont les champs de vitesses non-perturbés sont donnés ci-dessous:

- Premier cas:

$$\vec{u}^\infty = \gamma_{zz} z \vec{i} + \gamma_{yz} z \vec{j}, \quad (8)$$

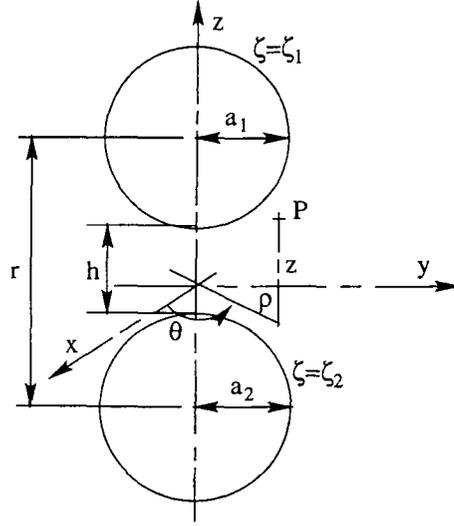


Figure 1: Représentation des deux gouttes dans le système de référence.

- deuxième cas:

$$\vec{u}^\infty = (\gamma_{zx}x + \gamma_{zy}y) \vec{k}, \quad (9)$$

- troisième cas:

$$\vec{u}^\infty = \gamma_{xx}x\vec{i} + \gamma_{yy}y\vec{j} + \gamma_{zz}z\vec{k}. \quad (10)$$

Les deux premiers cas engendrent des forces suivant l'axe x et y alors que le dernier donne un effort suivant l'axe z. Elles peuvent s'écrire pour les gouttes 1 et 2 respectivement:

$$\begin{aligned} F_x^1 &= -6\pi\mu a_1 (D_{1xz}\gamma_{xz} + D_{1zx}\gamma_{zx}), \\ F_y^1 &= -6\pi\mu a_1 (D_{1yz}\gamma_{yz} + D_{1zy}\gamma_{zy}), \\ F_z^1 &= -6\pi\mu a_1 D_{1zz}\gamma_{zz}. \end{aligned} \quad (11)$$

$$\begin{aligned} F_x^2 &= -6\pi\mu a_2 (D_{2xz}\gamma_{xz} + D_{2zx}\gamma_{zx}), \\ F_y^2 &= -6\pi\mu a_2 (D_{2yz}\gamma_{yz} + D_{2zy}\gamma_{zy}), \\ F_z^2 &= -6\pi\mu a_2 D_{2zz}\gamma_{zz}. \end{aligned} \quad (12)$$

Où on a $D_{1xz} = D_{1yz}$, $D_{1zx} = D_{1zy}$, $D_{2xz} = D_{2yz}$ et $D_{2zx} = D_{2zy}$.

La solution des équations de Stokes associées aux conditions aux limites est obtenue en utilisant le système de coordonnées bipolaires. Ce dernier est défini par rapport au système cylindrique (cf. figure 1) par les relations suivantes:

$$\begin{aligned} z &= \frac{c \sinh \zeta}{\cosh \zeta - \cos \eta}, \\ \rho &= \frac{c \sin \eta}{\cosh \zeta - \cos \eta}, \end{aligned} \quad (13)$$

où ζ et η sont les coordonnées bipolaires. c est une constante qui dépend de la géométrie du problème. Ce système de coordonnées a été utilisé pour la première fois par Jeffery [2] et Stimson et Jeffery [6].

La méthode utilisant les coordonnées bipolaires repose sur la simplification des conditions aux limites. En effet, la surface de chaque goutte correspond à une valeur constante de ζ . En contre partie, les développements mathématiques deviennent plus compliqués.

La solution du problème asymétrique repose sur le fait que la pression vérifie l'équation de Laplace:

$$\Delta p = 0. \quad (14)$$

Le champ de vitesse est pris sous la forme:

$$\vec{u} = \frac{p}{2\mu} \vec{x} + \vec{u}^H, \quad (15)$$

où \vec{u}^H est un champ de vitesse harmonique.

La recherche des fonctions harmoniques est faite en utilisant la méthode des séparations des variables. La pression et la vitesse dans le système de coordonnées cylindriques ont les formes générales suivantes pour les écoulements internes et externe [5]:

$$\begin{aligned} p &= \frac{2\mu}{c} \sum_{k=0}^{\infty} (Q_k^0 \sin k\theta + Q_{-k}^0 \cos k\theta), \\ u_\rho &= \sum_{k=0}^{\infty} \left[\left(\frac{\rho}{c} Q_k^0 + W_k^1 + W_k^{-1} \right) \sin k\theta + \left(\frac{\rho}{c} Q_{-k}^0 + W_{-k}^1 + W_{-k}^{-1} \right) \cos k\theta \right], \\ u_\theta &= \sum_{k=0}^{\infty} \left[(W_{-k}^1 - W_{-k}^{-1}) \sin k\theta + (W_k^{-1} - W_k^1) \cos k\theta \right], \\ u_z &= \sum_{k=0}^{\infty} \left[\left(\frac{z}{c} Q_k^0 + 2W_k^0 \right) \sin k\theta + \left(\frac{z}{c} Q_{-k}^0 + 2W_{-k}^0 \right) \cos k\theta \right], \end{aligned} \quad (16)$$

avec:

$$\begin{aligned} Q_m^0 &= \sqrt{\cosh \zeta - \cos \eta} \sum_{n=|m|}^{\infty} q_{mn}^0(\zeta) P_n^{|m|}(\cos \eta), \\ W_m^i &= \sqrt{\cosh \zeta - \cos \eta} \sum_{n=|m|+i}^{\infty} w_{mn}^i(\zeta) P_n^{|m|+i}(\cos \eta), \end{aligned} \quad (17)$$

m est égale à k ou $-k$. $P_n^m(x)$ est la fonction de Legendre d'ordre n et de rang m . Les fonctions q_{mn}^0 et w_{mn}^i sont données par:

$$\begin{aligned} q_{mn}^0(\zeta) &= C_{mn}^0 e^{-(n+\frac{1}{2})\zeta} + D_{mn}^0 e^{(n+\frac{1}{2})\zeta}, \\ w_{mn}^i(\zeta) &= A_{mn}^i e^{-(n+\frac{1}{2})\zeta} + B_{mn}^i e^{(n+\frac{1}{2})\zeta}. \end{aligned} \quad (18)$$

L'établissement des conditions aux limites permet obtenir les relations portant sur les coefficients C_{mn}^0 , D_{mn}^0 , A_{mn}^i et B_{mn}^i définis à l'intérieur et à l'extérieur des gouttes. Le système final a un caractère récurrent. Il nécessite une résolution numérique.

Pour le problème axisymétrique, on utilise la fonction de courant ψ définie de la façon suivante:

$$\begin{aligned} u_\rho &= \frac{1}{\rho} \frac{\partial \psi}{\partial z}, \\ u_z &= -\frac{1}{\rho} \frac{\partial \psi}{\partial \rho}. \end{aligned} \quad (19)$$

En définissant le nouvel opérateur différentiel:

$$\Phi^2 = \rho \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \right) + \frac{\partial^2}{\partial z^2}, \quad (20)$$

Stimson et Jeffery [6] ont montré que la fonction ψ vérifie l'équation:

$$\Phi^4 \psi = 0. \quad (21)$$

En utilisant la méthode de séparation des variables et les coordonnées bipolaires, ils donnent comme solution pour ψ :

$$\psi = c^2 \sqrt{2} (\cosh \zeta - \cos \eta)^{-\frac{3}{2}} \sum_{n=1}^{\infty} n(n+1) \psi_n(\zeta) Q_n(\cos \eta). \quad (22)$$

Q_n est le polynôme de Gegenbauer lié aux polynômes de Legendre par la relation:

$$Q_n(x) = \frac{P_{n-1}(x) - P_{n+1}(x)}{2n+1}. \quad (23)$$

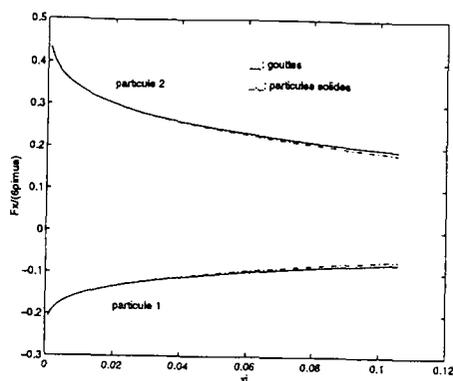


Figure 2: Forces exercées sur les deux particules (gouttes avec $\hat{\mu} = 1000$ et particules solides) proches l'une de l'autre pour $\lambda = 0, 5$.

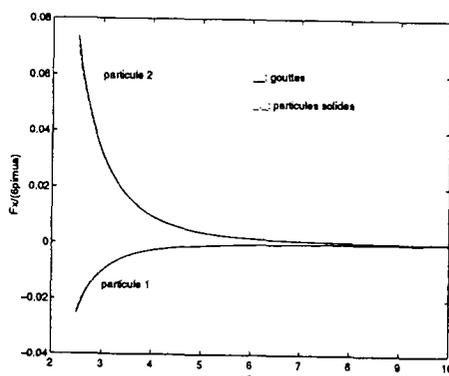


Figure 3: Forces exercées sur les deux particules (gouttes avec $\hat{\mu} = 1000$ et particules solides) à des distances moyennes pour $\lambda = 0, 5$.

$\psi_n(\zeta)$ est égale à:

$$\psi_n(\zeta) = A_n e^{-(n-\frac{1}{2})\zeta} + B_n e^{-(n+\frac{3}{2})\zeta} + C_n e^{(n-\frac{1}{2})\zeta} + D_n e^{(n+\frac{3}{2})\zeta}. \quad (24)$$

De même, l'établissement des conditions aux limites permet le calcul des coefficients A_n , B_n , C_n et D_n qui doivent être définis pour chaque écoulement interne et externe. Le système final n'est pas récurrent. Il devient plus facile à résoudre que celui du problème asymétrique.

3 Résultats

Pour le calcul des forces avec le champ de vitesse (8), une méthode similaire a été employée par Wang *et al* [7]. La comparaison de leurs résultats et des nôtres est excellente. De même, ces derniers ont étudié le problème axisymétrique pour un écoulement élongationnel ($\gamma_{xx} = \gamma_{yy} = E$, $\gamma_{zz} = -2E$). Nous avons généralisé leur méthode au cas où la trace de la matrice de cisaillement est quelconque. Les résultats sont encore très bons.

Par contre, pour le champ de vitesse défini par la relation (9), aucun calcul n'a été fait auparavant. La comparaison peut se faire en utilisant les solutions obtenues avec des particules solides. Il faut seulement supposer que les particules tournent librement et que leur moment est identiquement nul. En utilisant les résultats de Jeffrey [3] et ceux du livre de Kim et Karrila [4], nous pouvons comparer notre solution où il est nécessaire de supposer que le rapport $\hat{\mu}$ est grand. Nous avons pris $\hat{\mu} = 1000$. Les résultats montrés sur les figures 2 et 3 où λ est égal à a_2/a_1 , prouvent que notre méthode est bonne.

4 Conclusion

Ce calcul permet d'obtenir les forces qui s'exercent sur deux particules sphériques lorsque le rapport de leur viscosité à celle du fluide ambiant est quelconque. Ainsi, il est possible de déterminer les efforts sur des bulles en prenant, $\hat{\mu} = 0$. La solution est vraie quelle que soit l'écart entre les deux gouttes. L'inconvénient de la méthode provient d'une convergence très lente lorsque l'écart entre les gouttes est très faible.

Nous connaissons maintenant d'une façon générale les forces sur les particules qui se déplacent dans un écoulement linéaire. Il est alors possible de calculer les trajectoires relatives et d'en déduire les taux de coalescence avec la prise en compte de l'inertie des particules qui est la plupart du temps négligée.

Remerciements

F. Pigeonneau tient à exprimer ses profonds remerciements aux C.N.R.S. et à l'O.N.E.R.A. pour leur support financier attribué dans le cadre de sa thèse.

Références

- [1] S. Haber, G. Hetsroni, and A. Solan. On the low Reynolds number motion of two droplets. *Int. J. Multiphase Flow*, 1: 57-71, 1973.
- [2] G.B. Jeffery. On a form of the solution of Laplace's equation suitable for problems relating to two spheres. *Proc. Roy. Soc. Lon.*, 87: 109-120, 1912.
- [3] D. J. Jeffrey. The calculation of the low Reynolds number resistance functions for two unequal spheres. *Phys. Fluids, A*, 4-1: 16-29, 1992.
- [4] S. Kim and S. P. Karrila. *Microhydrodynamics: Principles and Selected Applications*. Butterworth-Heinemann, Boston, 1991.
- [5] C. J. Lin, K. J. Lee, and N. F. Sather. Slow motion of two spheres in a shear field. *J. Fluid Mech. (UK)*, 43-1: 35-47, 1970.
- [6] M. Stimson and G. B. Jeffery. The motion of two spheres in a viscous fluid. *Proc. Roy. Soc. Lon., A*, 111: 110-116, 1926.
- [7] H. W. Wang, A. Z. Zinchenko, and R. H. Davis. The collision rate of small drops in linear flow fields. *J. Fluid Mech.*, 265: 161-188, 1994.
- [8] A. Z. Zinchenko. The slow asymmetric motion of two drops in a viscous medium. *Prikl. Matem. Mekhan. (traduction anglaise dans PMM U.R.R.S.)*, 44: 49-59 (30-37), 1980.

EVALUATION DES DEPOTS D'AEROSOLS PAR THERMO ET DIFFUSIOPHORESE A PARTIR DE LA CONNAISSANCE DE GRANDEURS THERMOHYDRAULIQUES. APPLICATION AU CAS D'UN ECOULEMENT STATIONNAIRE DANS UNE CONDUITE CYLINDRIQUE VERTICALE.

A. ZOULALIAN - ENSTIB - Université Henri Poincaré, Nancy 1 - BP 239 -
54506 Vandoeuvre les Nancy Cedex - France

Th. ALBIOL - Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire - Centre de Cadarache - 13108 Saint Paul Lez
Durance - France

Résumé - En cas d'accident sévère sur un réacteur nucléaire à eau pressurisée, les aérosols émis, entraînés par un écoulement gazeux constitué de vapeur d'eau et d'incondensables peuvent se déposer dans le circuit primaire par différents mécanismes. En particulier, au niveau du faisceau tubulaire du générateur de vapeur, les parois du faisceau étant refroidies par l'eau du côté secondaire, les aérosols se déposent essentiellement par thermo et diffusiophorèse. Une analyse des dépôts par l'intermédiaire des bilans de matière et d'énergie permet de montrer que, pour un écoulement stationnaire, l'efficacité des dépôts d'aérosols par thermo et diffusiophorèse ne dépend que de deux grandeurs thermohydrauliques. Les expressions théoriques obtenues, appliquées aux essais du programme expérimental IPSN Tubadiffusiophorèse, rendent compte de manière satisfaisante des résultats expérimentaux. De plus, les dépôts par thermo et diffusiophorèse doivent être évalués simultanément plutôt que de manière indépendante.

Abstract - In the hypothesis of a severe accident on a pressurized water nuclear reactor, the created aerosols, carried by a gas flow constituted by steam and incondensable gases in the elements of the primary circuit, can be settled by different mechanisms. In particular into the tubular bundle of steam generator, in contact with the wall cooled by the water flowing at the outside of the bundle, the aerosols are transferred and fixed on the wall by thermo and diffusiophoresis. A modelisation of the deposition in a vertical cylindrical tube based on the mass and energy balances allows to show that the efficiency of the deposit depends only on two thermohydraulic parameters. The theoretical relations of the efficiency applied to the IPSN experimental program "Tuba diffusiophoresis" agreed with experimental results. Moreover, the efficiency of the deposition by thermo and diffusiophoresis must be valued simultaneously rather than independently.

I - INTRODUCTION

Dans l'hypothèse d'un accident sévère sur un réacteur à eau pressurisée, les produits de fission libérés par la dégradation du coeur du réacteur (vapeur, aérosols, incondensables,...) vont être évacués dans les éléments du circuit primaire avant d'atteindre l'enceinte de confinement.

Ainsi, les aérosols solubles et insolubles vont être entraînés par un mélange gazeux constitué essentiellement de vapeur d'eau et d'incondensables dont le principal est l'hydrogène.

Au cours de leur transport dans les divers éléments du circuit primaire, les aérosols vont être piégés par différents mécanismes tels que la sédimentation, la diffusion turbulente, l'impaction turbulente, etc... En particulier, lors de l'écoulement de la phase gazeuse à température élevée dans les tubes du générateur de vapeur à parois refroidies, les aérosols vont être piégés par thermophorèse et diffusiophorèse si la phase condensable se condense effectivement à la paroi de la conduite.

Dans ce qui suit, nous allons nous intéresser plus particulièrement à ces deux types de dépôts. La thermophorèse peut apparaître toute seule en l'absence de condensation. En revanche, les dépôts par diffusiophorèse sont toujours associés à des dépôts thermophorétiques dans la mesure où la condensation d'une vapeur non pure nécessite l'existence d'une différence de température (donc d'un gradient de température) au voisinage de la paroi.

Dans une précédente étude (ZOULALIAN et ALBIOL, 1995), nous avons montré que l'efficacité des dépôts d'aérosols par thermophorèse pouvait être calculée à l'aide de relations algébriques simples dépendant de grandeurs thermiques mesurées ou calculables par un code de thermohydraulique appliqué à l'écoulement étudié. Dans le présent travail, nous allons généraliser ces relations au cas où les dépôts d'aérosols sont dus simultanément aux mécanismes de la thermo et diffusiophorèse. Les relations seront validées sur l'ensemble des essais réalisés dans le cadre du programme Tuba diffusiophorèse de l'Institut de Protection de Sécurité Nucléaire.

II - MODELISATION DES DEPÔTS D'AEROSOLS PAR THERMO ET DIFFUSIOPHORESE

La modélisation des dépôts est envisagée pour un écoulement stationnaire d'un fluide dans une conduite cylindrique de longueur L , de diamètre D et dont la température de la paroi est maintenue constante et égale à T_w . Le mélange gazeux alimentant la conduite ($z=0$) est constitué par :

- un débit massique de vapeur d'eau \dot{m}_{e0} (kg s^{-1})
- un débit massique d'incondensable \dot{m}_i (kg s^{-1})
- un débit massique d'aérosols \dot{m}_{a0} (kg s^{-1})

La vapeur d'eau, l'incondensable et les aérosols sont caractérisés par leur concentration massique, soit respectivement ρ_e , ρ_i , C . Lors du transport de ces éléments dans la conduite, les concentrations massiques ainsi que toutes les autres grandeurs caractéristiques de l'évolution du système matériel (température, vitesse, pression, etc...) peuvent varier mais nous supposons qu'elles ne dépendent que de la variable d'espace z . Les autres grandeurs introduites ci-après sont définies dans la nomenclature jointe.

L'écoulement de la phase fluide étant supposé du type idéal piston, les écritures des bilans différentiels de matière (vapeur d'eau et incondensable) et d'énergie permettent d'exprimer la vitesse de Stéphan (vitesse de condensation de la vapeur d'eau) et la vitesse de thermophorèse. Les développements mathématiques sont présentés par ailleurs (ZOULALIAN et ALBIOL, 1997). Ils aboutissent aux relations intégrales suivantes :

$$\int \frac{v_S}{u} dz = -\frac{D}{4} \ln(1 - x_0 E_c) \quad (1)$$

$$\int \frac{v_{TH}}{u} dz = \frac{DK_T Pr}{4T_w} (T_0 - T) + \frac{K_T Pr \bar{\theta}}{T_w} \int \frac{v_S}{u} dz \quad (2)$$

Les grandeurs intervenant dans les relations (1) et (2) sont définies dans la nomenclature. Les grandeurs inconnues dans les membres de droite sont l'efficacité de condensation, E_c , et la température du mélange gazeux à la sortie de la conduite, T . Les autres grandeurs sont connues (données) ou peuvent être estimées en prenant des valeurs moyennes entre l'entrée et la sortie de la conduite (cas des propriétés physicochimiques).

Si on considère désormais le bilan différentiel des aérosols entre les sections droites de conduite de côte z et $z+dz$, il s'écrit :

$$\frac{d(uC)}{dz} = -\frac{4}{D}(v_D + v_{TH})C \quad (3)$$

La vitesse de diffusiophorèse v_D est reliée à la vitesse de Stéphan par la relation :

$$v_D = K_D v_s \quad (4)$$

où le coefficient de diffusiophorèse K_D peut être estimé par exemple par la relation de Waldman (Waldman, 1961).

L'intégration de la relation (3) conduit à :

$$\ln \frac{uC}{u_0 C_0} = -\frac{4}{D} \left[\int K_D \frac{v_s}{u} dz + \int \frac{v_{TH}}{u} dz \right] \quad (5)$$

Le premier membre de la relation (5) est relié à l'efficacité de dépôt des aérosols, E :

$$E = \frac{u_0 C_0 - uC}{u_0 C_0} = 1 - \frac{uC}{u_0 C_0} \quad (6)$$

K_D variant de manière uniforme entre l'entrée et la sortie de la conduite, en tenant compte des expressions des intégrales $\int \frac{v_s}{u} dz$ et $\int \frac{v_{TH}}{u} dz$ (relations (1) et (2)), on aboutit à des valeurs limites de l'efficacité de dépôt, soit :

$$E_m = 1 - \left[(1 - x_{e0} E_c)^{K_{Dm} + \frac{K_T Pr \bar{\theta}}{T_w}} \exp - \frac{K_T Pr}{T_w} (T_0 - T) \right] \quad (7)$$

$$E_M = 1 - \left[(1 - x_{e0} E_c)^{K_{DM} + \frac{K_T Pr \bar{\theta}}{T_w}} \exp - \frac{K_T Pr}{T_w} (T_0 - T) \right] \quad (8)$$

E_m et E_M englobent les deux types de dépôt. Certains auteurs suggèrent d'évaluer de manière indépendante les deux types de dépôt. Les valeurs de l'efficacité trouvées pour les dépôts par thermophorèse et diffusiophorèse, évaluées de manière indépendante, sont telles que :

$$E_T = 1 - \exp - \frac{K_T Pr}{T_w} (T_0 - T) \quad (9)$$

$$E_D = 1 - (1 - x_{e0} E_c)^{K_D} \quad (10)$$

Si l'on admet que les deux dépôts sont indépendants, l'efficacité globale pour les deux types de dépôt est telle que :

$$E_{T+D} = E_T + E_D = 2 - \exp\left(-\frac{K_T Pr}{T_W}(T_0 - T)\right) - (1 - x_{e0} E_c)^{K_D} \quad (11)$$

La relation (11) n'est équivalente aux relations (7) et (8) que dans le cas où la grandeur $\frac{K_T Pr}{T_W}$ est faible. Dans tous les autres cas, il existe des différences et l'application suivante permettra de quantifier ces différences. La valeur E_{T+D} sera évaluée pour les deux valeurs extrêmes du coefficient de Waldmann.

III - APPLICATIONS DE LA THEORIE AUX ESSAIS TUBA DIFFUSIOPHORESE

Le dispositif expérimental utilisé pour réaliser le programme Tuba diffusiophorèse est schématisé sur la figure 1. Il est constitué essentiellement de quatre parties :

- le générateur d'aérosols,
- le générateur de vapeur d'eau,
- la chambre de mélange et le conditionnement thermique du mélange gazeux,
- la conduite cylindrique verticale munie d'une double enveloppe dans laquelle circule le liquide organique permettant de maintenir constante la température de la paroi. La condensation et le dépôt d'aérosols ont lieu dans ce tube de diamètre intérieur 0,02 m et de longueur totale 1,50 m.

L'étape de dépôt d'aérosols est précédée par une étape de mise en régime thermique et de condensation en l'absence d'aérosols. L'étude du régime stationnaire en présence d'aérosols s'est poursuivie sur des périodes allant de 1 à 2 heures.

Essai	TD1	TD2	TD3	TD4	TD5	TD6	TD7	TD8	TD9
P (bar)	6	4	3	6	3	6	4	3	3
T_W (K)	375	374	377	373	385,6	371,9	373	375,8	374,2
\dot{m}_{e0} (g/l)	0,2	0,2	0,498	0,082	1,470	0,202	0,332	0,504	1,506
\dot{m}_{i0} (g/s)	0,051	0,030	0,049	0,050	0,151	0,0498	0,051	0,050	0,147
ϕ_{co} (mole/s)	0,01111	0,01111	0,02766	0,04555	0,08166	0,01122	0,01844	0,0280	0,08367
ϕ_i (mole/s)	0,01275	0,00750	0,01225	0,01250	0,03775	0,01245	0,01275	0,0125	0,03675
T_0 (K)	439	439	439	440	441	903,9	773 - 823	712,9	812,5
x_{e0} (-)	0,4656	0,5970	0,6931	0,2671	0,6839	0,4740	0,5912	0,6913	0,6948
m_{a0} (g/h)	0,218	0,155	0,225	0,0694	0,756	0,0654	0,184	1,02	0,5235
\dot{m}_{es} (g/s)	0,085	0,095	0,129	0,054	0,860	0,040	0,092	0,197	0,623
x_{es} (-)	0,270	0,413	0,369	0,193	0,559	0,151	0,286	0,467	0,485
T_S (K)	373	375	383	373	403	376	383	412	423
E_c	0,575	0,525	0,741	0,341	0,415	0,802	0,714	0,609	0,586
E_{exp}	0,25 - 0,29	0,38 - 0,46	0,686	0,075 - 0,090	0,178	0,607 - 0,652	0,58	0,568	0,597

Tableau 1 : Conditions opératoires et grandeurs expérimentales des essais TUBA DIFFUSIOPHORESE

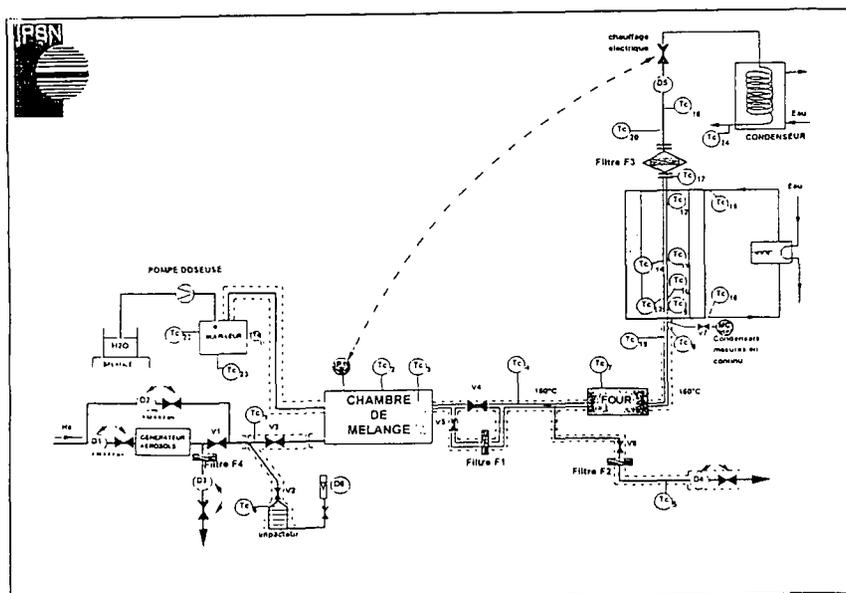


Figure 1 : Schéma du dispositif expérimental

Neuf essais de dépôts ont été réalisés. Les conditions opératoires et les résultats expérimentaux sont donnés dans le tableau 1. A l'aide de ces données et en prenant pour les grandeurs physicochimiques des valeurs moyennes maintenues identiques pour l'ensemble des essais, il est possible d'évaluer les différentes efficacités introduites précédemment. La comparaison entre les valeurs calculées et expérimentales des efficacités de dépôt est effectuée sur les figures 2 et 3.

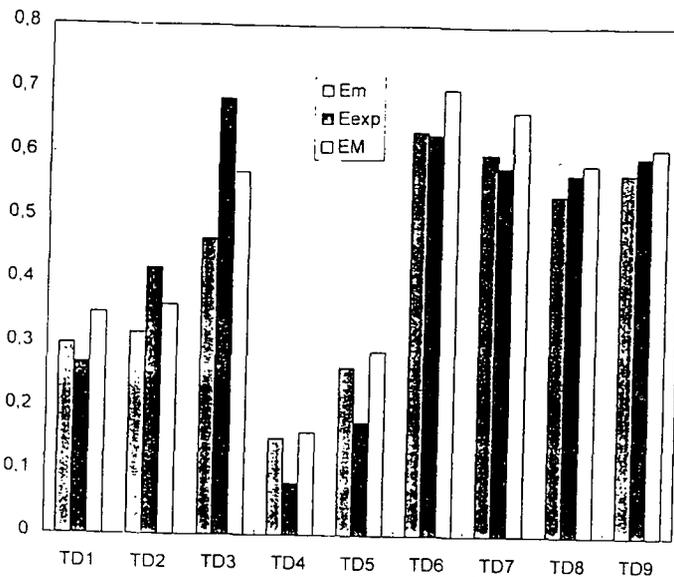


Figure 2 : Comparaison entre les efficacités expérimentales et calculées, les dépôts par thermo et diffusio-phorèse étant évalués simultanément.

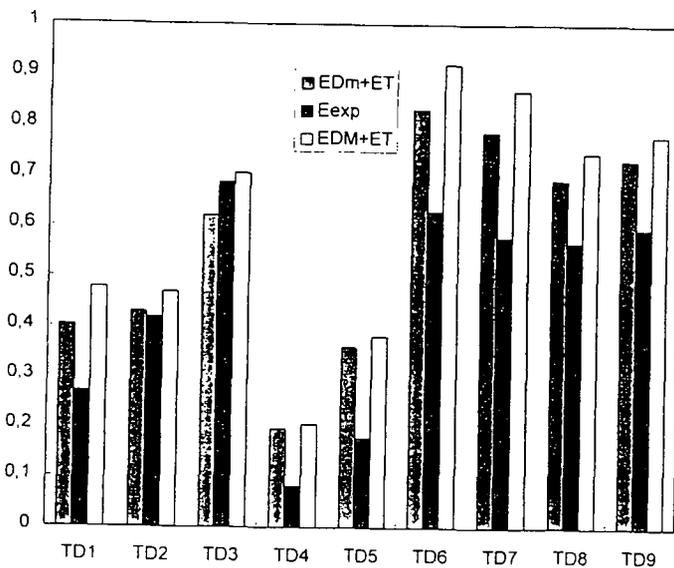


Figure 3 : Comparaison entre les efficacités expérimentales et calculées, les dépôts par thermo et diffusio-phorèse étant évalués de manière indépendante.

La figure 1 compare les efficacités expérimentales aux efficacités E_m et E_M évaluées à l'aide de la modélisation associant les dépôts par diffusio et thermophorèse. L'accord est satisfaisant et même très satisfaisant lorsque les dépôts par thermophorèse deviennent plus notables. Les valeurs de E_m et E_M restent dans tous les cas peu différentes. En prenant pour l'efficacité E une valeur moyenne arithmétique, on évalue l'efficacité à mieux de 10% et souvent à mieux de 5%.

La figure 2 compare les efficacités expérimentales aux efficacités obtenues en admettant que les dépôts par thermophorèse et diffusio-phorèse sont indépendants. Pour toutes les expériences, les valeurs calculées sont plus grandes que les valeurs mesurées. L'écart moyen reste de l'ordre de 20%. Même si cette incertitude reste acceptable pour un code de calcul de sûreté, on peut affirmer que l'estimation simultanée des deux dépôts doit être préférée à une estimation séparée.

IV - CONCLUSION

L'analyse effectuée et la confrontation à des résultats expérimentaux montrent que, comme dans le cas de thermophorèse seule, il est possible d'estimer avec précision les dépôts simultanés par diffusio

et thermophorèse à partir de la connaissance de grandeurs obtenues par l'étude thermohydraulique du fluide en écoulement. La connaissance du débit d'eau condensée et de la température moyenne du fluide à la sortie du système sont suffisantes pour évaluer l'efficacité des dépôts par les mécanismes de diffusion et thermophorèse. Pour le développement d'un code de calcul intégrant ces deux types de dépôt, il s'avère donc indispensable de disposer d'un modèle thermohydraulique représentant au mieux le phénomène de condensation en présence d'incondensable.

NOMENCLATURE

C : concentration massique d'aérosols	(kg m ⁻³)
u : vitesse moyenne de la phase fluide	(m s ⁻¹)
D : diamètre de la conduite	(m)
T : température	(K)
v _S : vitesse de Stephan	(m s ⁻¹)
v _{TH} : vitesse de thermophorèse	(m s ⁻¹)
v _D : vitesse de diffusiophorèse	(m s ⁻¹)
x _e : fraction molaire de vapeur d'eau dans la phase fluide	
P : pression statique totale	(Pa)
C _p : chaleur spécifique massique	(J kg ⁻¹ K ⁻¹)
C _p [*] : chaleur spécifique molaire	(J mole ⁻¹ K ⁻¹)
K _D : constante de Waldmann de diffusiophorèse	
K _T : constante de thermophorèse	
E _c : efficacité de condensation	
E _T : efficacité de dépôt par thermophorèse	
E _D : efficacité de dépôt par diffusiophorèse	
E _m : efficacité de dépôt des aérosols pour la modélisation avec la valeur de K _{Dm}	
E _M : efficacité de dépôt des aérosols pour la modélisation avec la valeur de K _{DM}	
Pr : nombre de Prandtl	

$$\theta = \left(C_{pe}^* T - C_{pe}^{*L} T_W \right) / \bar{C}_p^*$$

Indices :	0 : entrée de la conduite
	s : sortie de la conduite
	w : paroi de la conduite
	e : eau
	L : eau à l'état liquide
	- : valeur moyenne entre l'entrée et la sortie.

Références

- Waldman, L., "On the motion of spherical particles in homogeneous gases. Rarefied gas dynamics". Academic Press, New York (1961)
- Zoulalian, A., Th. Albiol, "Analyse des interactions fluide-paroi dans un système ouvert à partir de la connaissance de la distribution des temps de séjour. Applications aux dépôts d'aérosols par thermophorèse", The Can. J. of Chem. Eng., 73, 800-807 (1995)
- Zoulalian, A., Th. Albiol, "Evaluation des dépôts d'aérosols par thermo et diffusiophorèse lors de l'écoulement dans une conduite cylindrique. Etude théorique et applications" (soumis à publication à la revue The Can. J. of Chem. Eng.)

Resuspension de particules: mesure simultanée de la hauteur et de la vitesse de particules le long d'une paroi

H. Bultynck, G. Gréhan, G. Gouesbet

Laboratoire d'Energétique des Systèmes et Procédés

URA CNRS 230 - CORIA - INSA de Rouen

B.P. 8 - Place Emile Blondel

76131 Mt-St-Aignan Cédex - France

D. Boulaud

Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire

CEA Bâtiment 389, CE / Saclay

91191 Gif-Sur-Yvette Cédex - France

Résumé: Ce papier présente une technique locale de mesure de la vitesse et de la hauteur de passage de particules lors de leur resuspension dans une couche limite turbulente. Une description de la technique, du dispositif expérimental et du logiciel de traitement et d'acquisition est présentée. Des résultats sur jets de gouttes sont rapportés.

Abstract: This work presents a local quantitative technique to perform measurements of the velocity and of the passing height of particles during their resuspension in a turbulent boundary layer. A description of the optical device and of the acquisition and treatment software are given. Then some preliminary results on line of droplets are reported.

1 Introduction

La resuspension de particules intervient dans de nombreux domaines tels que la pollution de l'air (dispersion de particules radioactives dans l'industrie nucléaire) ou la contamination de surface (altération du bon fonctionnement de dispositifs microélectroniques). La resuspension correspond à un détachement aérodynamique de particules inférieures à $100\mu m$ et implique des mécanismes physiques complexes causés par un grand nombre de forces différentes.

Récemment, de nombreux travaux théoriques ont été effectués dans le but de modéliser la resuspension. Les premiers travaux théoriques (Corn [1, 2] puis Punjraht [3]) ont considéré un équilibre des forces agissant sur les particules: si les forces répulsives sont supérieures aux forces adhésives appliquées à la particule alors cette dernière est mise en resuspension.

Cependant grâce aux premières observations de Kline et al [4] et de Corino et Brodkey [5], la notion de "bursts" (ou bouffées) turbulents qui périodiquement et localement pénètrent la couche limite est apparue. Cette notion de bouffées turbulentes fournissant la force nécessaire au détachement des particules semble plus adaptée à la réalité expérimentale.

De nombreuses études expérimentales ont été aussi effectuées, la plupart du temps dans une soufflerie. Parmi les plus récentes, Braaten et al [6, 7, 8] ont observé deux mécanismes de resuspension:

- . tout d'abord, une courte période pendant laquelle le taux de resuspension est très important
- . puis, une période beaucoup plus longue (qui se produit après la première) pendant laquelle le taux de resuspension varie inversement par rapport au temps.

Malgré l'intérêt croissant porté à l'étude de la resuspension de particules, les mécanismes de resuspension ne sont toujours pas maîtrisés. Le mouvement de la particule lors de la resuspension est méconnu, la particule ne peut quitter la paroi en glissant d'après les caractéristiques des forces d'adhésions. Cependant, la particule peut rouler avant d'être resuspendue. D'après Ziskind et al [9], le moment hydrodynamique approche et parfois dépasse le moment des forces de surface. Pour Ziskind et al, l'étude des moments et de leurs effets sur la resuspension demeure la voie la plus prometteuse.

Une méthode expérimentale dédiée à améliorer notre connaissance du mouvement de la particule lors de la resuspension semble donc nécessaire pour mieux comprendre les phénomènes de resuspension, en complément des mesures globales de taux de resuspension.

Cette présentation est dédiée à la description d'une telle sonde. Celle-ci est organisée comme suit. La section 2 rappelle le principe de la méthode proposée. La section 3 présente le montage réalisé pour tester les prédictions de la section 2. La section 4 est dédiée à la description succincte du logiciel d'acquisition et de traitement du signal. La section 5 présente les résultats de mesures sur des lignes de gouttes calibrées.

2 Méthode optique

Le dispositif employé, afin de mesurer simultanément la vitesse et la hauteur de passage à la paroi de particules lors de leur resuspension dans une couche limite turbulente, comprend d'une part une sonde d'Anémométrie Doppler Laser (ADL) conventionnelle d'une longueur d'onde λ_1 à laquelle est superposée une sonde créée par deux feuilles laser cylindriques (DCW, Dual Cylindrical Wave en anglais) d'une longueur d'onde λ_2 .

La sonde ADL est une sonde classique réalisée par l'intersection de deux faisceaux circulaires gaussiens dont les centres sont confondus. Les franges d'interférences réalisées sont parallèles et donc de pas constant.

La sonde DCW est moins connue. De telles sondes ont été principalement développées pour la mesure de gradient de vitesse dans la couche limite et la mesure de taille de gouttes [11, 12, 13, 14, 15]. La figure 1 explique la création d'une telle sonde: deux faisceaux circulaires gaussiens non parallèles sont focalisés par une lentille cylindrique. Les deux faisceaux sont donc séparés d'une distance s_b dans le plan focal de la lentille. Puis pour des distances Z_0 positives les deux feuilles lasers se superposent créant un système de franges d'interférence en éventail. C'est à dire que le pas des franges augmente au fur et à mesure que Z_0 croît. Une étude d'un tel système a été présenté par ailleurs [10].

La figure 2 présente l'évolution de l'interfrange en fonction de la distance au plan image. Sur 1,2mm, l'évolution de l'interfrange est linéaire avec la distance. L'interfrange évoluant de 4 à 18 μ m.

Lorsqu'une particule traverse le volume de mesure commun, deux signaux de fréquences différentes sont obtenus. La fréquence liée au système ADL permet la détermination de la vitesse de la particule et le rapport des deux fréquences fournit la hauteur de passage de la particule dans le volume de mesure (figure 3).

3 Réalisation expérimentale

Une sonde prototype a été réalisée avec des microdéplacements. La figure 4 représente le schéma de principe de cette sonde. Un cube dichroïque C partage le faisceau laser multirajés en deux faisceaux α et β de longueur d'onde 0,488 μ m (bleu) et 0,514 μ m (vert). Le faisceau α est dédié au système ADL et le faisceau β au système DCW.

Un ensemble optique partage le faisceau β en deux faisceaux non parallèles (angle d'environ 5° entre les faisceaux). Ces deux faisceaux sont incidents sur la lentille cylindrique

Resuspension de particules: mesure simultanée de la hauteur et de la vitesse de particules le long d'une paroi

H. Bultynck, G. Gréhan, G. Gouesbet

Laboratoire d'Energétique des Systèmes et Procédés

URA CNRS 230 - CORIA - INSA de Rouen

B.P. 8 - Place Emile Blondel

76131 Mt-St-Aignan Cédex - France

D. Boulaud

Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire

CEA Bâtiment 389, CE / Saclay

91191 Gif-Sur-Yvette Cédex - France

Résumé: Ce papier présente une technique locale de mesure de la vitesse et de la hauteur de passage de particules lors de leur resuspension dans une couche limite turbulente. Une description de la technique, du dispositif expérimental et du logiciel de traitement et d'acquisition est présentée. Des résultats sur jets de gouttes sont rapportés.

Abstract: This work presents a local quantitative technique to perform measurements of the velocity and of the passing height of particles during their resuspension in a turbulent boundary layer. A description of the optical device and of the acquisition and treatment software are given. Then some preliminary results on line of droplets are reported.

1 Introduction

La resuspension de particules intervient dans de nombreux domaines tels que la pollution de l'air (dispersion de particules radioactives dans l'industrie nucléaire) ou la contamination de surface (altération du bon fonctionnement de dispositifs microélectroniques). La resuspension correspond à un détachement aérodynamique de particules inférieures à $100\mu\text{m}$ et implique des mécanismes physiques complexes causés par un grand nombre de forces différentes.

Récemment, de nombreux travaux théoriques ont été effectués dans le but de modéliser la resuspension. Les premiers travaux théoriques (Corn [1, 2] puis Punjraath [3]) ont considéré un équilibre des forces agissant sur les particules: si les forces répulsives sont supérieures aux forces adhésives appliquées à la particule alors cette dernière est mise en resuspension.

Cependant grâce aux premières observations de Kline et al [4] et de Corino et Brodkey [5], la notion de "bursts" (ou bouffées) turbulents qui périodiquement et localement pénètrent la couche limite est apparue. Cette notion de bouffées turbulentes fournissant la force nécessaire au détachement des particules semble plus adaptée à la réalité expérimentale.

De nombreuses études expérimentales ont été aussi effectuées, la plupart du temps dans une soufflerie. Parmi les plus récentes, Braaten et al [6, 7, 8] ont observé deux mécanismes de resuspension:

- . tout d'abord, une courte période pendant laquelle le taux de resuspension est très important
- . puis, une période beaucoup plus longue (qui se produit après la première) pendant laquelle le taux de resuspension varie inversement par rapport au temps.

Malgré l'intérêt croissant porté à l'étude de la resuspension de particules, les mécanismes de resuspension ne sont toujours pas maîtrisés. Le mouvement de la particule lors de la resuspension est méconnu, la particule ne peut quitter la paroi en glissant d'après les caractéristiques des forces d'adhésions. Cependant, la particule peut rouler avant d'être resuspendue. D'après Ziskind et al [9], le moment hydrodynamique approche et parfois dépasse le moment des forces de surface. Pour Ziskind et al, l'étude des moments et de leurs effets sur la resuspension demeure la voie la plus prometteuse.

Une méthode expérimentale dédiée à améliorer notre connaissance du mouvement de la particule lors de la resuspension semble donc nécessaire pour mieux comprendre les phénomènes de resuspension, en complément des mesures globales de taux de resuspension.

Cette présentation est dédiée à la description d'une telle sonde. Celle-ci est organisée comme suit. La section 2 rappelle le principe de la méthode proposée. La section 3 présente le montage réalisé pour tester les prédictions de la section 2. La section 4 est dédiée à la description succincte du logiciel d'acquisition et de traitement du signal. La section 5 présente les résultats de mesures sur des lignes de gouttes calibrées.

2 Méthode optique

Le dispositif employé, afin de mesurer simultanément la vitesse et la hauteur de passage à la paroi de particules lors de leur resuspension dans une couche limite turbulente, comprend d'une part une sonde d'Anémométrie Doppler Laser (ADL) conventionnelle d'une longueur d'onde λ_1 à laquelle est superposée une sonde créée par deux feuilles laser cylindriques (DCW, Dual Cylindrical Wave en anglais) d'une longueur d'onde λ_2 .

La sonde ADL est une sonde classique réalisée par l'intersection de deux faisceaux circulaires gaussiens dont les centres sont confondus. Les franges d'interférences réalisées sont parallèles et donc de pas constant.

La sonde DCW est moins connue. De telles sondes ont été principalement développées pour la mesure de gradient de vitesse dans la couche limite et la mesure de taille de gouttes [11, 12, 13, 14, 15]. La figure 1 explique la création d'une telle sonde: deux faisceaux circulaires gaussiens non parallèles sont focalisés par une lentille cylindrique. Les deux faisceaux sont donc séparés d'une distance s_b dans le plan focal de la lentille. Puis pour des distances Z_0 positives les deux feuilles lasers se superposent créant un système de franges d'interférence en éventail. C'est à dire que le pas des franges augmente au fur et à mesure que Z_0 croît. Une étude d'un tel système a été présenté par ailleurs [10].

La figure 2 présente l'évolution de l'interfrange en fonction de la distance au plan image. Sur 1,2mm, l'évolution de l'interfrange est linéaire avec la distance. L'interfrange évoluant de 4 à 18 μ m.

Lorsqu'une particule traverse le volume de mesure commun, deux signaux de fréquences différentes sont obtenus. La fréquence liée au système ADL permet la détermination de la vitesse de la particule et le rapport des deux fréquences fournit la hauteur de passage de la particule dans le volume de mesure (figure 3).

3 Réalisation expérimentale

Une sonde prototype a été réalisée avec des microdéplacements. La figure 4 représente le schéma de principe de cette sonde. Un cube dichroïque C partage le faisceau laser multirais en deux faisceaux α et β de longueur d'onde 0,488 μ m (bleu) et 0,514 μ m (vert). Le faisceau α est dédié au système ADL et le faisceau β au système DCW.

Un ensemble optique partage le faisceau β en deux faisceaux non parallèles (angle d'environ 5° entre les faisceaux). Ces deux faisceaux sont incidents sur la lentille cylindrique

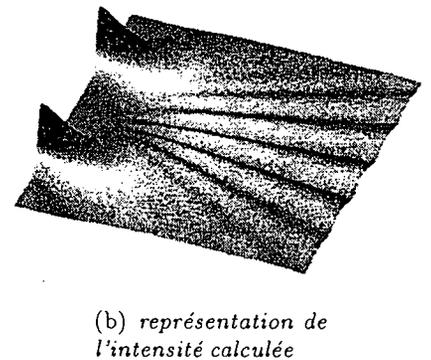
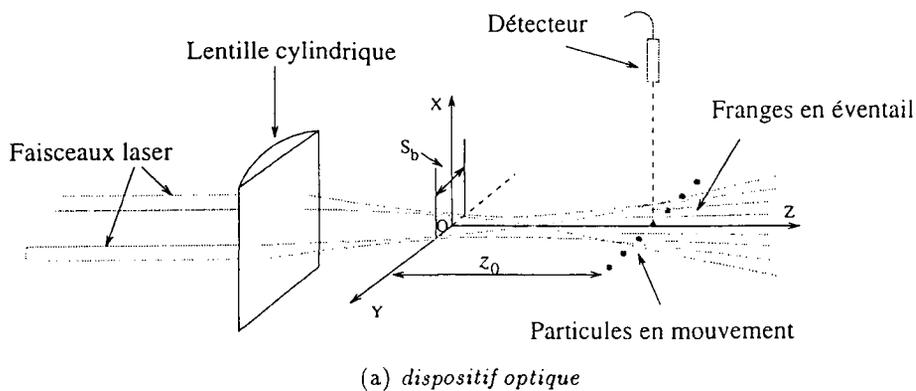


FIG. 1 - Description du système DCW

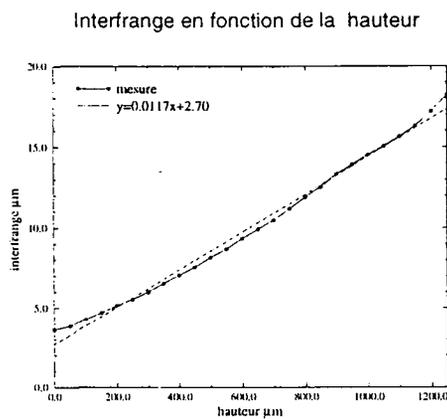
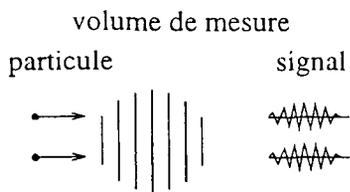


FIG. 2 -

Mesure de la vitesse



Mesure de la hauteur

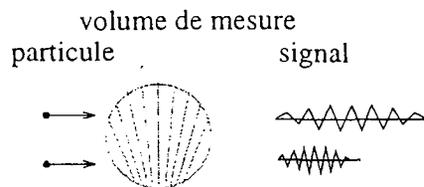


FIG. 3 - Description des deux sondes

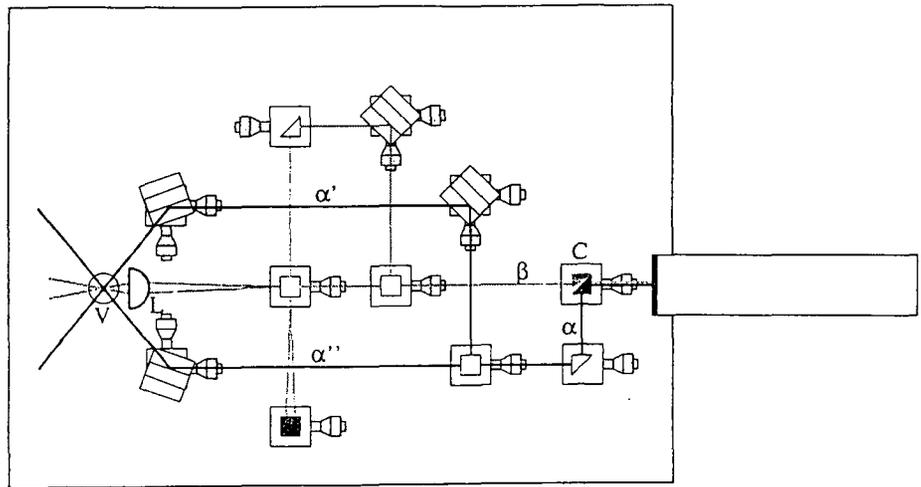


FIG. 4 - Description du dispositif expérimental

L de focale $6,5\text{mm}$.

Ainsi, un système de franges en éventail est créé en retrait du plan focal de cette lentille.

Le système ADL est réalisé par l'intersection des faisceaux α' et α'' et le volume de mesure formé V se superpose à celui du système DCW.

La collection de la lumière diffusée est effectuée par l'intermédiaire d'un système de filtres et de deux diodes à avalanches. L'angle de collection de la lumière diffusée est de 45° vers l'avant. Les deux diodes à avalanches transforment le signal optique en signal électrique, ce dernier étant filtré. Les hautes fréquences sont supprimées ainsi que la basse fréquence correspondant à la traversée du faisceau.

4 Logiciel d'acquisition et de traitement

Un logiciel permettant l'acquisition (pilotage d'un oscilloscope numérique) et de traitement des signaux Doppler issus d'un système à deux détecteurs a été développé.

Ce logiciel a été réalisé sous le langage Pascal Objet (Delphi de Borland). Les données sont transférées par blocs de 500, 2500 ou 10k octets.

Le trigger de l'oscilloscope permet le déclenchement et assure la présence d'un événement dans le bloc transféré, puis le signal enregistré est transféré à un PC pour traitement. Le programme détecte ensuite à partir notamment d'un trigger d'enveloppe tous les événements, c'est à dire tous les signaux Doppler présents dans le bloc de données transférées. Tous les événements détectés sont alors validés sous certains critères par le logiciel. Ces critères sont entre autre un seuil de niveau de bruit maximum des signaux, une gamme de vitesse et de hauteur mesurable, le rapport d'intensité entre les voies...

Les figures 5 et 6 correspondent à l'interface graphique du logiciel en mode acquisition.

Ainsi, la fenêtre située dans le coin supérieur gauche représente les derniers signaux Doppler ADL et DCW, détectés par le logiciel dans le dernier bloc de données transférées. Des informations individuelles et statistiques sur les signaux sont données. La fréquence de chaque signal y est donnée ainsi que le rapport signal sur bruit moyen des deux signaux. La fréquence de ces signaux est déterminée par une FFT (Transformée de Fourier Rapide). Le nombre de points utilisés pour le calcul des fréquences est un paramètre (puissance de

deux) réglable par l'utilisateur.

La fenêtre "Sources de rejet" correspond à la description des causes de non validation de signaux.

La fenêtre inférieure représente la vitesse et le rapport des fréquences en fonction du temps de mesure, c'est à dire du temps de resuspension. Les points clairs décrivent la vitesse et les noirs le rapport de la fréquence du signal Doppler DCW et du signal Doppler ADL.

5 Résultats illustratifs

Des mesures sur des jets de gouttelettes d'alcool d'un diamètre $100\mu m$, générées par un TSI 3050 de diamètre $100\mu m$ ont été effectuées. Le jet a été déplacé dans le volume de mesure commun aux deux systèmes. Les résultats présentés figures 5 et 6 correspondent à un déplacement du jet d'environ $200\mu m$.

Les vitesses de gouttes mesurées sont de $2,2m.s^{-1}$. La différence des rapports de fréquences sont visibles entre les figures 5 et 6. Ces rapports de fréquences DCW/ADL sont estimés à 0,45 pour la figure 5 et à 0,65 pour la figure 6. A ces rapports de fréquence correspondent deux interfranges $6,7\mu m$ (Fig. 5) et $4,6\mu m$ (Fig. 6), la valeur de l'interfrange du système ADL étant de $3\mu m$. Et ces deux interfranges correspondent d'après la figure 2 à une différence de hauteur de $180\mu m$.

La variation du rapport des fréquences à une hauteur donnée peut être due aux vibrations du générateur de gouttelettes et aussi à la taille importante des gouttelettes utilisées ($100\mu m$).

6 Conclusion

Un dispositif expérimental dédié à la mesure simultanée de la vitesse et de la hauteur de passage de particules lors de leur resuspension a été conçu et réalisé, ainsi que le logiciel de traitement et d'acquisition correspondant. Des mesures avec un jet plus stable et des plus petites gouttelettes seront effectuées pour vérifier une diminution de la variation du rapport des fréquences pour une hauteur fixée.

La réalisation d'une sonde miniature basée sur des fibres optiques est en cours, afin de réaliser des mesures de resuspension de particules dans une veine de soufflerie.

Références

- [1] M. Corn. The Adhesion of Solid Particles to Solid Surfaces. *Journal of the Air Pollution Control Association*, 11(12):566-567, 1961.
- [2] M. Corn and F. Stein. Re-entrainment of Particles from a Plane Surface. *American Industrial Hygiene Association Journal*, 26:325-336, 1965.
- [3] J. J. Punjrath and D. R. Heldman. Mechanisms of Small Particle Re-entrainment from Flat Surfaces. *J. Aerosol Sci.*, 3:429-440, 1972.
- [4] S. J. Kline, W. C. Reynolds, F. A. Schraub, and P. W. Runstadler. The Structure of Turbulent Boundary Layers. *J. Fluid. Mech.*, 30:741-773, 1967.
- [5] E. R. Corino et R. S. Brodkey. A Visual Investigation of the Wall Region in Turbulent Flow. *J. Fluid. Mech.*, 37:1-30, 1969.

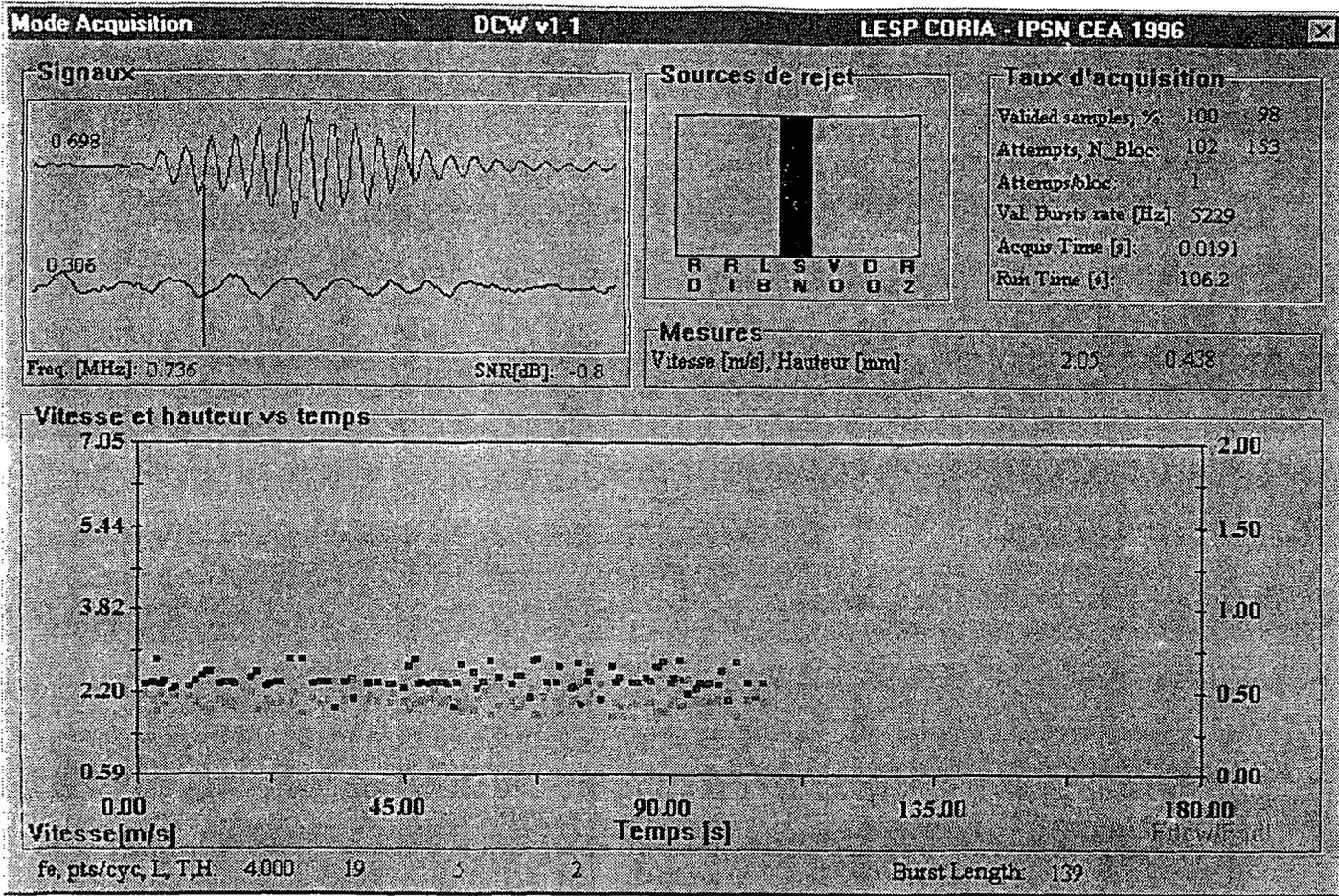


Fig. 5

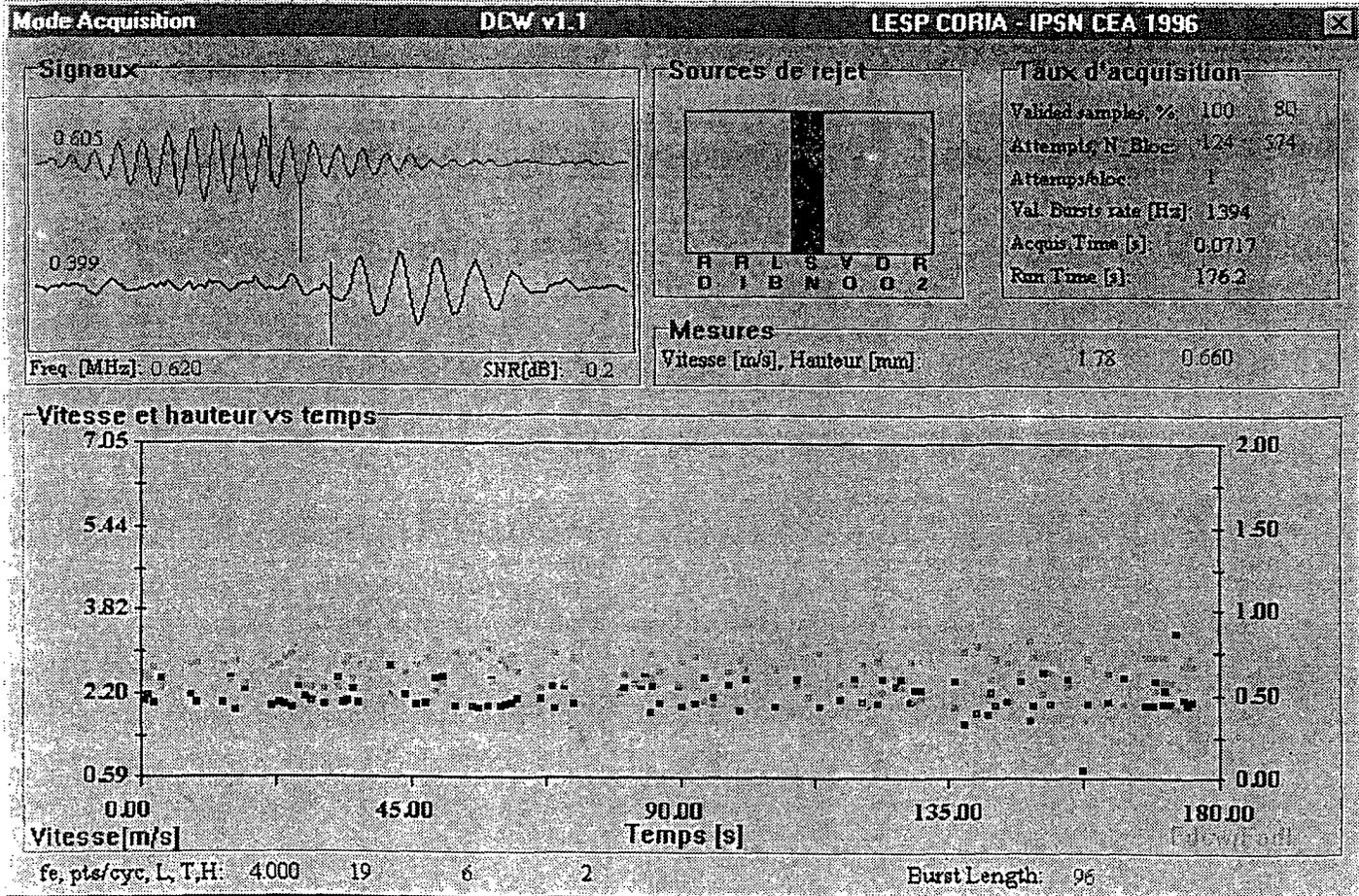


Fig. 6

- [6] D. A. Braaten, K. T. Paw, and R. H. Shaw. Coherent Turbulent Structures and Particle Detachment in Boundary Layer Flows. *J. Aerosol Sci.*, 19(7):1183-1186, 1988.
- [7] D. A. Braaten, K. T. Paw, and R. H. Shaw. Particle Resuspension in a Turbulent Boundary Layer - Observed and Modeled. *J. Aerosol Sci.*, 21(5):613-628, 1990.
- [8] D. A. Braaten. Wind Tunnel Experiments of Large Particle Reentrainment-Deposition and Development of Large Particle Scaling Parameters. *Aerosol Science and Technology*, 21:157-169, 1994.
- [9] G. Ziskind and M. Fichman et C. Gutfinger. Resuspension of Particulates from Surfaces to Turbulent Flows - Review and Analysis. *J. Aerosol Sci.*, 26(4):613-644, 1995.
- [10] H. Bultynck, G. Gréhan, G. Gouesbet, and D. Boulaud. Resuspension of Particles: Measurements of Kinematic Properties. *J. Aerosol Sci.*, 27:S507-S508, 1996.
- [11] A. A. Naqwi, X. Liu, and F. Durst. Dual-Cylindrical Wave Method for Particle Sizing. *Part. Part. Syst. Character.*, 7:45-53, 1990.
- [12] A. A. Naqwi, X. Liu, and F. Durst. Evaluation of the Dual-Cylindrical Wave Laser Technique for Sizing of Liquid Droplets. *Part. Part. Syst. Character.*, 9:44-51, 1992.
- [13] A. A. Naqwi and S. Petrick. Fiber Optic Dual-Cylindrical Wave Sensor for Measurement of Wall Velocity Gradient in a Fluid Flow. *Applied Optics*, 32(30):6128-6131, 1993.
- [14] A. A. Naqwi. Innovative Phase Doppler Systems and their Applications. *Third International Congress on Optical Particle Sizing*, 1993.
- [15] G. Gréhan, K. F. Ren, G. Gouesbet, A. Naqwi, and F. Durst. Evaluation of a Particle Sizing Technique Based on Laser Sheets. *Part. Part. Syst. Character.*, 11:101-106, 1994.

DETERMINATION DU COEFFICIENT DE DIFFUSION DU ^{218}Po

J. MALET^{1,2}, N. MONTASSIER¹, D. BOULAUD¹, A. RENOUX²

¹Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, Département de Prévention et d'Etude des Accidents,
Service d'Etudes et de Recherches en Aérocontamination et en Confinement

CEA/Saclay, bât. 389, 91191 GIF-SUR-YVETTE CEDEX, France

² Université Paris XII, Avenue du Général de Gaulle

Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations

94010 CRETEIL CEDEX, France

Mots-clés

diffusion, ^{218}Po , aérosol nanométrique, méthode des deux-filtres, écoulement laminaire

RESUME

On s'intéresse ici au coefficient de diffusion brownienne du premier descendant du radon, le ^{218}Po . La méthode choisie pour étudier ce coefficient est la méthode des deux filtres : la détermination des fractions pénétrantes théorique et expérimentale du ^{218}Po dans un tube cylindrique doté d'un filtre à chacune de ses extrémités permet de remonter au coefficient de diffusion de cet aérosol. Une étude numérique (Malet et al. 1995)¹ a montré l'intérêt de l'utilisation d'un code de calcul pour corriger la valeur théorique de la fraction pénétrante du ^{218}Po . Nos expériences présentent une bonne corrélation avec le code de calcul pour un coefficient de diffusion apparent du ^{218}Po de $5,3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. Toutefois, la gamme de coefficients de diffusion obtenus reste dispersée (de $2 \cdot 10^{-6}$ à $9 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$). On étudie alors expérimentalement l'influence de différents paramètres sur la détermination du coefficient de diffusion du ^{218}Po : pureté du gaz mélangé au radon, activité volumique en radon, charge électrique du ^{218}Po et état de la surface intérieure du tube de diffusion.

ABSTRACT

The diffusion coefficient of the first radon daughter, the ^{218}Po , is studied here. The method used to determine the diffusion coefficient of ^{218}Po is the so-called two-filter method : by theoretical calculation and experimental measurement of the penetration fraction of ^{218}Po through a circular-cross section tube, with filters at each end, we can determine the ^{218}Po diffusion coefficient. A numerical code was used to obtain a more accurate theoretical penetration fraction of ^{218}Po (Malet et al. 1995)¹. For the series of experiments carried out, good correlation was obtained for an apparent ^{218}Po diffusion coefficient of $5.3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. However, the values of this coefficient ranged from $2 \cdot 10^{-6}$ to $9 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. We also studied experimentally the influence of different parameters on the ^{218}Po diffusion coefficient determination such as purity of the gas mixed with radon, radon concentration, electric charge of the ^{218}Po , and surface roughness of the diffusion tube.

1 Malet J., Montassier N., Boulaud D., Renoux A. (1995) Diffusion des descendants à vie courte du radon dans un tube cylindrique en écoulement laminaire, Actes des 11^{èmes} journées d'études sur les aérosols, Paris, 5-6 déc. 1995, p. 56-61

INTRODUCTION

Les valeurs de la vitesse de dépôt du ^{218}Po , premier descendant à vie courte du radon, varient beaucoup dans la littérature. Le ^{218}Po étant un aérosol nanométrique, le phénomène de dépôt prépondérant est le dépôt par diffusion brownienne, dépendant essentiellement du coefficient de diffusion brownienne de l'aérosol. Le but de cette étude est de déterminer une valeur de ce coefficient de diffusion.

Pour cela, on détermine d'abord la fraction pénétrante du ^{218}Po dans un tube cylindrique en écoulement laminaire (méthode des deux-filtres, 1-7). Une activité volumique connue de radon est envoyée dans un tube cylindrique, à chaque extrémité duquel se trouve un filtre. Le filtre amont retient toutes les particules et laisse passer le radon. Le filtre aval collecte la fraction pénétrante du ^{218}Po formé dans le tube. Le couplage des valeurs expérimentales et numériques de la fraction pénétrante permet ensuite de calculer le coefficient de diffusion brownienne de l'aérosol.

Une étude numérique préalable (3-4) montre l'intérêt de l'utilisation d'un code de calcul pour corriger la valeur théorique de la fraction pénétrante du ^{218}Po . On présente ici les expériences effectuées à la suite de cette étude numérique.

DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Notre dispositif expérimental est présenté figure 1.

De l'air comprimé purifié est envoyé à un débit Q_s dans une source de ^{226}Ra (source Pylon) et à un débit Q_a dans un circuit de dilution. L'activité volumique en ^{222}Rn obtenue est directement fonction de la somme des débits et de l'activité de la source de radium ^{226}Ra . Un volume dit « de vieillissement » est placé en aval de la source afin de permettre la désintégration d'un isotope du ^{222}Rn , le thoron, de période radioactive courte, qui pourrait émaner des impuretés de la source de ^{226}Ra . Le contrôle de l'activité volumique en radon est effectué avec un détecteur silicium (sonde Barasol, société Algade). Des capteurs placés au niveau de cette sonde nous donnent la pression, l'humidité et la température de l'expérience. Le radon est ensuite injecté dans le tube de diffusion. En amont de ce tube est placé un filtre à fibres retenant les aérosols et les descendants du radon préalablement formés. Un filtre aval (membrane Millipore AW19) collecte la fraction pénétrante du ^{218}Po formé dans le tube. L'activité volumique du ^{218}Po en amont de ce filtre est déterminée avec une méthode de comptage global des particules alpha émises par les descendants du radon collectés sur le filtre (5). Ce comptage radioactif est effectué à l'aide d'un photomultiplicateur et d'un scintillateur au Sulfure de Zinc pendant trois périodes distinctes dans l'heure suivant le prélèvement. En aval du tube de diffusion est placé un compteur volumétrique permettant une mesure précise du volume échantillonné.

Connaissant le temps de séjour dans le tube et l'activité volumique du radon, on peut déterminer la concentration d'atomes de ^{218}Po formés dans le tube. La fraction pénétrante expérimentale s'obtient alors en effectuant le rapport de l'activité volumique en sortie du tube à l'activité volumique des aérosols formés dans le tube.

Tous les paramètres susceptibles d'agir sur la détermination expérimentale de la fraction pénétrante du ^{218}Po sont contrôlés :

- précision de la mesure de l'activité en radon ; c'est le terme source des équations de transport d'aérosols, il est donc nécessaire d'en connaître sa valeur avec précision. Or il n'existe pas d'étalon primaire de radon. Nous comparons donc quatre méthodes différentes (chambre d'ionisation, détecteur silicium, fiole scintillante, émanation de la source de radium solide). Les bonnes corrélations obtenues permettent de considérer que l'activité en radon est déterminée dans notre expérience avec une bonne précision ;
- constance dans le temps de l'activité en radon ; le terme source doit également être constant dans le temps. Ceci est vérifié avec les différentes méthodes de mesure du radon et sur plusieurs échelles de temps ;
- isolation thermique et électrostatique du tube dans lequel les particules évoluent, assurant ainsi un dépôt entièrement diffusif ;
- choix de la méthode de mesure de l'activité volumique du ^{218}Po : à cet effet, nous testons trois méthodes de comptage radioactif ; celle donnant la plus grande précision de mesure (incertitude relative de 5% environ sur l'activité du ^{218}Po) est retenue.

Ces différentes précautions permettent d'assurer une bonne répétabilité des expériences, répétabilité qui est toutefois vérifiée. Dans ces conditions, l'incertitude globale sur la fraction pénétrante du ^{218}Po pour un intervalle de confiance de 95% est d'environ 8%.

RESULTATS EXPERIMENTAUX

La fraction pénétrante étant fonction du coefficient de diffusion des particules, nous déterminons celui-ci en ajustant la fraction pénétrante calculée numériquement à celle obtenue expérimentalement. On obtient ainsi, pour chaque expérimentation, un coefficient de diffusion du ^{218}Po . On en déduit alors un coefficient de diffusion moyen « apparent » du ^{218}Po de $5,3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ (figure 2). Toutefois, la gamme des coefficients de diffusion obtenus dans toutes nos expériences reste dispersée (de $2 \cdot 10^{-6}$ à $9 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$, figure 2). Deux types d'études expérimentales sont donc menées pour tenter d'expliquer cette dispersion.

- *Etude concernant le phénomène de dépôt du ^{218}Po .*

On s'intéresse à l'influence de l'état de la surface interne du tube de diffusion sur la fraction pénétrante du ^{218}Po . Ainsi, nous testons trois types de surfaces : surface quasi-lisse (hauteur des aspérités ne dépassant pas $0,05 \mu\text{m}$), surface passivée dite « normale », et surface rugueuse (toile abrasive dont les grains, à l'origine, sont d'un diamètre inférieur à $86 \mu\text{m}$). On observe sur la figure 3 que la fraction pénétrante du ^{218}Po est plus importante sur une surface lisse que sur une surface rugueuse. Ces différences observées sur les fractions pénétrantes modifient, dans certains cas jusqu'à 50%, la valeur du coefficient de diffusion du ^{218}Po ainsi déterminée. Par exemple, avec le tube quasi-lisse, la gamme de coefficients de diffusion obtenue s'étend de $2,5$ à $6,5 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$.

- *Etude concernant les variations du coefficient de diffusion brownienne du ^{218}Po .*

Le coefficient de diffusion d'un aérosol varie avec sa taille et sa charge. Or 88% des atomes de ^{218}Po sont chargés à leur naissance (6), et les caractéristiques des processus de neutralisation sont mal connus. Parallèlement à la neutralisation s'opère un phénomène d'agglomération de molécules autour du ^{218}Po , modifiant ainsi la taille du ^{218}Po .

Nous étudions donc macroscopiquement l'influence de différents paramètres sur la taille ou sur la charge du ^{218}Po :

- influence des impuretés gazeuses de l'air porteur ; celles-ci peuvent réagir chimiquement avec le ^{218}Po , modifiant ainsi le coefficient de diffusion de l'aérosol. Des expériences menées avec l'air comprimé purifié de notre montage et avec de l'air reconstitué ultra-pur donnent des résultats sur la fraction pénétrante peu différents, prouvant ainsi l'efficacité du système d'épuration de l'air installé sur notre dispositif expérimental ;

- influence de l'activité volumique en radon ; le radon est émetteur de particules alpha qui ionisent fortement le gaz porteur. Les ions ainsi créés peuvent influencer sur la charge du ^{218}Po . Dans nos expériences, aucune variation notable de la fraction pénétrante du ^{218}Po avec l'activité volumique en radon n'est observée, pour des activités comprises entre 10 et 300 kBq/m^3 ;

- influence de la charge du ^{218}Po ; en appliquant un champ électrique entre la surface du tube de diffusion et une électrode centrale, nous mettons en évidence la coexistence d'aérosols neutres et chargés, qui peuvent, tout en étant de même taille, avoir des coefficients de diffusion différents. Ceci fausserait la détermination du coefficient de diffusion du ^{218}Po par la méthode des deux filtres, qui suppose un aérosol unimodal ;

- influence du temps de séjour moyen de l'air dans le tube ; nos expériences montrent que le coefficient de diffusion du ^{218}Po augmente avec le temps de séjour moyen de l'air dans le tube (étude effectuée sur des temps de séjour variant de 13 s à 300 s). Une hypothèse à cela pourrait être la variation de la fraction chargée avec le temps de séjour.

CONCLUSION

Les différentes expériences que nous avons réalisées nous permettent de déterminer un coefficient de diffusion apparent du ^{218}Po de $5,3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. Elles mettent également en évidence l'influence de certains paramètres sur la détermination du coefficient de diffusion du ^{218}Po (état de la surface interne du tube, temps de séjour moyen de l'air dans le tube, charge électrique du ^{218}Po).

La méthode des deux filtres ne permettant de déterminer qu'un coefficient de diffusion apparent de l'aérosol étudié, nos études à venir devront porter sur la mesure d'une distribution des coefficients de diffusion du ^{218}Po et sur l'évolution de la fraction chargée dans notre expérience. Alors, une meilleure connaissance du coefficient de diffusion du ^{218}Po permettra enfin d'étudier la vitesse de dépôt de cet aérosol, élément particulièrement important dans les modèles de calcul des concentrations en descendants du radon dans les habitations (2).

REFERENCES

1. Fontan J. (1964) Dosage des radioéléments gazeux donnant des produits radioactifs de filiation, Thèse n°218, Université de Toulouse.
2. Gouronnec 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, Rapport CEA R-5695.
3. Malet J., Montassier N., Boulaud D., Renoux A. (1995) Diffusion des descendants à vie courte du radon dans un tube cylindrique en écoulement laminaire, Actes des 11^{èmes} journées d'études sur les aérosols, Paris, 5-6 déc. 1995, 56-61.
4. Malet J. (1996) Etude théorique et numérique du dépôt d'aérosols nanométriques dans un tube cylindrique en écoulement laminaire, avec formation et disparition d'aérosols en vol. Application à l'étude du dépôt de la fraction libre des descendants à vie courte du radon. Rapport d'étude CEA/IPSN/DPEA/SERAC/LPMA 96-03.
5. Nazaroff W.W (1984) Optimizing the total alpha three count technique for measuring concentrations of radon progeny in residences, Health Physics, 46, (2), 395-405.
6. Renoux A. (1965) Thèse Fac-Science Paris, Rapport CEA n° R2771.
7. Thomas J. W. , P. C. LeClare (1970) A study of the two-filter method for radon 222, Health Physics 18, 113-122.

Figure 1 : Le dispositif expérimental

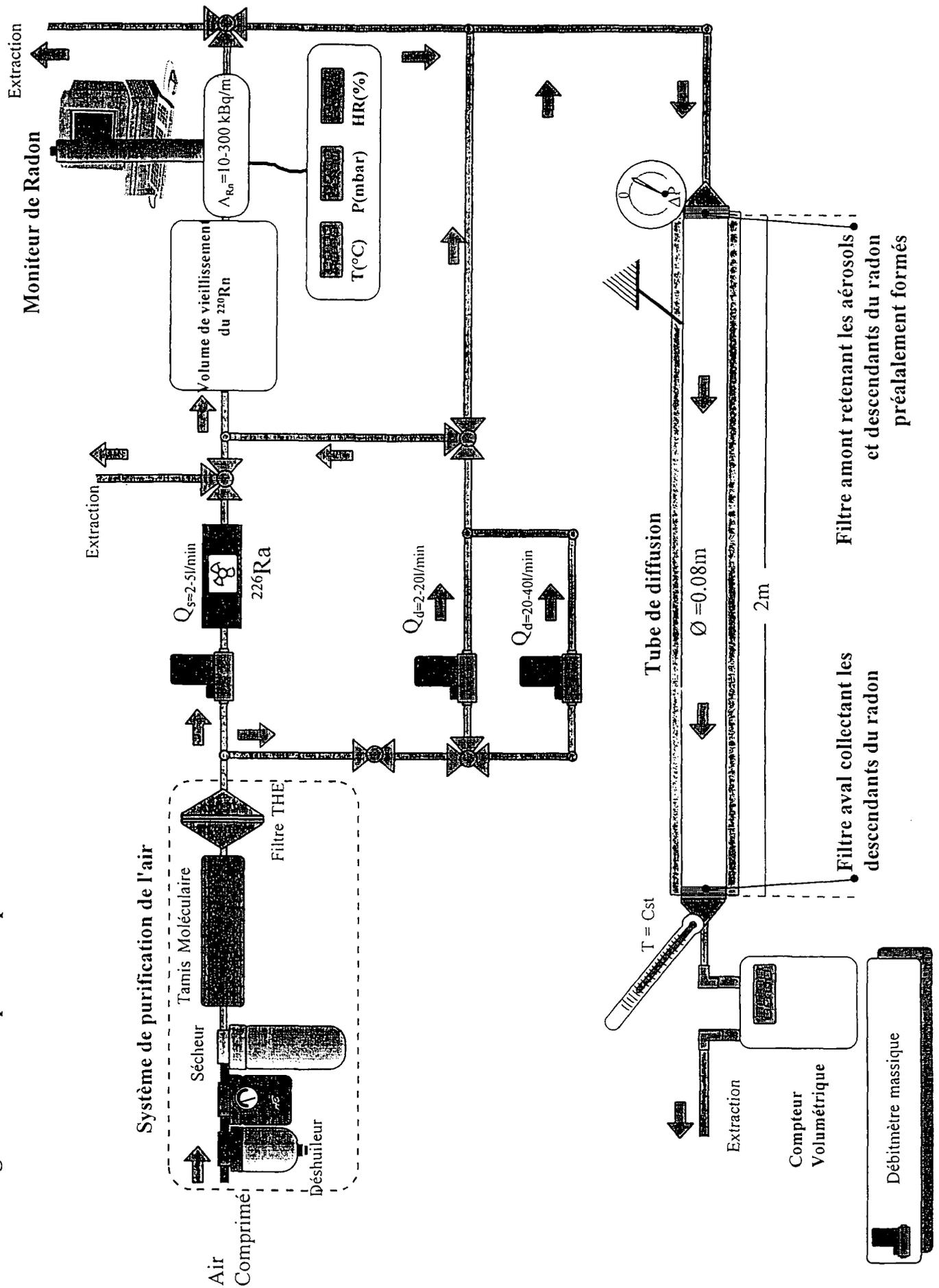


Figure 2 : Fraction pénétrante expérimentale et numérique du ^{218}Po en fonction du rapport de la longueur L du tube sur le débit Q dans le tube.

Valeurs expérimentales pour le tube de surface intérieure passivée (dite "normale")
 Valeurs numériques pour différents coefficients de diffusion du ^{218}Po

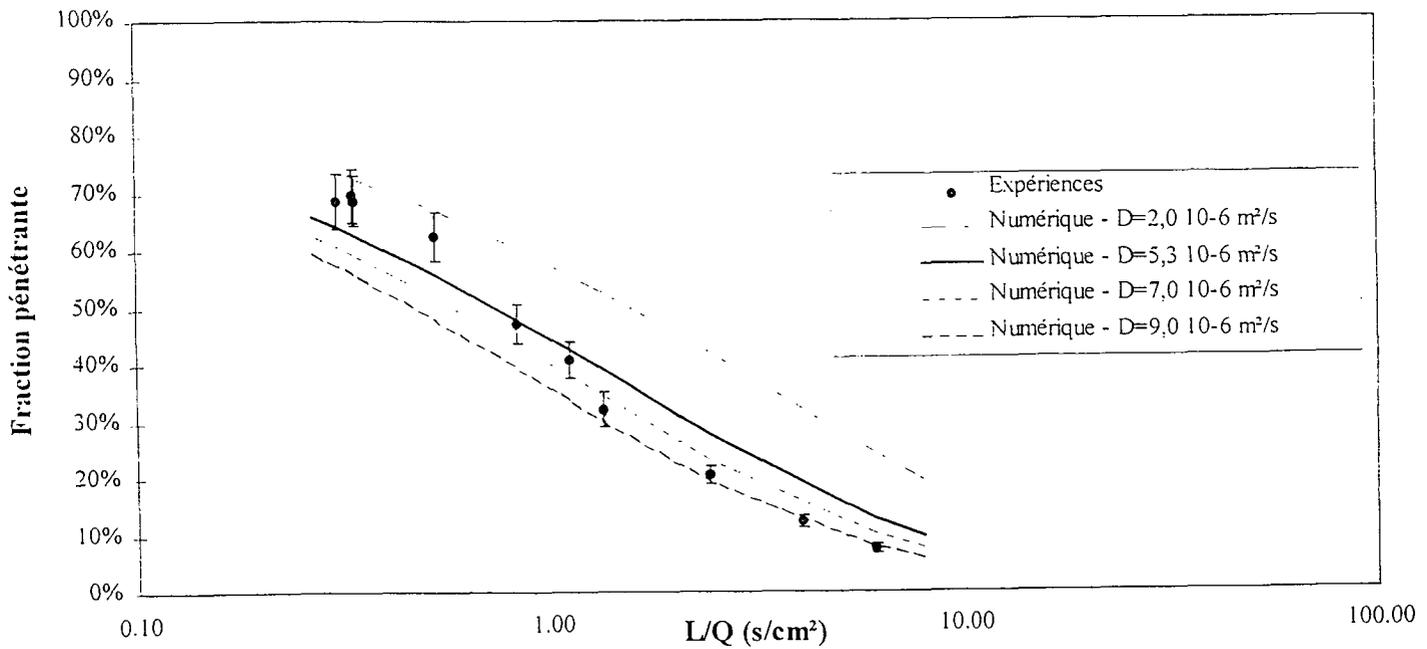
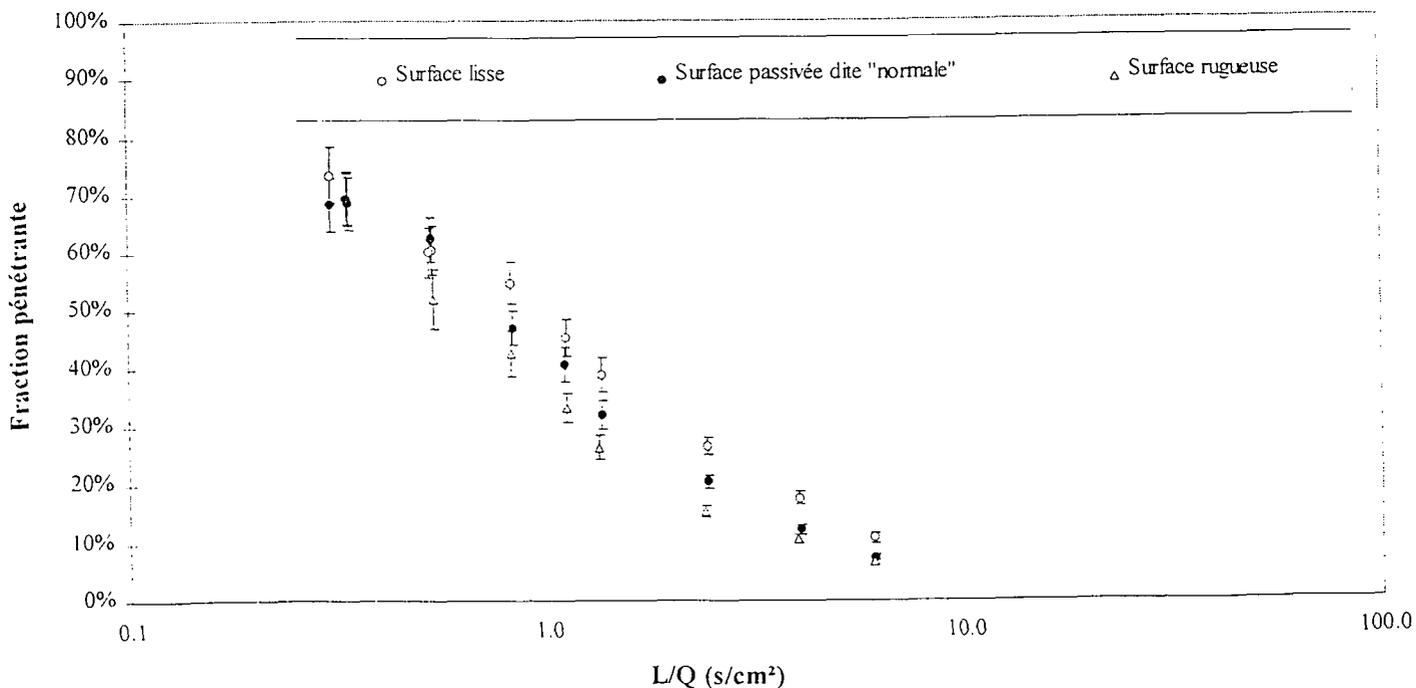


Figure 3 : Fraction pénétrante expérimentale du ^{218}Po en fonction du rapport de la longueur L du tube sur le débit Q dans le tube pour différents états de surface du tube de diffusion.



COMPARAISON DES COMPORTEMENTS D'AEROSOLS DE DOP ET DE GOUTTELETTES D'EAU EN ÉCOULEMENT CRITIQUE EN TUYÈRE CONVERGENTE - DIVERGENTE

Jurski K.*, Géhin E.*, Attoui M.B.***, Piar G.*

*Laboratoire d'Énergétique et de Thermique industrielle de l'Est Francilien (LETIEF)

**Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations (LPATC)

Université Paris XII Val de Marne,

Avenue du Général de Gaulle 94010 Créteil cedex, FRANCE.

E-mail : gehin@univ-paris12.fr

jurski@univ-paris12.fr

Cette étude vise à caractériser en terme de stabilité granulométrique la phase liquide dispersée d'un écoulement diphasique critique en tuyère convergente-divergente. La définition d'un diamètre maximal de stabilité vis à vis de la dislocation, et d'un diamètre minimal de stabilité vis à vis de la coalescence permet de mener une étude comparative sur le comportement de deux aérosols liquides différents (gouttelettes de DOP, gouttelettes d'eau) dans une tuyère convergente - divergente. Cette approche met en évidence le fait que le diamètre initial des inclusions de chaque aérosol est inférieur au diamètre minimal de stabilité défini dans la tuyère. La granulométrie des inclusions semble par conséquent essentiellement gérée par des phénomènes de coalescence.

Mots clés : écoulement diphasique, phase liquide dispersée, coalescence, dislocation, stabilité granulométrique.

This paper provides a comparative study in terms of diameter characteristics of air - liquid dispersed droplet flow with two different liquid aerosols (DOP droplets, water droplets). The droplet size is mainly controlled by the mechanisms of the gas - droplets interaction in the turbulent gas flow. Then, the objective is to relate the maximum and the minimum stable size a droplet can reach, respectively, without disintegration or coalescence, to the turbulent energy dissipation rate in a nozzle. The study indicates that, in both cases (DOP and water aerosols), the droplet size is less than the minimum stable diameter. Therefore, the droplet coalescence mechanism seems to be the dominant factor in determining the drop size.

Keywords : two-phase flow, droplet, coalescence, break-up, stable drop diameter.

Nomenclature

C_f	coefficient de frottement pariétal ($C_f = 0,316R_e^{-1/4}$)	$v(d)$	écart de vitesse entre deux points distants de d (m/s)
d_i	diamètre initial d'une dispersion (m)	$(W_e)_{cr}$	nombre de Weber critique
d_{max}	diamètre maximal de stabilité (m)	$(W_e)_{cr}^*$	nombre de Weber critique modifié
d_{max}^*	diamètre maximal de stabilité modifié (m)	ϵ	taux de dissipation turbulente (m^2/s^3)
d_{min}	diamètre minimal de stabilité (m)	μ	viscosité dynamique de la phase continue (Pa.s)
d_{min}^*	diamètre minimal de stabilité modifié (m)	η	échelle de Kolmogorov (m)
f	facteur de correction appliqué à d_{min}	ρ	masse volumique (kg/m^3)
F	force de Stokes (N)	σ	tension superficielle (N/m)
h	épaisseur du film de phase continue (m)	τ	force extérieure exercée sur la particule (N)
h_c	épaisseur critique du film de phase continue (m)	$\Delta\tau$	durée de drainage du film continu (s)
Kn	nombre de Knudsen	ΔT	échelle temporelle de la turbulence (s)
R	rayon hydraulique de la conduite (m)	Indices	
R_e	nombre de Reynolds de l'écoulement	d	relatif à la phase dispersée
R_{e_p}	nombre de Reynolds de la particule	c	relatif à la phase continue
s	rayon du film de phase continue (m)	Opérateur	
V	vitesse du gaz (m/s)	$\bar{\quad}$	Opérateur de moyenne.

Introduction

Le fluide présent dans une canalisation ou un réservoir sous pression en régime de fonctionnement normal est généralement monophasique (vapeur). En régime accidentel (une brèche par exemple), il y a parfois apparition d'écoulement diphasique (annulaire et/ou dispersé). Le fluide 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 aux deux phases du fluide au passage de la brèche (généralement simulée par une tuyère convergente - divergente [1]). Le manque de données relatives à ce genre d'écoulement a motivé une étude expérimentale entreprise au LETIEF par l'intermédiaire de la boucle d'essai Tapioca (figure 1).

Cet article présente une étude comparative du comportement granulométrique de deux aérosols liquides différents en écoulement critique en tuyère :

- des gouttelettes de Di-octyl phtalate (DOP) de diamètre et de concentration connus (phase continue air sec et filtré)
- des gouttelettes d'eau obtenues par condensation spontanée hétérogène de la vapeur d'eau sur l'aérosol atmosphérique (phase continue air humide).

Dispositif expérimental

Cette installation permet de générer un écoulement diphasique gaz-liquide turbulent, fortement accéléré, de configuration essentiellement dispersée, en tuyère

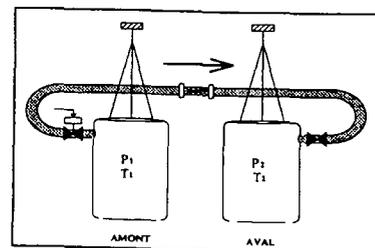


figure 1 : la boucle d'essai est constituée de deux réservoirs de 0,8 m³ chacun, reliés par une veine comportant à mi-distance amont - aval une tuyère convergente - divergente. La tuyère offre un accès optique à l'écoulement.

convergente-divergente. L'accident est simulé par une décharge d'un réservoir amont vers un réservoir aval. La boucle d'essai permet de déterminer expérimentalement lors de la décharge le débit massique total, les profils de pressions, et les températures [2]. Les conditions génératrices typiques sont $P_0 = 3$ bars absolus, et $T_0 = 15^\circ\text{C}$. Les vitesses de gouttelettes sont mesurées dans la tuyère à l'aide d'un vélocimètre laser Doppler [3]. Les diamètres sont déterminés par une méthode qui s'apparente à celle utilisée par les granulomètres aérodynamiques : le diamètre moyen est calculé à l'aide des vitesses relatives entre phases, d'un coefficient de traînée et d'un bilan de quantité de mouvement sur la phase liquide dispersée [4].

Génération de la phase liquide dispersée

Deux catégories d'aérosols liquides sont utilisées :

- l'aérosol monodispersé de DOP de diamètre médian variable (0,4 à 1,3 μm) est généré par évaporation-condensation contrôlée selon la méthode proposée par Liu B.Y.H. et Lee K.W. [5]. L'injection d'aérosols de DOP dans le réservoir amont est effectuée par balayage à la pression atmosphérique. La concentration (comprise entre 10^4 et 10^7 particules/cm³) est mesurée par un compteur de noyaux de condensation. Lorsque la concentration d'expérience est atteinte, le réservoir amont est mis sous pression avec de l'air sec et filtré. La phase liquide dispersée de DOP en écoulement diphasique servira de référence.

- les gouttelettes d'eau, quant à elles, sont générées lors de la détente par condensation spontanée hétérogène de la vapeur d'eau sur l'aérosol atmosphérique présent dans le réservoir amont.

Lors de la décharge, la phase liquide dispersée est entraînée de façon homogène au sein de l'écoulement.

Granulométrie d'une dispersion turbulente

L'évolution de la distribution en taille d'une dispersion est essentiellement contrôlée par les mécanismes d'interaction entre la phase dispersée et la phase continue turbulente. En fonction de son diamètre initial et des conditions de l'écoulement, la dispersion peut voir sa granulométrie modifiée par des phénomènes de dislocation et de coalescence. Les travaux de Kolmogorov [6] et Hinze [7] ont permis d'établir que la taille maximale d'une goutte ou d'une bulle en écoulement turbulent est directement influencée par le taux de dissipation turbulente ε . Cette taille définit un diamètre maximal de stabilité de la dispersion vis à vis de la déformation jusqu'à dislocation (d_{max}). Ces considérations sur la déformation et la dislocation ont mené à la définition d'un nombre de Weber critique ($We_{\text{e,cr}}$), valeur au delà de laquelle la goutte ou la bulle se fractionne :

$$(We_{\text{e}})_{\text{cr}} = \frac{\tau \cdot d_{\text{max}}}{2\sigma} \quad (1)$$

Sur les bases des travaux de Kolmogorov [6] et Hinze [7], Thomas [8] définit un diamètre minimum de stabilité de la dispersion vis à vis de la coalescence (d_{min}). Thomas montre d'autre part qu'il existe un domaine de stabilité granulométrique délimité par d_{max} et d_{min} qui ne dépend que de la dissipation turbulente et de la nature des fluides.

Ainsi, au sein d'une phase porteuse turbulente, une dispersion de diamètre médian initial d_i supérieur au diamètre maximal de stabilité, sera le siège de dislocations. Si au contraire d_i est inférieur au diamètre minimal de stabilité, la granulométrie de la dispersion sera gérée par des phénomènes de coalescence. La dispersion verra sa granulométrie évoluer jusqu'à entrer dans le domaine de stabilité.

Diamètre maximal de stabilité

Lorsque la présence de la phase dispersée est sans influence sur la turbulence de la phase continue, et que les effets de viscosité sont négligeables ($Re_p \gg 1$), le processus de désintégration est dominé par un déséquilibre entre les forces de tension superficielle, qui maintiennent la cohésion de la goutte, et les forces dynamiques qui tendent à la déformer (τ).

Lorsque les forces de déformation sont essentiellement gérées par les variations de vitesse des tourbillons turbulents sur une longueur équivalente au diamètre d'une goutte, alors :

$$\tau = \rho_c \cdot \overline{v^2(d_{\text{max}})} \quad (2)$$

avec $\overline{v^2(d_{\text{max}})}$ définie par Batchelor [9] comme :

$$\overline{v^2(d_{\text{max}})} = 2(d_{\text{max}} \cdot \varepsilon)^{2/3} \quad (3)$$

Le diamètre maximal de stabilité vis à vis de la dislocation s'exprime alors selon :

$$d_{\text{max}} = (We_{\text{e,cr}})^{3/5} \cdot \left(\frac{\sigma}{\rho_c}\right)^{3/5} \cdot \varepsilon^{-2/5} \quad (4)$$

avec ε , le taux moyen de dissipation turbulente.

Berne [10], en s'appuyant sur des résultats expérimentaux, considère que l'expression (5), valable en toute rigueur dans la zone inertielle, convient également dans la zone centrale de l'écoulement :

$$\varepsilon = \frac{V^3}{R} \cdot \frac{C_f}{2} \quad (5)$$

Sevik et Park [11] déterminent le nombre de Weber critique en comparant la fréquence propre d'une goutte, donnée par Lamb [12], à la fréquence caractéristique de la turbulence : si la fréquence d'excitation correspond à la fréquence de résonance de la goutte, d'importantes déformations à volume constant mènent à la dislocation de la goutte. Le nombre de Weber critique s'écrit alors :

$$(W_e)_{cr} = \frac{24}{\pi^2 \cdot \left(\frac{3\rho_d}{\rho_c} + 2 \right)} \quad (6)$$

Sevik et Park propose un nombre de Weber critique de 0,5 dans le cas d'une dispersion liquide - liquide de densités égales, et un Weber critique de 1,2 pour un écoulement de bulles au sein d'une phase continue liquide. Les diamètres maximaux de stabilité ainsi définis ont été confirmés expérimentalement par Hinze, et Thomas, lorsque $\rho_d \approx \rho_c$, et par Sevik et Park lorsque $\rho_d \ll \rho_c$.

Cependant, les différences entre le nombre de Weber critique théorique et les données expérimentales sont importantes lorsque l'on traite le cas d'une dispersion liquide au sein d'une phase continue gazeuse. Dans une configuration $\rho_d \gg \rho_c$, Lane [13] et Hinze déterminent expérimentalement des valeurs de Weber critique variant de 5 à 11 alors que le nombre de Weber critique selon Sevik et park est de l'ordre de 10^{-3} . Ces observations ont amené Kocamustafaogullari et al. [14] à remettre en question l'utilisation de l'équation (4).

En effet, l'équation définie par Batchelor sous-entend que les tourbillons de la phase continue entraînent parfaitement les inclusions, or ceci semble uniquement valable lorsque $\rho_d < \rho_c$ et dans le cas extrême lorsque $\rho_d \approx \rho_c$. Quand la densité de la phase continue est très faible comparée à celle de la phase dispersée, l'entraînement des gouttelettes par les tourbillons turbulents n'est plus complet. Dans ce cas, le processus de déformation et de dislocation des gouttelettes est essentiellement lié à la vitesse relative locale entre phases. Kocamustafaogullari et al. proposent alors un nombre de Weber critique modifié $(W_e)_{cr}^*$ fonction du Weber critique défini par Sevik et al. :

$$(W_e)_{cr}^* = \left(\frac{\rho_d}{\rho_c} \right)^{2/3} \cdot \left(\frac{|\rho_d - \rho_c|}{\rho_d} \right) \cdot (W_e)_{cr} \quad (7)$$

Il est ainsi possible de définir un diamètre maximal de stabilité d_{max}^* selon la relation suivante :

$$d_{max}^* = (W_e)_{cr}^* \cdot \left(\frac{\sigma}{\rho_c} \right)^{3/5} \cdot \varepsilon^{-2/5} \quad (8)$$

Les équations (3) et (8) prédisent toutes deux une évolution de d_{max} en $\varepsilon^{-2/5}$, mais d_{max}^* diffère du précédent dans sa dépendance vis à vis des densités des fluides.

L'approche de Kocamustafaogullari et al. permet ainsi de déterminer un diamètre maximal de stabilité basé sur le mécanisme prépondérant de dislocation d'une dispersion liquide dans une phase continue gazeuse.

Diamètre minimal de stabilité

De même que les travaux précédemment cités ont conduit à définir un diamètre maximal de stabilité de la dispersion vis à vis de la dislocation, les travaux de Thomas ont permis de définir un diamètre minimum de stabilité vis à vis de la coalescence. La démarche proposée par Thomas s'apparente fortement à celles antérieurement développées par Ross et Curl [15], Coualoglou [16], ainsi que Coualoglou et Tavlarides [17].

Selon Mariaux [18], Thomas indique que la coalescence de deux inclusions peut survenir si l'intervalle de temps, pendant lequel les mouvements de la phase porteuse les maintiennent rapprochées, est suffisant pour que le film de phase continue qui les sépare soit drainé jusqu'à une valeur critique h_c où sa rupture est inévitable. Ce principe fait appel aux échelles temporelles de la turbulence (ΔT), et du drainage du film continu ($\Delta \tau$); la coalescence suppose $\Delta \tau \leq \Delta T$.

Thomas exprime $\Delta \tau$ en fonction de la force F qui maintient les deux inclusions rapprochées. Il considère que F , donnée par la formule de Stokes, est la force exercée par l'écoulement sur une inclusion sphérique de diamètre d [19]. En exprimant d en fonction des dimensions s et h caractéristiques de la distorsion de la sphère, Thomas définit F selon :

$$F = \frac{3\pi\mu_c s^4}{2h^2 \Delta \tau} \quad (9)$$

En considérant que les forces résultantes de la tension superficielle s'opposent à la distorsion, il exprime $\Delta \tau$ selon :

$$\Delta \tau = \frac{3\mu_c}{32\pi} \cdot \left(\frac{d}{\sigma h} \right)^2 \cdot F \quad (10)$$

Thomas suppose que les tourbillons responsables de la coalescence appartiennent à la zone inertielle de l'écoulement. Une analyse dimensionnelle de F , couplée à l'équation (2), permet alors d'exprimer $\Delta \tau$ en fonction du taux de dissipation turbulente ε . Cet intervalle de temps doit être comparé à celui pendant lequel deux inclusions sont maintenues rapprochées. En remarquant que les pulsations de grande dimension transportent deux particules ensemble mais ne les éloignent pas l'une de l'autre [20], l'intervalle de temps ΔT est ramené à l'échelle des petits tourbillons dissipatifs ($d \leq \eta$) :

$$\Delta T = \left(\frac{d^2}{\varepsilon} \right)^{1/3} \quad (11)$$

La coalescence sera possible tant que $\Delta t \leq \Delta T$. Ce critère permet d'écrire :

$$d_{\min} = \left(\frac{32\pi}{3} \right)^{1/4} \cdot \left(\frac{\sigma^2 h_c^2}{\mu_c \rho_c} \right)^{1/4} \cdot \varepsilon^{-1/4} \quad (12)$$

Les travaux de Thomas permettent ainsi de déterminer un diamètre minimal de stabilité de la dispersion vis à vis de la coalescence.

Cependant, plusieurs nuances sont à apporter à ces travaux. En négligeant le facteur de Cunningham dans la formule de Stokes, Thomas restreint son approche au régime continu ($Kn < 0,25$) [21]. D'autre part, il assimile la force de Stokes exercée sur une inclusion légèrement déformée, à la force de Stokes exercée sur une sphère parfaite. Cette approximation de la sphère équivalente suppose que le rayon de l'inclusion déformée soit proche du rayon initial de la particule. L'approche de Thomas suppose, de plus, que la force exercée par l'écoulement sur une inclusion est indépendante de la présence d'une seconde inclusion. Or, d'après Williams et al., Cooley et O'Neill montrent que la force de Stokes exercée sur chaque particule d'un doublet est plus faible que la force exercée sur une particule isolée. Ils introduisent un facteur de correction f , fonction de la distance inter-particules L , qui appliqué à la force de Stokes initiale permet de déterminer la force exercée sur les deux inclusions. Ce facteur, dont la limite est 1 lorsque L tend vers l'infini, prend la valeur 0,65 lorsque les inclusions sont distantes de moins de 10% d'un rayon.

Le diamètre minimal de stabilité ainsi modifié devient :

$$d_{\min}^* = \left(\frac{32\pi}{3} \right)^{1/4} \cdot \left(\frac{\sigma^2 h_c^2}{\mu_c \rho_c} \right)^{1/4} \cdot \varepsilon^{-1/4} \cdot f^{-1/4} \quad (13)$$

Les équations (12) et (13) prédisent toutes deux un comportement de d_{\min} en $\varepsilon^{-1/4}$, qui, comme le signale Berne, a été retrouvé expérimentalement pour $\rho_d \ll \rho_c$ et $\rho_d \approx \rho_c$. Le diamètre d_{\min}^* ne diffère du diamètre minimum de stabilité d_{\min} , défini par Thomas, que d'un coefficient $f^{-1/4}$ soit 1,1. Ce coefficient est proche de la constante empirique proposée pour d_{\min} par Berne.

Thomas, et Berne citant Jones et Wilson [22], définissent une « valeur raisonnable », de l'ordre de 10^3 \AA , de la valeur critique h_c du film de phase continue au delà de laquelle la rupture est inévitable. Or, comme le signale Slattery [23], il semblerait qu'une valeur de 100 \AA soit plus appropriée.

Domaine de stabilité granulométrique

Thomas indique que la probabilité qu'une goutte de diamètre d_i participe à la formation d'une goutte de diamètre supérieur est forte si d_i reste inférieur au diamètre minimal de stabilité d_{\min} ; cette probabilité tend vers zéro lorsque d_i devient supérieur ou égal à d_{\min} . De même, une goutte de diamètre supérieur à d_{\max} se disloque avec une forte probabilité, probabilité qui décroît fortement lorsque d_i devient inférieur ou égal à d_{\max} . Une phase dispersée de diamètre d_i , injectée dans une phase porteuse animée d'une turbulence homogène et isotrope, verra sa granulométrie augmenter au cours du temps si $d_i < d_{\min}$. Une dispersion initialement caractérisée par $d_i > d_{\max}$ verra sa granulométrie modifiée par des phénomènes de dislocation, et cela jusqu'à pénétrer dans le domaine de stabilité granulométrique. Le domaine de stabilité granulométrique retenu est par conséquent délimité par d_{\max}^* et d_{\min}^* , paramètres qui ne dépendent que du taux de dissipation turbulente et de la nature des fluides.

Lorsque la dissipation ne dépasse pas une certaine valeur ε_0 , le diamètre maximal de stabilité est supérieur au diamètre minimal. Cependant, pour des valeurs de ε supérieures à ε_0 on conçoit l'existence d'un domaine où le diamètre de stabilité d_{\min}^* puisse devenir supérieur au diamètre d_{\max}^* . Berne indique qu'en dessous de ε_0 , le diamètre maximal de dislocation est supérieur au diamètre minimal de coalescence. Il existe, dans ce cas, toute une gamme de diamètres stables, trop élevés pour permettre la coalescence et trop faibles pour que la turbulence provoque la dislocation. Par contre, Berne signale qu'au-delà de ε_0 , toutes les inclusions sont menacées de coalescence ou de dislocation, quels que soient leurs diamètres.

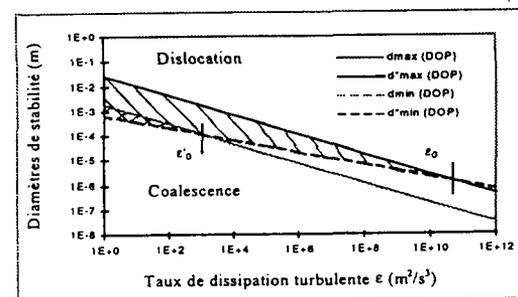


Figure 2 : cette figure présente les différents domaines de stabilité du DOP définis par les équations (4), (8), (12), (13). Pour la plage de ε considérée :
 $1,8 \text{ mm} > d_{\max} > 0,03 \text{ }\mu\text{m}$; $25 \text{ mm} > d_{\max}^* > 0,4 \text{ }\mu\text{m}$
 $600 \text{ }\mu\text{m} > d_{\min} > 0,6 \text{ }\mu\text{m}$; $700 \text{ }\mu\text{m} > d_{\min}^* > 0,7 \text{ }\mu\text{m}$.

Domaine de stabilité granulométrique de l'aérosol de DOP

Sur la figure 2 sont représentés les domaines de stabilité granulométrique de l'aérosol de DOP de référence ($\rho_{\text{DOP}} = 980 \text{ kg/m}^3$, $\sigma_{\text{DOP}} = 0,033 \text{ N/m}$), définis d'une part à l'aide de d_{\max} et d_{\min} , et d'autre part à l'aide de d_{\max}^* et d_{\min}^* . Le domaine délimité par les équations (4) et (12) présente une zone où d_{\max} reste supérieur à d_{\min} , jusqu'à $\varepsilon'_0 \approx 980 \text{ m}^2/\text{s}^3$. Ce qui, pour notre dispositif expérimental, correspondrait à des Reynolds de l'écoulement de quelques 10^3 . Pour tout Reynolds supérieur, toutes les inclusions de DOP seraient menacées de coalescence ou de dislocation. En revanche,

l'intersection de d_{max}^* et d_{min}^* est repoussée à une valeur ϵ_0 de l'ordre de $3,5 \times 10^{10} \text{ m}^2/\text{s}^3$, soit un Reynolds d'environ 10^{10} . Pour tout Reynolds inférieur, d_{max}^* reste supérieur à d_{min}^* , la dispersion aura tendance à atteindre un état d'équilibre caractérisé par un diamètre moyen $d_{min} < d_{moyen} < d_{max}$.

Domaine de stabilité granulométrique de gouttelettes d'eau

La figure 3 présente les domaines de stabilité granulométrique en fonction du taux de dissipation turbulente ϵ de gouttelettes d'eau ($\rho_{eau} = 998 \text{ kg/m}^3$, $\sigma_{eau} = 0,077 \text{ N/m}$). La masse volumique et la tension superficielle de l'eau, bien qu'élevées, ne diffèrent pas suffisamment de ρ_{DOP} et σ_{DOP} pour que l'on puisse observer une distinction significative entre les domaines de stabilité des deux aérosols. En effet, $(d_{max}^*)_{eau} / (d_{max}^*)_{DOP} = 1,66$, et $(d_{min}^*)_{eau} / (d_{min}^*)_{DOP} = 1,53$. L'intersection de d_{min}^* et d_{max}^* est, cependant, repoussée à une valeur $\epsilon_0 \approx 6 \times 10^{10} \text{ m}^2/\text{s}^3$.

Le domaine de stabilité granulométrique de l'eau est, d'une part, faiblement plus élevé que celui du DOP, et d'autre part, légèrement plus éloigné vers les taux de dissipation turbulente élevés.

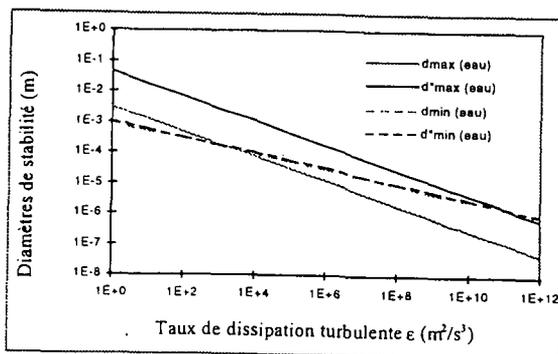


figure 3 : cette figure présente les différents domaines de stabilité granulométrique de l'eau définis en [4], [8], [12], [13]. Pour la plage de ϵ considérée :

$3 \text{ mm} > d_{max} > 0,05 \text{ }\mu\text{m}$; $44 \text{ mm} > d_{max}^* > 0,7 \text{ }\mu\text{m}$
 $900 \text{ }\mu\text{m} > d_{min} > 0,9 \text{ }\mu\text{m}$; $900 \text{ }\mu\text{m} > d_{min}^* > 1 \text{ }\mu\text{m}$.

Application à l'écoulement critique diphasique en tuyère convergente - divergente

L'étude que nous menons actuellement sur le transport et le comportement de la phase liquide dispersée en écoulement diphasique critique, nous a amené à caractériser la dispersion liquide en terme de stabilité granulométrique dans la tuyère. Les vitesses d'inclusions de DOP de diamètre inférieur à $0,8 \text{ }\mu\text{m}$, représentatives de la vitesse du gaz (traceurs), permettent de déterminer le taux de dissipation turbulente dans la tuyère (ϵ varie de $1,03 \times 10^6 \text{ m}^2/\text{s}^3$ en début de convergent à $5,6 \times 10^7 \text{ m}^2/\text{s}^3$ au niveau du col).

Sur la figure 4 sont comparés le diamètre médian initial et le domaine de stabilité granulométrique de l'aérosol de DOP. Il apparaît clairement que la dispersion de DOP est caractérisée par un diamètre initial inférieur au diamètre minimal de stabilité vis à vis de la coalescence. Selon l'approche de Thomas, la phase dispersée de DOP devrait voir sa granulométrie augmenter au cours du temps jusqu'à entrer dans le domaine de stabilité. Cependant, l'instrumentation de la boucle d'essai ne nous permet pas de mettre expérimentalement en évidence ces hypothèses de coalescence. En effet, seule une variation granulométrique suffisante pour qu'il y ait une répercussion sur la vitesse des inclusions pourrait être détectée. L'étude des mesures de vitesses d'aérosols de DOP montre que la vitesse relative entre phases reste négligeable jusqu'à un diamètre de l'ordre de $2 \text{ }\mu\text{m}$ (figure 5). Si les gouttelettes de DOP ont grossi par coalescence tout en gardant leurs qualités de traceurs de l'écoulement, alors leur diamètre est resté inférieur à $2 \text{ }\mu\text{m}$.

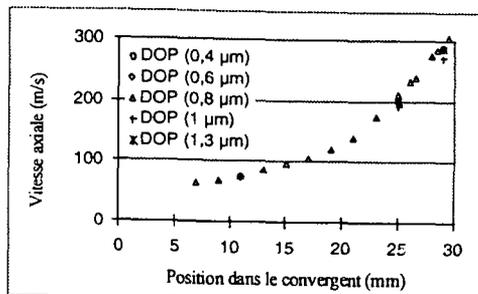


figure 5 : profil de vitesses de l'aérosol de DOP de diamètre variant de $0,4 \text{ }\mu\text{m}$ à $1,3 \text{ }\mu\text{m}$ mesurées en début de décharge dans le convergent et au voisinage du col de la tuyère.

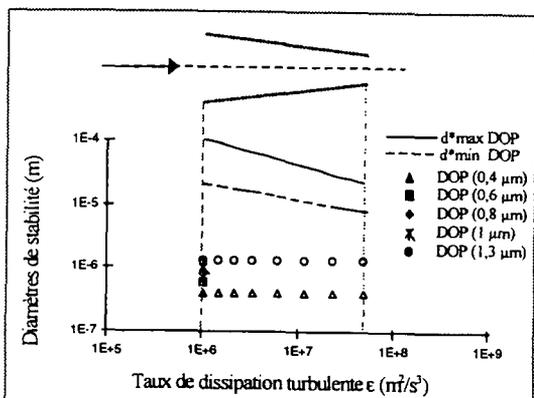


figure 4 : comparaison entre la granulométrie de l'aérosol de DOP en écoulement et le domaine de stabilité granulométrique du DOP dans le convergent de la tuyère. Les marques vides représentent une évolution granulométrique sans coalescence. Pour la plage d' ϵ considérée : $100 \text{ }\mu\text{m} > d_{max} > 21 \text{ }\mu\text{m}$; $22 \text{ }\mu\text{m} > d_{min} > 8 \text{ }\mu\text{m}$.

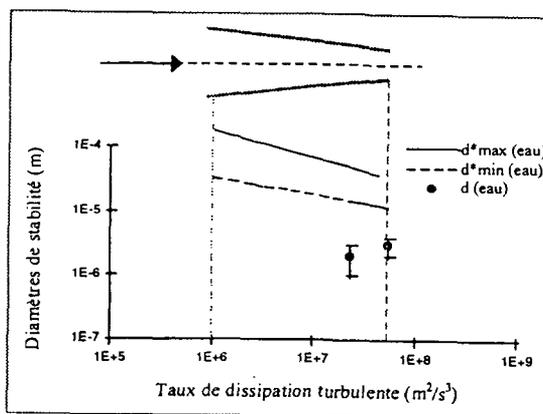


figure 6 : comparaison entre la granulométrie de gouttelettes d'eau en écoulement et le domaine de stabilité granulométrique de l'eau dans le convergent de la tuyère. Pour la plage d' ϵ considérée : $200 \text{ }\mu\text{m} > d_{max} > 35 \text{ }\mu\text{m}$; $36 \text{ }\mu\text{m} > d_{min} > 12 \text{ }\mu\text{m}$.

Sur la figure 6 sont comparés le diamètre moyen et le domaine de stabilité granulométrique des gouttelettes d'eau (en considérant que, pour les mêmes conditions d'expérience, la vitesse des inclusions de DOP (traceurs) est représentative de la vitesse de l'air humide). Le diamètre moyen des gouttes d'eau, calculé à l'aide d'un bilan de quantité de mouvement sur la phase liquide dispersée, des vitesses relatives entre phases (figure 7), et d'un coefficient de traînée selon Wilson et Liu, est de l'ordre de $2 \text{ à } 3 \text{ }\mu\text{m}$ en fin de convergent. Comme dans le cas précédent, il apparaît clairement que le diamètre initial

des gouttelettes d'eau est inférieur au diamètre minimal de stabilité. La granulométrie des inclusions d'eau semblerait par conséquent essentiellement gérée par des phénomènes de coalescence. L'observation des diamètres montre effectivement une légère tendance au grossissement puisque le diamètre évolue de 2 à environ 4 μm . Cependant, cette détermination reste fortement influencée par le choix du coefficient de traînée. En testant différentes corrélations, [24],[25], nous avons déterminé des diamètres légèrement supérieurs ou légèrement inférieurs, mais la tendance au grossissement est conservée.

Cette tendance pourrait s'expliquer par un grossissement par coalescence, mais également, comme l'indiquent certains auteurs, [26], [27], par la poursuite de la condensation de vapeur d'eau à la surface des gouttelettes.

Conclusion

Les travaux de Kolmogorov, Hinze, Thomas, et Kocamustafaogullari, ont permis de caractériser en terme de stabilité granulométrique les inclusions de DOP, et d'eau dans un écoulement diphasique critique en tuyère convergente - divergente. Cette étude a montré que l'aérosol de DOP, comme les inclusions d'eau, ont un diamètre initial inférieur au diamètre minimal de stabilité vis à vis de la coalescence. L'évolution de leurs granulométries semble par conséquent principalement gérées par des phénomènes de coalescence.

Si l'approche proposée ici est essentiellement centrée sur la coalescence par turbulence, d'autres mécanismes peuvent expliquer le grossissement des gouttelettes. Certains auteurs, [28], [29], soulignent l'importance des phénomènes de glissement et collision cinétique dans le grossissement des gouttelettes de diamètres légèrement différents.

Afin de mettre en évidence le ou les phénomènes prépondérants de grossissement, il apparaît important de passer à une détermination non plus du diamètre moyen des gouttes, mais de la distribution en tailles des inclusions liquides.

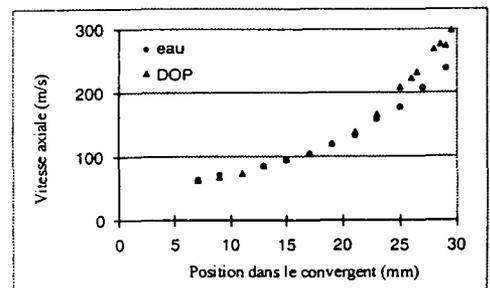


figure 7 : profil de vitesses de l'aérosol de DOP et de gouttelettes d'eau mesurées en début de décharge dans le convergent et au voisinage du col de la tuyère.

- [1] AMOS C.N., SCHROCK V.E., *Two-phase critical flow in slits*, Nuclear Science and Engineering, vol. 88, pp. 261 - 274, 1984.
- [2] JURSKI K., GEHIN E., DEGERATU M., PIAR G., *Etude expérimentale de la phase liquide dispersée dans un écoulement diphasique en tuyère convergente-divergente*, Association Française d'études et de Recherches sur les Aérosols ASFERA, 11^{èmes} Journées d'études sur les Aérosols, pp. 182 - 187, Paris, 5 - 6 Décembre 1995.
- [3] JURSKI K., GEHIN E., PIAR G., *Mesure de vitesses de gouttes dans un écoulement diphasique critique air - eau à faible teneur en eau par Anémométrie Laser Doppler - 5^{ème} Congrès Francophone de Vélométrie Laser*, pp. F3, 1 - 8, Rouen, 24 - 27 septembre 1996.
- [4] WILSON J.C., LIU B.Y.H., *Aerodynamic particle size measurement by laser Doppler velocimeter*, J. Aerosol Sci., vol. 11, pp. 139 - 150, 1980.
- [5] LIU B.Y.H., LEE K.W., *An Aerosol Generator of High Stability*, J. Am. Ind. Hyg. Assoc. 36 : 861 - 865, 1975.
- [6] KOLMOGOROV A.N., *The break-up of droplets in a turbulent stream*, Dokl. Akad. Nauk. SSSR, vol. 66, pp. 825 - 828, 1949.
- [7] HINZE J.O., *Fundamentals of the hydrodynamic mechanisms of splitting in dispersion processes*, AIChE J.I., pp. 289 - 295, 1955.
- [8] THOMAS R.M., *Bubble coalescence in turbulent flows*, Int. J. of Multiphase Flow, vol. 7, pp. 709 - 717, 1981.
- [9] BATCHELOR G.K., *Pressure fluctuations in isotropic turbulence*, Proc. Cambridge Phil. Soc., vol. 47, pp. 359 - 374, 1951.
- [10] BERNE P., *Contribution à la modélisation du taux de production de vapeur par autovaporisation dans les écoulements diphasiques en conduite*, Thèse de l'Ecole Centrale des Arts et Manufactures, 1983.
- [11] SEVIK M., PARK S.H., *The splitting of drops and bubbles by turbulent fluid flow*, Journal of Fluids Engineering, vol. 95, pp. 53 - 60, 1973.
- [12] LAMB H., *Hydrodynamics*, 6th ed. Cambridge Univ. Press, London, 1932.
- [13] LANE W.R., *Shatter of drops in streams of air*, Industrial and Engineering Chemistry, vol. 43, n°4, pp. 1312 - 1316, 1951.
- [14] KOCAMUSTAFAOULLARI G., SMITS S.R., RAZI J., *Maximum and mean droplet sizes in annular two phase flow*, Int. J. Heat Mass Transfer, vol. 37, n°6, pp. 955 - 965, 1994.
- [15] ROSS S.L., CURL R.L., Paper n°29b Joint Chem. Engineering Conf. 4th, Vaucan, Sept. 9 - 12, 1973.
- [16] COULALOGLOU C.A., *Dispersed phase interactions in an agitated flow vessel*, Ph.D. Thesis, Graduate School of Illinois Inst. of Technology, 1975.
- [17] COULALOGLOU C.A., TAVLARIDES L.L., *Drop size distributions and coalescence frequencies of liquid - liquid dispersions in flow vessels*, AIChE J., vol. 22, pp. 289 - 297, 1976.
- [18] MARIAUX S., *Influence de la coalescence sur l'évolution granulométrique des dispersions liquide - liquide dans les écoulements turbulents en conduite*, Thèse de l'INPG, 1990.
- [19] WILLIAMS M.M.R., LOYALKA S.K., *Aerosol Science (Theory & Practice)*, Pergamon Press, 1991.
- [20] LANDAU L., LIFCHITZ E., *Mécanique des Fluides*, 3^{ème} éd., Edition MIR, 1994.
- [21] DEVIENNE M., *Frottements et échanges thermiques dans les gaz raréfiés*, Gauthier - Villars, Paris, 1958.
- [22] JONES A.F., WILSON S.D.R., *The film drainage problem in droplet coalescence*, J. Fluid Mech., vol. 87, pp. 263 - 288, 1978.
- [23] SLATTERY J.C., *Interfacial Transport Phenomena*, Springer - Verlag, 1990.
- [24] FUCHS, N.A., *The Mechanics of Aerosols*, Pergamon Press, Oxford, 1964.
- [25] RADER D.J., MARPLE V.A., *Effect of ultra-Stokesian drag and particle interception on impaction Characteristics*, Aerosol Sci. Technol., vol.4, pp. 141 - 156, 1985.
- [26] TURNER J.R., KODAS T.T., FRIEDLANDER S.K., *Monodisperse particle production by vapor condensation in nozzles*, J. Chem. Phys., vol. 88, n°1, pp. 457 - 465, 1988.
- [27] KWAIK X., DEBENEDETTI P.G., *Mathematical modeling of aerosol formation by rapid expansion of supercritical solutions in a converging nozzle*, J. of Aerosol Sci., vol. 24, n°4, pp. 445 - 470, 1996.
- [28] CROWE C.T., WILLOUGHBY P.G., *A study of particle growth in a rocket nozzle*, AIAA Journal, vol. 5, n°7, pp. 1300 - 1304, 1967.
- [29] MARBLE F.E., *Droplet Agglomeration in rocket nozzles caused by particle slip and collision*, Astronautica Acta, vol. 13, pp. 159 - 166, Pergamon Press, 1967.

This paper provides a comparative study in terms of diameter characteristics of air - liquid dispersed droplet flow with two different liquid aerosols (DOP droplets, water droplets). The droplet size is mainly controlled by the mechanisms of the gas - droplets interaction in the turbulent gas flow. Then, the objective is to relate the maximum and the minimum stable size a droplet can reach, respectively, without disintegration or coalescence, to the turbulent energy dissipation rate in a nozzle. The study indicates that, in both cases (DOP and water aerosols), the droplet size is less than the minimum stable diameter. Therefore, the droplet coalescence mechanism seems to be the dominant factor in determining the drop size.

Keywords : two-phase flow, droplet, coalescence, break-up, stable drop diameter.

Application de l'Anémométrie Phase Doppler à des milieux d'accès optique difficile

D. Blondel, T. Girasole, G. Gréhan, G. Gouesbet
Laboratoire d'Energétique des Systèmes et Procédés
INSA de ROUEN, URA CNRS 230-CORIA BP 08
76130 Mont Saint Aignan, FRANCE
tel: 02 35 53 83 91, fax: 02 35 52 83 90

Résumé: L'anémométrie phase Doppler laser est une technique interférométrique permettant de mesurer simultanément la taille et la vitesse de particules sphériques et homogènes en écoulement. Dans ces réalisations classiques, elle nécessite une unité d'émission et une unité de collection. Or dans de nombreuses situations, son utilisation sous cette forme est impossible car elle nécessite deux accès optiques. Nous proposons une sonde n'utilisant qu'un seul accès optique. Cette sonde est réalisée et validée expérimentalement.

Abstract: The phase Doppler anemometry is an interferometric technique used to size and velocity measurements of spherical and homogeneous particles. In classical settings, both an emission and a collection units are needed. In many situations, this technique is not useful with this geometry because we need two optical accesses. We suggest a probe with a geometry which only needs one optical access. Such a probe is built and validated by experiments.

1 Introduction

1.1 Principe de l'anémométrie phase Doppler

L'anémométrie phase Doppler est une technique non intrusive développée pour le diagnostic des milieux diphasiques [1] [2] [3]. Elle permet la mesure de la taille et de la vitesse de particules sphériques et homogènes en écoulement. Cette technique, dérivée de l'Anémométrie Doppler Laser (ADL), est basée sur l'exploitation de la lumière diffusée par les particules lorsqu'elles traversent un volume de mesure formé par l'intersection de deux faisceaux laser. La taille est déterminée à partir du décalage en temps (ou déphasage) entre les signaux collectés par les détecteurs et la vitesse est extraite de la fréquence du signal.

La technique phase Doppler nécessite sous sa forme classique (fig. 1) deux unités distinctes: une unité d'émission des faisceaux laser (de longueur d'onde λ faisant un angle 2α entre eux et ayant une polarisation \vec{E} ici perpendiculaire au plan des faisceaux) et une unité de collection composée de deux ou trois détecteurs D_1, D_2, D_3 (situés à l'angle hors axe Φ et l'angle d'élévation Ψ). Leur position respective est déterminée par les lois de la diffusion de la lumière pour les particules à étudier.

1.2 Utilisation en milieu industriel

Dans de nombreuses applications industrielles, les accès optiques ne permettent pas l'utilisation de la technique phase Doppler dans sa géométrie classique. Outre les problèmes de position des accès optiques, on rencontre parfois des problèmes de déplacement des hublots constituant ces accès. C'est le cas qui nous intéresse ici, lors de mesures effectuées en chambre haute pression. En effet, pour effectuer une mesure, il est nécessaire que les deux unités (émission et collection) conjuguent simultanément le même point du volume de mesure. Lors de la mise en pression,

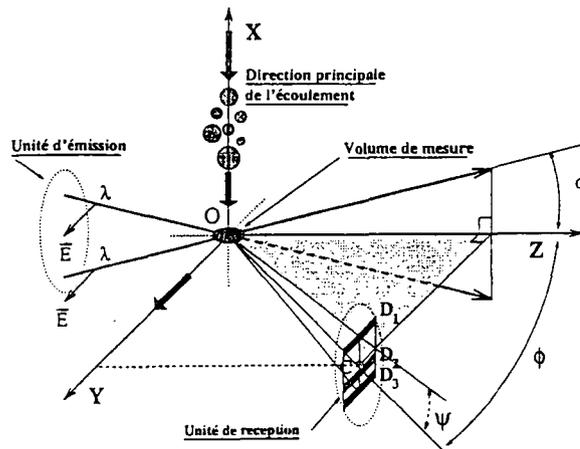


FIG. 1 - La technique phase Doppler classique

le déplacement des hublots rompt l'alignement et la mesure ne peut se faire. En outre, cet alignement doit être réeffectué pour chaque point de mesure.

Cette situation nous a amenés à développer des sondes basées sur la technique phase Doppler permettant de s'affranchir de ces problèmes [4]. Ce type de sonde ne nécessite qu'un seul accès optique et est auto-aligné dans la mesure où l'émission et la collection se font par une seule et même lentille. Son aspect monobloc nous permet d'envisager des campagnes de mesures plus systématiques des milieux à étudier.

Cet article est organisé comme suit: la seconde partie présente les simulations numériques décrivant la faisabilité d'une telle sonde ainsi que le montage expérimental réalisé. La troisième partie présente des résultats expérimentaux obtenus afin de valider la sonde et de tester l'influence des hublots des accès optiques. La quatrième partie est une conclusion.

2 Définition d'une sonde phase Doppler en rétrodiffusion dédiée à des mesures en chambre haute pression

2.1 Simulations numériques

Les contraintes imposées par la géométrie de la chambre haute pression et retenues pour la définition de la sonde sont:

- un seul accès optique.
- gamme de taille des particules à mesurer: $[5 \mu m - 50 \mu m]$
- taille des hublots des accès optiques imposant une section efficace de lentille de 80 mm de diamètre
- position du jet dans la chambre imposant une focale de 110 mm

Pour définir les caractéristiques de la sonde, nous avons utilisé les codes développés au laboratoire basés sur la Théorie de Lorenz Mie Généralisée (TLMG) [5] [6]. Ces codes permettent de décrire le fonctionnement d'un système phase Doppler. Nous avons calculé pour plusieurs

géométries, l'évolution de la différence de phase entre les deux détecteurs, l'évolution de l'intensité et de la visibilité du signal en fonction du diamètre des particules afin d'optimiser les caractéristiques de la sonde. Les paramètres géométriques retenus sont les suivants: angle de diffusion $\Phi = 150^\circ$, angle d'élévation $\Psi = 10.5^\circ$, demi-angle entre les faisceaux $\alpha = 1^\circ$, indice de la particule $n = 1.425$, dimensions angulaires des masques donc des détecteurs $\Delta x = 6.34^\circ$, $\Delta y = 0.53^\circ$, diamètre du volume de mesure $2\omega = 120 \mu m$. Nous obtenons ainsi une relation phase-diamètre linéaire, une intensité correcte et une bonne visibilité (fig. 2). Cela démontre la faisabilité d'une telle sonde.

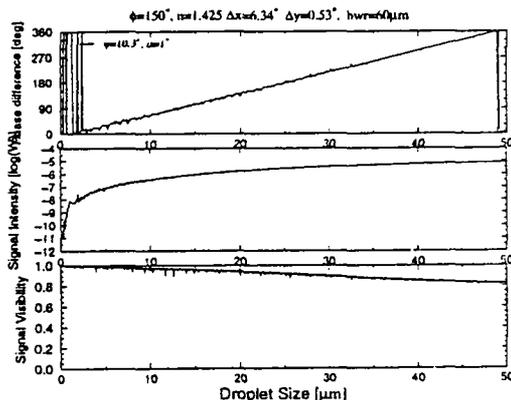


FIG. 2 - Evolution de la phase, de l'intensité et de la visibilité en fonction du diamètre de la particule.

2.2 Montage expérimental

La sonde monobloc réalisée se compose de deux étages: un étage d'émission et un de réception (fig. 3b). L'étage d'émission est constitué (fig. 3c) d'un séparateur de faisceaux (2) de façon à obtenir deux faisceaux identiques. Un jeu de prismes (3) permet de fixer l'écartement souhaité entre les faisceaux. Les faisceaux passent à travers une lame demi-onde (4) afin de les polariser parallèlement au plan des faisceaux. Une lentille unique de focale 110 mm (5) permet la focalisation des faisceaux et la collection de la lumière diffusée par les particules. A l'étage de réception (fig. 3a), la lumière collectée est focalisée sur une fente horizontale, qui joue le rôle de filtre spatial (7) puis est rendue parallèle par une seconde lentille identique pour enfin être focalisée par un jeu de lentilles (8) sur une paire de diodes à avalanches (9). Les diodes sont reliées à une banque de filtres (10) elle-même reliée à un oscilloscope numérique (11) et à un PC (12). Un logiciel d'acquisition basé sur la CSDW¹[7] permet le traitement des signaux enregistrés par l'oscilloscope [7] [8] [9]. Le montage est rendu solidaire par un banc optique unique.

3 Validation expérimentale de la sonde.

Afin de valider le montage expérimental, des tests expérimentaux ont été effectués à l'aide de jets monodispersés et de sprays.

¹Cross Spectral Density function with sliding Window

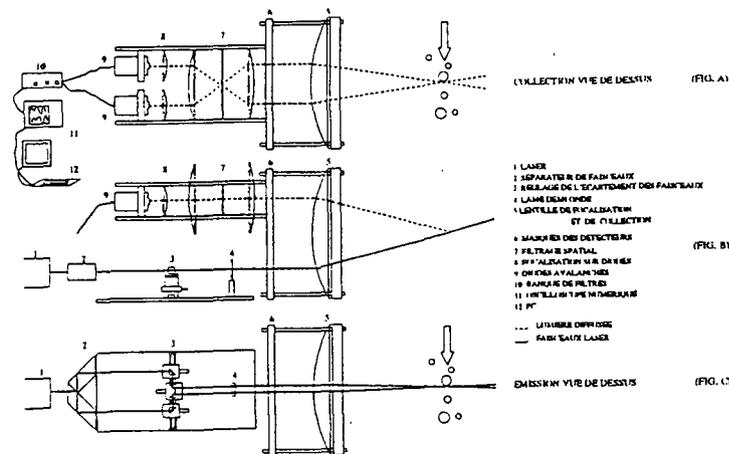


FIG. 3 - Montage de la sonde phase Doppler en rétrodiffusion

3.1 Validation à l'aide d'une ligne de gouttes monodispersées:

Nous avons mesuré une ligne de gouttes monodispersées (microdrop MD-K-130 [10]) et comparé cette mesure avec celle obtenue avec un appareil phase Doppler commercial [11] (fig. 4 et fig. 5). Cette comparaison a été effectuée pour 1000 particules. La ligne de gouttes traverse le volume de mesure en une position parfaitement définie. Nous obtenons la même taille moyenne et la largeur de la distribution en taille (tab. 1) est similaire avec les deux techniques.

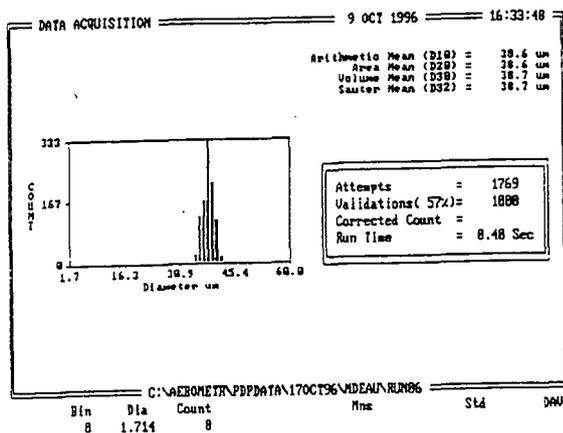


FIG. 4 - Mesure d'un jet monodispersé à l'aide d'un phase Doppler commercial

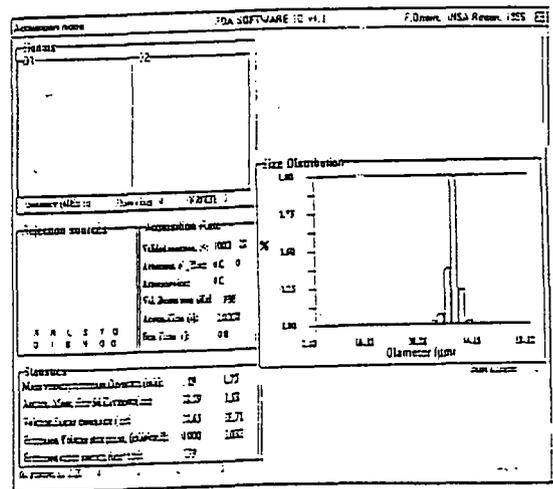


FIG. 5 - Mesure d'un jet monodispersé à l'aide de la sonde phase Doppler rétrodiffusion

	<i>Aerometrics</i>	<i>sonde rétrodiffusion</i>
<i>diamètre moyen [μm]</i>	38.6	38.6
<i>diamètre de Sauter [μm]</i>	38.7	38.6

TAB. 1 - *Diamètre moyen pour une ligne de gouttes, mesuré avec un phase Doppler Aerometrics et avec la sonde phase Doppler rétrodiffusion*

3.2 Validation à l'aide du brouillard issu d'un nébuliseur:

Des tests de validation ont été effectués sur un brouillard issu d'un nébuliseur. Avec un brouillard, les gouttes empruntent toutes les trajectoires possibles. La taille moyenne obtenue (tab. 2) par la sonde rétrodiffusion est similaire à celle du phase Doppler commercial.

	<i>Aerometrics</i>	<i>sonde rétrodiffusion</i>
<i>diamètre moyen [μm]</i>	7.3	8.2

TAB. 2 - *Diamètre moyen pour un brouillard, mesuré avec un phase Doppler Aerometrics et avec la sonde phase Doppler rétrodiffusion*

3.3 Influence des hublots constituant les accès optiques

Cette sonde phase Doppler est destinée à effectuer des mesures de tailles et de vitesses au sein d'une chambre haute pression à travers des hublots de qualité optique (hérasyl 3). La figure 6 présente les résultats de mesures de taille et de vitesse pour un même jet effectuées sans hublot et en présence d'un hublot de 20 mm d'épaisseur et d'un de 30 mm. Les hublots sont placés contre la lentille de la sonde. Dans les trois situations, la vitesse est identique, la distribution en taille est centrée à 12 μm et sa largeur est similaire. Les variations sont dues aux incertitudes statistiques causées par un échantillonnage insuffisant (200 particules mesurées). Nous pouvons conclure que la présence des hublots contre la lentille ne modifie pas les mesures.

Nous avons aussi étudié l'influence de la position relative des hublots par rapport à la lentille de la sonde dans le but de simuler un déplacement des hublots. Pour cela, nous avons mesuré un brouillard derrière le hublot d'épaisseur 30 mm que nous avons incliné successivement suivant la verticale et suivant l'horizontale avec un angle de 1.5° et 5°. Il est important de souligner qu'aucune modification du réglage de l'optique n'a été effectuée lors de cette série de mesures. Les figures 7 à 12 et le tableau 3 présentent les résultats obtenus. Quelle que soit l'inclinaison du hublot par rapport à la lentille, la différence entre la taille moyenne mesurée et celle mesurée sans hublot n'excède pas 10%. La largeur de la distribution reste identique dans les différents cas étudiés. La différence entre la vitesse moyenne mesurée en présence du hublot incliné et celle mesurée sans hublot n'excède pas non plus 20%. La forme de la distribution en taille reste stable. Ces tests permettent de montrer que notre sonde est peu sensible à la position relative des hublots et à leur déplacement.

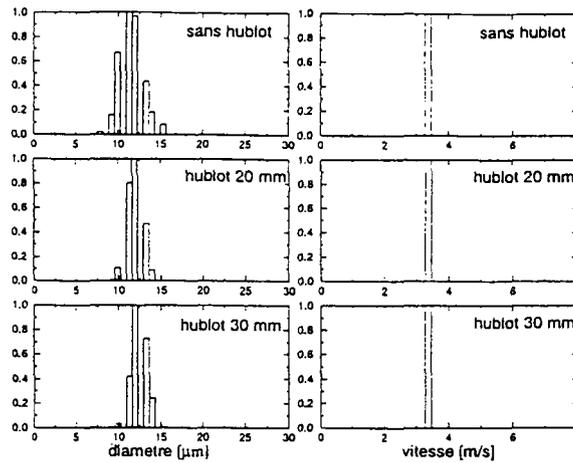


FIG. 6 - Mesure d'un jet derrière deux hublot différents.

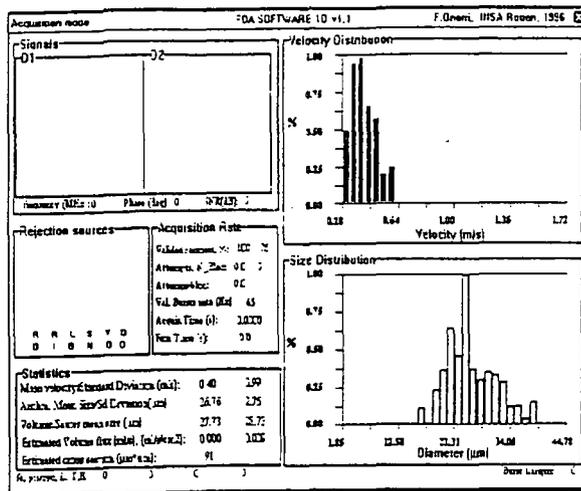


FIG. 7 - brouillard mesuré sans hublot

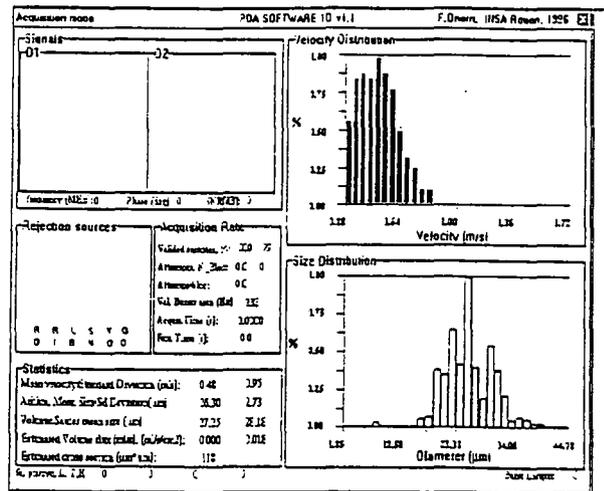


FIG. 8 - brouillard mesuré avec le hublot placé contre la lentille.

Figure	Angle d'inclinaison	diam. moyen [µm]	diam. de Sauter [µm]	vit. moyenne [ms ⁻¹]
7	-	26.8	27.7	0.40
8	0°	26.3	27.3	0.48
9	1.5°/horiz.	27.3	23.2	0.49
10	5°/horiz.	28.4	29.5	0.49
11	1.5°/vert.	25.8	26.5	0.50
12	5°/vert.	27.4	28.4	0.50

TAB. 3 - Vitesse moyenne et diamètre moyen mesurés avec la sonde rétrodiffusion, derrière un hublot de 30 mm d'épaisseur dont la position relative par rapport à la sonde varie.

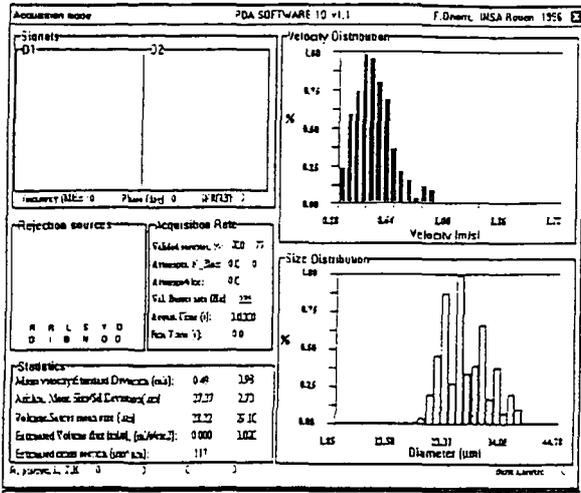


FIG. 9 - brouillard mesuré avec le hublot incliné de 1.5° par rapport à l'axe horizontal.

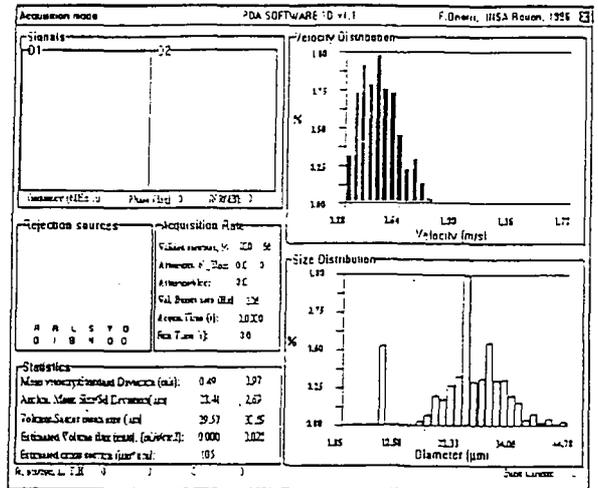


FIG. 10 - brouillard mesuré avec le hublot incliné de 5° par rapport à l'axe horizontal.

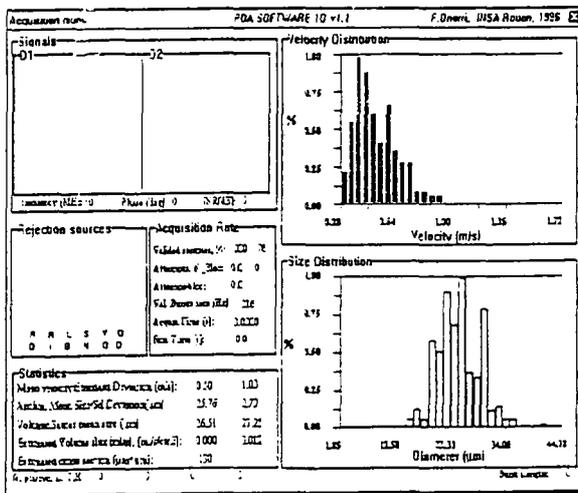


FIG. 11 - brouillard mesuré avec le hublot incliné de 1.5° par rapport à l'axe vertical.

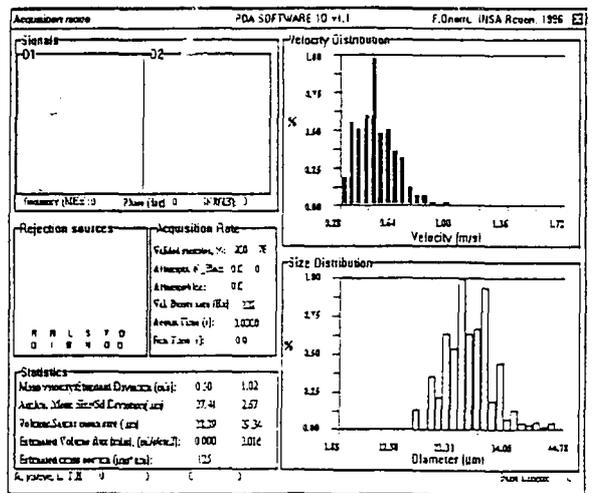


FIG. 12 - brouillard mesuré avec le hublot incliné de 5° par rapport à l'axe vertical.

4 Conclusion

A l'aide de simulations numériques basées sur la TLMG, nous avons défini les caractéristiques d'une sonde phase Doppler en rétrodiffusion. Cette sonde est monobloc et auto-alignée. Elle a été réalisée puis validée par des tests expérimentaux sur une ligne de gouttes monodispersées et sur un brouillard issu d'un nébuliseur. Nous avons montré qu'elle n'était pas sensible à la présence des hublots constituant les accès optiques ni à leur orientation relative. Ce type de sonde peut être une solution pour effectuer des mesures dans des milieux jusqu'alors inaccessibles. Nous nous intéressons aussi à la mesure de bulles. Pour cela, nous souhaitons immerger une sonde phase Doppler. Une autre sonde plus réduite, basée sur l'approche présentée dans cet article et destinée au diagnostic de bulles dans de l'eau est en cours de réalisation.

Remerciements: Ce travail est soutenu par le contrat GSM (groupement scientifique des motoristes) n° 19.

Références

- [1] F. Durst and M. Zaré. Laser Doppler measurements in two Phase flows. In *Proceedings of LDA-Symposium, Copenhagen*, pages 403–429, 1975.
- [2] W.D. Bachalo and M.J. Houser. Phase/Doppler spray analyzer for simultaneous measurements of drop size and velocity distributions. *Optical Engineering*, 23:583–590, 1984.
- [3] M. Saffman, P. Buchhave, and H. Tanger. Simultaneous measurement of size, concentration and velocity of spherical particles by a laser Doppler method. In *Laser Anemometry in Fluid Mechanics-II* (Ed: Adrian, Durão, Durst, Mishina & Whitelaw) LADOAN-Lisbon, pages 85–104, 1984.
- [4] H. Bultynck, F. Onofri, G. Gréhan, and G. Gouesbet. Sonde phase Doppler miniature: application aux diagnostics en milieux hostiles. *5ème congrès francophone de vélocimétrie laser, 24-27septembre 1996*, pages G1-1 G1-8, 1996.
- [5] 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.
- [6] G. Gréhan, G. Gouesbet, A. Naqwi, and F. Durst. Particle trajectory effects in Phase Doppler systems: Computations and experiments. *Part. Part. Syst. Charact.*, 10:332–338, 1993.
- [7] C. Tropea J. Domnick, H. Ertel. Processing of phase-Doppler signals using the cross-spectral density function. In *3 th European Symposium Particle Characterization (PARTEC 92)*, Nurnberg, pages 473–483, 1988.
- [8] 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.
- [9] F. Onofri. Phase doppler software 1dv1.2. Rapport interne LESP URA CNRS 230 Rouen (FRANCE), 1996.
- [10] DANTEC/INVENT. DANTEC/invent Measurement Technology GmbH Am Weichselgarten 21 D-91058 Erlangen.
- [11] AEROMETRICS. Headquarters, 550 Del Rey Avenue, Sunnyvale. (CA) 94086 USA.

LES ZONES A ATMOSPHERE CONTROLEE DANS L'INDUSTRIE

Jean-François CHASSAING

Cabinet CLEAN CONCEPT Ingénierie
47, rue de la Coussaye, 95880 ENGHIEEN-LES-BAINS

Face aux besoins sans cesse grandissant de zones "propres" dans l'industrie, il nous est paru nécessaire de faire le point sur ces marchés nouveaux.

En effet depuis un certain nombre d'années, le besoin grandissant de zones "hors contamination" se fait jour dans tous les types d'industries (micro-électronique, pharmaceutique, IAA, spatial etc.....).

Ce besoin, si il est parfaitement identifié et maîtrisé par les industriels "High-Tech", n'en demeure pas moins très mal appréhendé par beaucoup.

Ceci nous amène à rencontrer des incohérences majeures sur nombres de réalisations et trop souvent sur les procédures de validation et maintenance de ces zones.

L'exposé que nous proposons, abordera le problème majeur de l'adéquation entre les besoins techniques réels et les moyens mis en oeuvre pour accéder à l'outil idéal.

Il aborde dans un ordre chronologique :

-la détermination du besoin d'Ultra-Propreté face à un problème, ce dans divers secteurs d'activités industrielles.

-la définition des moyens généraux à mettre en oeuvre.

-le suivi de réalisation des installations.

-un chapitre important est consacré à la validation analytique des performances de ces zones.

-il est aussi abordé très précisément l'aspect humain, c'est à dire l'évaluation des compétences requises de la part des intervenants à tous niveaux.

I QU'EST CE QUE L'ULTRA PROPRETE?

L'Ultra Propreté est l'ensemble des moyens mis en oeuvre pour assurer la prévention des contaminations par des éléments indésirables d'un environnement destiné à assurer les performances supérieures d'un produit ou la sécurité des hommes.

II POURQUOI L'ULTRA PROPRETE?

Les performances et la qualité des produits fabriqués sont devenus des enjeux vitaux pour les entreprises d'aujourd'hui et encore plus de demain. La sécurité des hommes doit être l'enjeu d'aujourd'hui et de demain. C'est aussi une obligation morale.

Nous avons pu constater depuis plusieurs années une dérive dans l'ultra-propreté, dérive allant jusqu'à perdre de vue le pourquoi de l'ultra-propreté.

Celle-ci est trop souvent mal définie car mal comprise.

Pour les uns, il s'agit d'une charge supplémentaire à supporter et dont il faut s'accomoder tant bien que mal.

Pour les autres, l'objectif a été partiellement perdu de vue, il s'agit alors d'un challenge, d'un sport pour lesquels les installations les plus fabuleuses mais aussi les plus ruineuses sont conçues.

C'est pourquoi il est urgent d'établir un dialogue en partenariat entre les acteurs de l'ultra propreté.

L'ultra propreté est un empilement de techniques diverses, c'est aussi un état d'esprit et aussi un peu de bon sens. Elle est aussi une chaîne allant de la conception d'un produit ou d'un acte, jusqu'à sa finalité. Tout élément matériel ou immatériel rentrant dans ce processus devra être pris en compte .

La qualité de la chaîne de l'ultra propreté sera toujours du niveau de qualité du

maillon le plus faible de cette chaîne.

A quoi bon concevoir de merveilleuses salles à atmosphère contrôlée, si celles-ci ne sont pas validées selon les règles de l'art ou sont entretenues de manière aléatoire.

Ces exemples sont malheureusement très nombreux.

Contrairement aux idées reçues l'Ultra-propreté ne coûte pas cher, ce qui coûte cher, très cher, c'est l'excès ou le manque d'Ultra-propreté adaptée à un besoin.

Cet état de fait est en grande partie dû à un manque total de cohésion, de dialogue entre les acteurs de l'Ultra-propreté, équipementiers, prestataires, clients.

Ceci a pour conséquence des considérations de part et d'autre qui ne devraient pas être ce qu'elles sont aujourd'hui.

L'Ultra-propreté fait effectivement appel à des disciplines et des connaissances multiples:

Architecte, constructeur, cloisonniers, filtreurs, ergonomiciens, métrologues, prestataire en nettoyage, fabricants de vêtements, de machines etc....

Pas un seul de ces professionnels ne possède la vérité absolue, c'est alors que doit s'établir un partenariat avec le client homme orchestre.

Chaque partie se doit de faire un effort pour apprendre les contraintes des autres et pour faire connaître son métier.

C'est ainsi que nous arriverons à l'excellence.

III QUELLE ULTRA PROPRETE?

I-1 En micro-électronique

Secteur des plus exigeants, l'industrie micro-électronique utilise des zones en classes 1 à 100. Ce niveau de maintien de l'Ultra-propreté doit se situer à ce niveau spécifique.

La principale source de contamination étant la particule, il conviendra de porter le plus grand soin durant toute intervention.

III-2 En pharmaceutique

Il s'agit là aussi de zones allant de la classe 100 à la classe 10000 dans lesquelles les contaminations dangereuses sont d'ordre microbiologique et particulaire.

Une attention toute particulière sera portée sur les pressions différentielles interzone, afin d'éviter les contaminations croisées.

III-3 En industrie agro-alimentaire

Le plus souvent utilisation de zones en classe 1000 ou 10000, et de postes à flux d'air laminaire en classe 100 aux points critiques de la production (conditionnement, tranchage etc.....).

Le risque de contamination est essentiellement d'ordre microbiologique.

Ce secteur d'activité est sans aucun doute celui connaissant le plus fort développement.

III-4 En hospitalier

Secteur à fort risque potentiel, le secteur hospitalier utilise essentiellement des zones en classe 100 voir en classe 10, au niveau des blocs opératoires, chambres d'isolation.

Le niveau de performance des installations doit être à son plus haut niveau.

Une attention toute particulière sera portée à la qualité des nettoyages.

IV IDENTIFICATION DES BESOINS ET DES OBJECTIFS

Tout projet de réalisation d'installation ultra propre commence par la définition de l'objectif de performance ou de sécurité à obtenir pour un produit ou un acte.

Cet objectif clairement identifié va déterminer la taille et les performances des installations nécessaires. Il déterminera aussi les méthodes de travail et de maintenance des installations. C'est trop souvent une chose oubliée.

Les concepteurs, constructeurs doivent impérativement en partenariat avec leur client définir ces objectifs et les moyens en fonction des seuls critères techniques. L'aspect financier ne doit pas pour autant être oublié; Il conviendra alors toujours en partenariat de trouver le meilleur équilibre.

L'ensemble des éléments permettant d'assurer le maintien à niveau de performance initial sera aussi pris en compte. Il s'agit essentiellement du suivi analytique et des procédures de nettoyage.

V DEFINITION DES MOYENS A METTRE EN OEUVRE

V 1 ELABORATION D'UN PARTENARIAT

C'est une chose primordiale, en effet les interlocuteurs du client doivent parfaitement connaître le métier de leur client et ses contraintes.

Les problèmes rencontrés durant l'élaboration de microprocesseurs n'aura strictement

Les problèmes posés durant l'élaboration de microprocesseurs n'auront strictement rien à voir avec ceux rencontrés durant l'élaboration d'un soluté massif ou d'un plat cuisiné. Tous ont pourtant un point commun: la maîtrise de la contamination.

Il va sans dire que nous constatons de plus en plus une spécialisation par branche d'activité dans les entreprises d'équipement et d'études, débouchant sur l'embauche de physiciens des aérosols, vétérinaires, pharmaciens etc...

Seule cette solution peut à terme assurer l'excellence.

V 2 ELABORATION D'UN CAHIER DES CHARGES

Comme nous l'avons vu précédemment, le cahier des charges prendra en compte le niveau de performances des installations, nécessaire pour assurer la qualité ou la sécurité du produit fabriqué, à savoir :

- classe d'empoussièremment en cours de production
- ergonomie des postes de travail
- compatibilité physique, chimique, bactériologique des constituants
- facilité d'intervention pour les opérations de maintenance courantes
- aménagement des locaux indispensables pour les entreprises extérieures (nettoyage)

Ce cahier des charges devra toujours être en conformité avec les objectifs et avec les spécifications ou recommandations propres à chaque activité (Bonnes Pratiques de Fabrication etc...)

V 3 SUIVI DE REALISATION

Le suivi de réalisation du chantier sera assuré par un chef de chantier connaissant parfaitement les spécificités du client.

Ce suivi pourra aussi être confié à une entreprise extérieure spécialisée n'étant ni

juge ni partie.

Toutes ces précautions paraîtront peut-être excessives, mais des exemples trop nombreux et parfois retentissants montre que l'on est jamais trop prudent.

La non conformité peut parfois couter extrêmement cher tant en résultat qu'en image de marque.

V 4 RECEPTION ET VALIDATION

Outre le maître d'ouvrage qui assurera le contrôle de la qualité de réalisation de son chantier, la réception/validation des zones réalisées sera de préférence assurée par une entreprise extérieure spécialisée en métrologie et là aussi n'étant ni juge ni partie.

Une attention toute particulière sera portée sur ces contrôles, car la qualité de ces derniers et donc l'émission des rapports de validation déclencheront l'acceptation des installations par le client et donc son paiement.

Le client devra toujours s'assurer de la compétence des intervenants, de la compatibilité des appareils de mesures par rapport aux normes en vigueur, du strict respect du cahier des charges défini ou des normes applicables.

Seul le respect intégral des normes existantes (Fd Sd US 209 E, AFNOR NF X 44 101, NF X 44 102, NF S 90 351, etc...) pourra déclencher l'émission d'un procès verbal de conformité par rapport à ces normes.

La non application intégrale des normes déclanchera uniquement un rapport de contrôle par rapport à un cahier des charges défini et accepté par le client, mais non par rapport à une norme.

V 5 FORMATION DES HOMMES

Pour produire mieux, il faut penser à la formation et à la qualité des hommes, passage obligé et déterminant de l'Assurance de la Qualité.

Il est du devoir de chacun de parfaire ses connaissances dans son domaine d'activité

C'est pour cela que la formation des intervenants en zones à atmosphère contrôlée sera régulière et pratiquée par des spécialistes. Il sera enseigné en particulier les principes de la contamination et les règles de comportement en zones.

V 6 ASSURANCE DE LA QUALITE

L' Assurance de la Qualité englobera aussi le fonctionnement et l'exploitation des zones à atmosphère contrôlée. Pour cela, il sera indispensable de mettre en place les procédures d'exploitation et d'utilisation de ces zones.

Il existe à ce jour des procédures standards, celles ci pourront être adaptées si besoin est à la configuration particulière d'une entreprise.

COMPORTEMENT DES FILTRES A AIR DE VENTILATION GENERALE VIS-A-VIS DES AEROSOLS BIOLOGIQUES

A. GINESTET*, S. MANN**, S. PARAT**, S. LAPLANCHE*,
J.H. SALAZAR*, D. PUGNET*, S. EHRLER**, A. PERDRIX**

* CETIAT (Centre Technique des Industries Aéronautiques et Thermiques)

27/29 Boulevard du 11 novembre 1918. BP 2042. 69603 Villeurbanne cedex. France

** IUMTE (Institut Universitaire de Médecine du Travail et d'Ergonomie)

Service de Médecine du Travail. RCH. Hôpital A. Michallon. BP 217. 38043 Grenoble cedex, France

ABSTRACT

The bioaerosol filtration efficiency of clean filters used in general ventilation (class efficiency ranging from EU4 to EU7) was measured and compared to the fractional efficiency on non viable particles (latex) determined with an optical particle counter in the particle size range from 0.3 μm up to 10 μm . The bioaerosol efficiency appears close to the non viable efficiency measured on latex particles at the same size, except for EU4 filters which have bioaerosol filtration efficiency on *Staphylococcus epidermidis* 2.5 times greater than the latex particles efficiency (assuming that the size of bioaerosols, 1 μm for *Staphylococcus epidermidis* and 3 μm for *Penicillium*, was that of the micro-organisms generated). Shedding of micro-organisms from the same filters loaded with outdoor air was also measured. Some particles were measured for a short time at the beginning of the test, but overall shedding was low, less than bioaerosols concentrations usually measured in indoor air. Shedding seems to depend neither on the loading of the filters, air velocity and humidity.

INTRODUCTION

Afin de comprendre le rôle des installations de conditionnement d'air sur la pollution biologique à l'intérieur des locaux, il est nécessaire de mieux connaître le comportement des composants des systèmes de ventilation, en particulier celui des

filtres. L'efficacité biologique de filtres à air neufs utilisés en ventilation générale a été mesurée vis-à-vis d'un champignon, *Penicillium*, et d'une bactérie, *Staphylococcus epidermidis*, et comparée à l'efficacité spectrale (en fonction de la taille des particules) mesurée vis-à-vis de particules de latex à l'aide d'un compteur optique à source laser. Le relargage en micro-organismes des mêmes types de filtres encrassés naturellement a également été mesuré. Les filtres encrassés ont été caractérisés par la mesure de leur efficacité spectrale, perte de charge et accroissement de masse (masse de poussière collectée).

MOYENS EXPERIMENTAUX

Les caractéristiques des filtres à air utilisés sont répertoriées dans le *tableau 1*.

L'efficacité des filtres a été mesurée vis-à-vis des particules de latex, conformément à la méthode d'essais décrite par la recommandation EUROVENT 4/9 [1]. La perte de charge des filtres a également été mesurée. Le banc d'essais utilisé pour ces essais est décrit à la *figure 1*. Le banc est alimenté en air propre (dépourvu de particules) à débit d'air constant. Les particules de latex (neutralisées) sont injectées en amont du filtre en essais. Le compteur optique de particules à source laser (PMS LASAIR 310), relié à un ordinateur et à des lignes de prélèvement, réalise successivement et alternativement des prélèvements à l'amont et à l'aval du filtre en essais.

TYPE	REFERENCE	MEDIA	EFFICACITE	
			classe	(%)
plissé	A	synthétique	EU 4	92 % - 95% gravimétrique
à poches	B	synthétique	EU 4	90 % gravimétrique
à poches	C	synthétique	EU 6	60 % à 80 % opacimétrique
à poches	D	fibres de verre	EU 7	80 % à 90 % opacimétrique
à poches	E	fibres de verre	EU 7	80 % à 90 % opacimétrique

tableau 1. Caractéristiques des filtres à air (données constructeurs).

L'efficacité des filtres E_i (pour chaque tranche granulométrique i) se déduit des mesures de concentrations amont ($C_{am,i}$) et aval ($C_{av,i}$) effectuées par le compteur, sur la plage granulométrique $0,3 \mu\text{m} - 10,0 \mu\text{m}$:

$$E_i = \left(1 - \frac{C_{av,i}}{C_{am,i}}\right) \times 100.$$

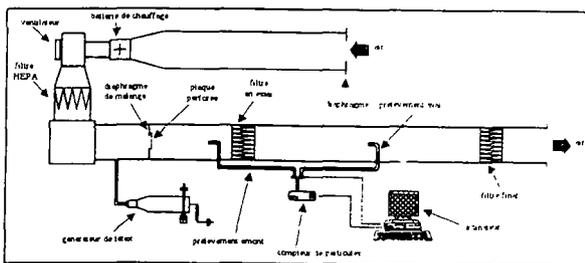


figure 1. Schéma de principe du banc d'essais pour la mesure de l'efficacité spectrale.

Pour les mesures d'efficacité biologiques, un autre banc d'essais a été utilisé (figure 2).

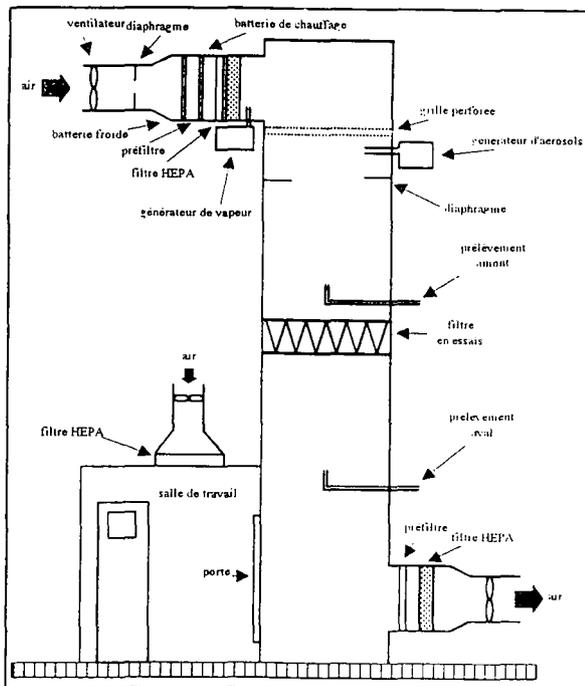


figure 2. Schéma de principe du banc d'essais pour la mesure de l'efficacité biologique.

Ce banc, disposé en position verticale, est spécialement conçu pour les mesures biologiques. L'ensemble de traitement d'air constitué d'une batterie froide, une batterie chaude, un humidificateur à vapeur et une filtration à très haute efficacité, permet de faire circuler dans le banc

d'essais un air à débit constant contrôlé en température et humidité relative. Les micro-organismes sont générés à l'amont du filtre en essais à l'aide d'un générateur Collison alimenté en air sous pression (3,6 bar pour le champignon et 1 bar pour la bactérie). Les concentrations amont et aval en micro-organismes sont déterminées à l'aide de 3 impacteurs Andersen 1 étage en aval, et 1 impacteur 1 étage et 1 impacteur 6 étages en amont. L'efficacité des filtres se déduit des mesures de concentrations amont (C_{amont}) et aval (C_{aval}) :

$$\text{Efficacité} = \frac{(C_{amont} - C_{aval})}{C_{amont}} \times 100.$$

Les milieux de culture, placés dans les impacteurs Andersen, sont Malt Agar + Chloramphénicol pour *Penicillium* et Trypticase Soja pour *Staphylococcus epidermidis*. A la fin de chaque essai, répété 6 à 8 fois (1 filtre neuf à chaque fois), les boîtes de pétri sont mises à l'étuve pendant 24 à 72 heures à 27°C . Le nombre de colonies alors comptées est ensuite corrigé selon la méthode des orifices positifs [2], et converti en CFU/m³ (Unité Formant Colonie par mètre cube d'air). Au cours des essais, la température de l'air était de 20°C et l'humidité relative égale à 80 %. Les essais ont été réalisés pour 2 vitesses d'air (frontale) différentes, 2,5 m/s et 3.5 m/s, et pour 2 niveaux de concentration.

Les mesures de relargage en micro-organismes ont été réalisées dans le même banc d'essais que celui utilisé pour les mesures d'efficacité biologiques. Les filtres colmatés proviennent d'installations de traitement d'air situées dans les régions de Lyon et Grenoble. Leur niveau de colmatage permet de les classer en "milieu de vie" ou "fin de vie". Ils sont remplacés, après prélèvement, par des filtres neufs. Les mesures de relargage ont été réalisées en positionnant le filtre dans le banc d'essais et en le ventilant avec de l'air propre contrôlé en débit, température et humidité relative. Le relargage des filtres, mesuré à l'aide de 4 impacteurs Andersen 1 étage disposés en aval du filtre en essais (mêmes milieux de culture que pour les mesures d'efficacité), a été déterminé à 2 vitesses d'air (2,5 m/s et 3.5 m/s) et 2 humidités relatives de l'air (40 % et 80 %). Chaque essai a été réalisé 2 fois.

En outre, 20 mg de poussière ont été prélevés sur chaque filtre (face amont) testé afin de caractériser la contamination microbienne des filtres et de comparer entre eux les filtres provenant d'une même installation de traitement d'air. Les filtres colmatés ont été caractérisés par leurs variations d'efficacité spectrale, de perte de charge et de masse.

RESULTATS ET DISCUSSION

Les résultats des essais d'efficacité sont disponibles dans le *tableau 2* en ce qui concerne l'aérosol inerte (latex) et dans le *tableau 3* pour les aérosols biologiques (champignon et bactérie).

L'efficacité de filtration vis-à-vis des aérosols biologiques apparaît proche de l'efficacité mesurée vis-à-vis de l'aérosol de latex, à la même taille, sauf pour les filtres EU4 qui ont une efficacité de filtration vis-à-vis du *Staphylococcus epidermidis* environ 2.5 fois supérieure à celle du latex (en supposant que la taille des aérosols biologiques, 1 μm pour *Staphylococcus epidermidis* et 3 μm pour

Penicillium, est celle des micro-organismes générés). L'incertitude sur la taille des aérosols biologiques, leur mortalité pendant le passage dans le filtre ou l'agglomération de ces particules entre elles, sont des explications possibles de ce résultat.

Ces résultats sont cohérents avec ceux de la littérature. KEMP et al. [3] ont observé des efficacités biologiques "en accord" avec des efficacités mesurées avec un compteur de particules. GUANG-BEI et al. [4] ont montré que l'efficacité de filtres vis-à-vis de bactéries est voisine de l'efficacité mesurée sur des particules de dimension supérieure ou égale à 5 μm .

dp (μm)	efficacité spectrale (%)							
	filtre A - EU4		filtre B - EU4		filtre C - EU6		filtre D - EU7	
	V 2,5 m/s	V 3,5 m/s	V 2,5 m/s	V 3,5 m/s	V 2,5 m/s	V 3,5 m/s	V 2,5 m/s	V 3,5 m/s
0,3 - 0,5	5,5	10,0	8,7	11,0	85,0	82,6	71,3	74,8
0,5 - 0,7	9,0	16,4	11,6	15,7	90,6	87,9	84,8	87,9
0,7 - 1,0	16,6	25,6	17,6	23,0	94,4	92,9	93,4	95,6
1,0 - 2,0	27,6	33,4	28,1	36,5	97,3	96,9	98,2	99,0
2,0 - 3,0	38,4	37,3	48,2	61,8	99,1	98,9	99,7	99,8
3,0 - 5,0	44,6	37,2	70,9	79,6	99,4	99,2	99,9	99,8
5,0 - 10,0	44,6	35,4	84,7	85,2	99,5	99,0	99,9	99,7

tableau 2. Efficacité des filtres neufs vis-à-vis de l'aérosol de latex.

ref	filtre		vitesse (m/s)	<i>Penicillium</i>		<i>Staphylococcus epidermidis</i>	
	type	classe		concentration (CFU/m ³)	efficacité (%)	concentration (CFU/m ³)	efficacité (%)
A	plissé synthétique	EU4	2,5	708	43,8	366	51,8
			3,5	360	35,6	296	56,2
			2,5	1721	53,3	9572	48,0
B	à poches synthétique	EU4	2,5			221	48,0
			3,5			174	74,3
			2,5	1238	82,4		
C	à poches synthétique	EU6	2,5	257	100	593	99,6
			3,5	185	100	273	99,5
			2,5	1371	99,8	5089	98,1
D	à poches fibres verre	EU7	2,5	101	100	130	99,5
			3,5	105	100	449	99,9
			2,5	1524	100	4947	97,6

tableau 3. Résultats des essais d'efficacité vis-à-vis des aérosols biologiques.

La caractérisation des filtres colmatés est disponible aux figures 3a à 3d. Un exemple complet du type de résultat de relargage obtenu est donné dans le *tableau 4*, alors que le *tableau 5* résume l'ensemble des résultats obtenus. Dans le *tableau 5*, les signes "+" représentent les quantités de micro-organismes mesurées lors des essais de relargage et dénombrées

dans les échantillons de poussière prélevés sur les faces amonts des filtres. Pour tous les filtres, quelques particules ont été mesurées au début de l'essai de relargage, mais ce relargage reste faible, inférieur aux concentrations en aérosols biologiques habituellement mesurées à l'intérieur de locaux.

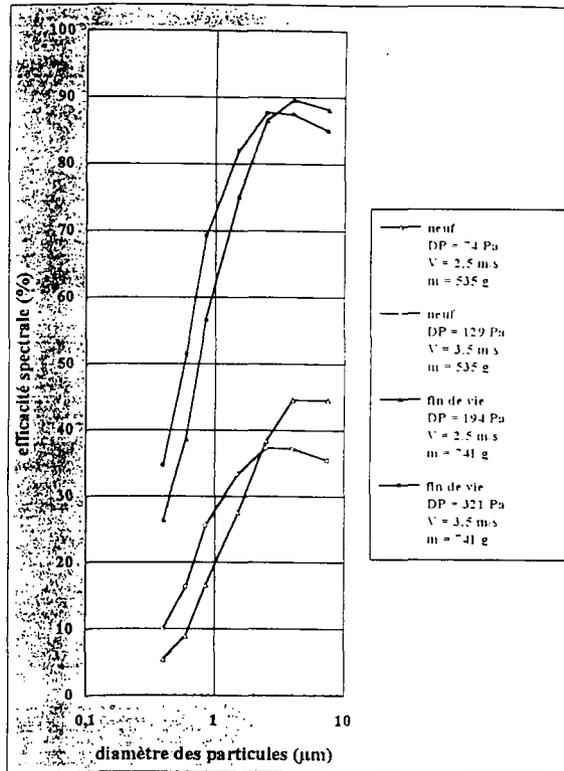


figure 3a. Efficacité spectrale du filtre A.

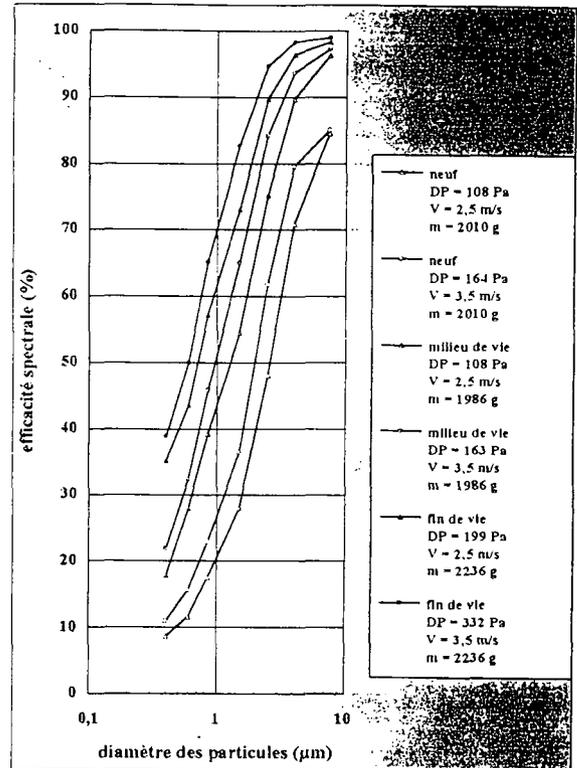


figure 3b. Efficacité spectrale du filtre B.

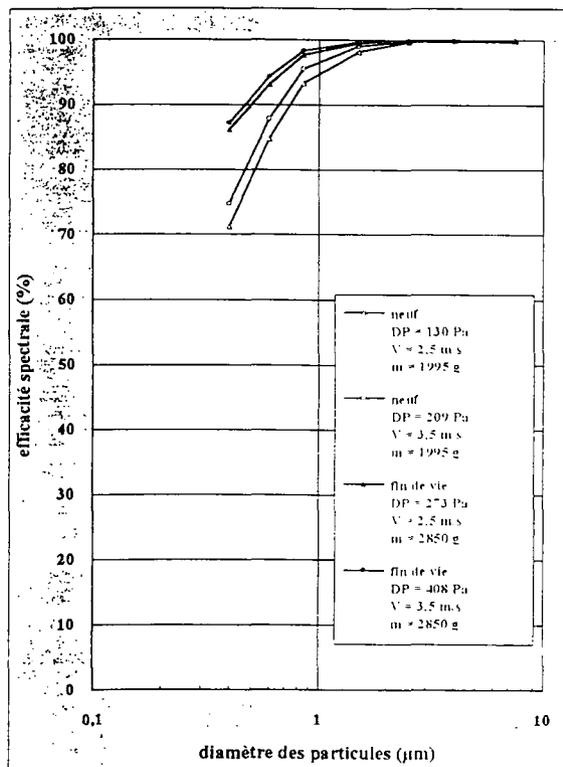


figure 3c. Efficacité spectrale du filtre D.

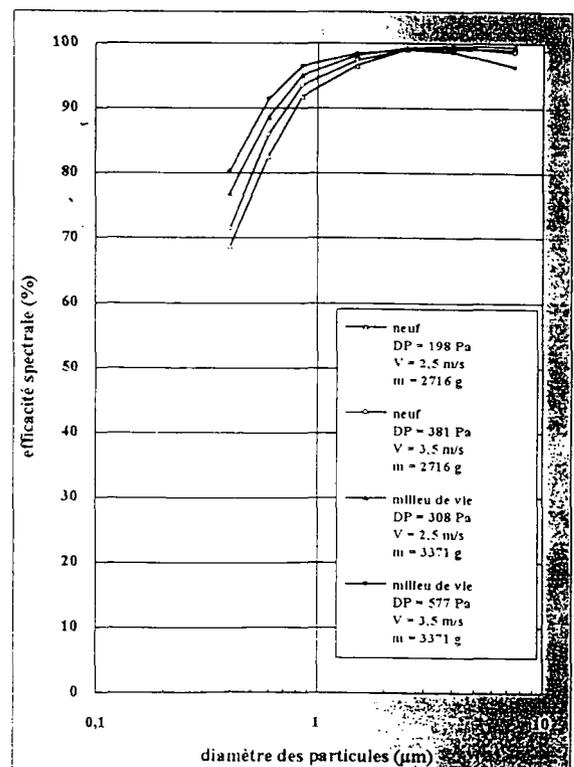


figure 3d. Efficacité spectrale du filtre E.

Le relargage semble ne dépendre ni du niveau de colmatage du filtre (pas de relation nette entre le relargage et le niveau de contamination des filtres), ni de la vitesse de l'air, ni de l'humidité relative de l'air.

temps	filtre n° 5		filtre n° 6	
	Andersen 1	Andersen 3	Andersen 1	Andersen 3
t * (avant début essai)	0	4 levure	4 <i>Penicillium</i> 3 <i>Beauveria</i>	0
t = 0	0	0	0	0
t = 15 mn	0	0	0	0
t = 30 mn	0	0	0	0
t = 60 mn	0	0	0	0
t = 90 mn	0	0	0	0
t = 120 mn	4 <i>Aspergillus niger</i>	0	0	0
t = 160 mn	0	0	0	0

tableau 4a. Relargage de champignons, en CFU/m³ (filtre B, milieu de vie, V = 3,5 m/s, HR = 40 %).

temps	filtre n° 5		filtre n° 6	
	Andersen 2	Andersen 4	Andersen 2	Andersen 4
t * (avant début essai)	7 <i>Bacillus</i>	11 <i>Bacillus</i>	14 <i>Bacillus</i>	11 <i>Bacillus</i>
t = 0	4 <i>Bacillus</i>	11 <i>Bacillus</i>	4 <i>Bacillus</i>	7 <i>Bacillus</i>
t = 15 mn	0	0	0	0
t = 30 mn	0	0	0	0
t = 60 mn	0	0	0	0
t = 90 mn	0	0	0	0
t = 120 mn	0	0	0	0
t = 160 mn	0	0	0	0

tableau 4b. Relargage de bactéries, en CFU/m³ (filtre B, milieu de vie, V = 3,5 m/s, HR = 40 %).

		bactérie	champignon
		V = 3,5 m/s	36 colonies
HR = 40 %	38 colonies	111 <i>Penicillium</i> 1 <i>Beauveria</i> 1 <i>Aspergillus flavus</i> 1 <i>Aspergillus niger</i>	

tableau 4c. Contamination poussière, filtre B, milieu de vie.

filtre	colmatage	relargage		contamination poussière	
		champignon	bactérie	champignon	bactérie
B - EU4	"milieu de vie"	0	+	++	+
B - EU4	"fin de vie"	++	++	+	+
A - EU4	"fin de vie"	++	++	+	+++
D - EU7	"milieu de vie"	+++	+++	+++	++
E - EU7	"fin de vie"	+	+	+	++

tableau 5. Résumé des essais de relargage.

CONCLUSION

Les essais réalisés sur des filtres à air de ventilation générale neufs ont montré que l'efficacité mesurée vis-à-vis de micro-organismes est au moins égale à l'efficacité mesurée sur les particules inertes, à la même taille. En outre, le relargage en micro-organismes des mêmes types de filtres colmatés naturellement se produit essentiellement à la mise en route du banc d'essais et reste largement inférieur aux concentrations en aérosols biologiques habituellement mesurées à l'intérieur de locaux.

REMERCIEMENTS

Cette étude était financée par les entreprises ressortissantes du **CETIAT**, l'**ADEME** (Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie) et **EDF** (Electricité De France).

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] *EUROVENT 4/9*. "Méthode d'essais de filtres à air utilisés en ventilation générale pour la détermination de l'efficacité spectrale". 1996.
- [2] **ANDERSEN A. A.**. "New sampler for collection, sizing and enumeration of viable airborne particles", *J. Bacteriol.* 76, p. 471 - 484, 1958.
- [3] **KEMP S. J.** et al.. "Filter collection efficiency and growth of microorganisms on filters loaded with outdoor air. *ASHRAE Transactions*, Part 1, p. 228-238, 1995.
- [4] **GUANG-BEI T.** et al.. "Study on the relationship between dust filtration and bacteria filtration", *Swiss Contamination Control*, 3, n° 4a, p. 196-198, 1990.

UNE SOLUTION INNOVANTE POUR LUTTER CONTRE L'AEROCONTAMINATION :

→ Le LAMELIOR

C. DROAL : Société FRANCE AIR, Département Salles Propres, Rue des Barronnières
BP 406, 01704 BEYNOST

Filtrer et renouveler l'air d'une salle sont des moyens universellement adoptés dans l'acte de concevoir une salle propre. Mais le flux turbulent alors obtenu ne permet pas de lutter, tout au moins de façon efficace, contre toutes les particules en suspension dans l'air et notamment contre les particules submicroniques. Pire, lorsqu'il s'agit de particules viables, donc potentiellement reproductibles, ce type de flux peut entraîner, par des phénomènes d'induction, des risques de recontamination loin d'être négligeables!

La solution classique, jusqu'à présent adaptée, consiste à créer un flux unidirectionnel à l'aide d'un plafond 100% filtrant. Si cette solution est techniquement satisfaisante, en revanche, elle augmente considérablement le prix de revient de la salle à empoussièrément contrôlée. C'est pourquoi, afin de nous adapter aux besoins des industriels, nous proposons un nouveau concept, le LAMELIOR.

Dans un premier temps, après avoir décrit la solution classique du plafond entièrement filtrant, nous décrivons notre nouveau plafond diffusant. Ensuite, trois des cinq études réalisées dans des salles blanches aux Etats-Unis, qui permettent de juger de l'intérêt et de l'efficacité de cette nouvelle technique, sont présentées. Nous discutons en particulier les résultats obtenus en terme de classe, de vitesse des filets d'air et de concentration de particules (inertes et viables).

La dernière partie de cet exposé sera consacrée aux principaux avantages et applications de cette nouvelle technique. Nous verrons que, comparée au plafond 100% filtrant, le LAMELIOR présente un enjeu considérable aussi bien d'un point de vue "aéraulique" que financier.

Etude comparative de différentes techniques de contrôle microbiologique de surface.

P. GARRY¹, F. GENSDARMES^{1, 2}, R. GONZALEZ^{1, 2}, J.L. VENDEUVRE¹

¹CTSCCV, 7, avenue du général de Gaulle 94700 MAISONS-ALFORT

²DESS Sciences des aérosols, Génie de l'aérobiocontamination, Université Paris XII CRETEIL

Résumé

Au cours de ce travail nous avons comparé l'efficacité de prélèvement de différentes méthodes de contrôle de l'état microbiologique de surface (Pétrifilm, boîte de contact, lame gélosée et écouvillon). La réponse des différentes techniques a été étudiée en fonction de différents paramètres : le type de surface (inox, polyéthylène), le type de microorganisme (*Bacillus subtilis* spores et forme végétative, *Enterococcus faecalis* et *Pseudomonas fragi*), l'état d'usure des surfaces, représenté par la rugosité moyenne et la présence d'une souillure. Afin d'intégrer l'ensemble de ces paramètres nous avons utilisé un plan d'expérience fractionnaire.

Les résultats obtenus montrent que la rugosité, la souillure, la technique de prélèvement ainsi que le type de microorganisme ont une influence sur le taux de récupération. De plus, nous avons montré que, dans tous les cas, la contamination était sous estimée.

Il semble donc important d'utiliser les résultats de contrôle avec prudence, mais aussi, de choisir une technique de prélèvement en tenant compte des différents facteurs environnementaux.

Introduction

Afin de maîtriser la contamination des denrées par l'intermédiaire des surfaces de travail, les industriels réalisent régulièrement des opérations de nettoyage et désinfection. Pour en contrôler l'efficacité, ils ont à leur disposition différentes techniques de contrôle. Différentes études menées sur le terrain par le CTSCCV, ont montré des résultats de prélèvement totalement différents en fonction des techniques de contrôle utilisées et des sites de contrôle. Ces résultats ont motivé l'étude suivante qui porte sur la comparaison de ces différentes techniques de contrôle.

Matériel et méthodes

Souches microbiennes

- *Pseudomonas fragi* (CIP 55-4, ATCC 4973)
- *Bacillus subtilis* sous forme végétative ou sous forme sporulée (souche isolée au CTSCCV)
- *Enterococcus faecalis* (CNRZ 237.1601)

Surfaces

- Inox neuf (rugosité moyenne ou $R_a = 0,04 \mu\text{m}$)
- Inox usagé ($R_a = 0,36 \mu\text{m}$)
- Polyéthylène neuf ($R_a = 0,21 \mu\text{m}$)
- Polyéthylène usagé ($R_a = 0,70 \mu\text{m}$)

Les surfaces sont nettoyées au RBS 35 ((Société des Traitements de Surface, Lille), puis stérilisées par autoclavage à 121°C pendant 15 minutes.

Encrassement et contamination des surfaces

Les surfaces sont contaminées à l'aide d'une suspension bactérienne de concentration connue. Pour les formes végétatives, les cellules sont en fin de phase exponentielle de croissance. Pour simuler un encrassement de type industriel, les surfaces sont encrassées avec du jus de cuisson de jambon.

Protocole de prélèvement

Pour l'écouvillonnage, le prélèvement est effectué comme suit : un premier écouvillonnage est réalisé avec un écouvillon humide (tryptone-sel), puis un deuxième est réalisé à l'aide d'un écouvillon sec. Les deux écouvillons sont réunis dans le même tube de dilution. Les bactéries sont ensuite dénombrées en boîtes de pétri sur le milieu adapté.

Pour les boîtes de contact, les pétrifilms et les lames gélosées, les prélèvements sont réalisés à l'aide d'une machine de traction compression (Instron). La pression appliquée est de 5000 Pa et le temps de contact de 10s. (R. Gonzalez, 1995). Les prélèvements sont effectués 4 heures après le dépôt.

Afin de limiter le nombre d'expériences nous avons utilisé un plan d'expériences fractionnaire.

Résultats

Les résultats présentés sur la figure 1 montrent des pourcentages de récupération très différents en fonction du type de micro-organisme (de 0,05% pour *Bacillus subtilis* sur Inox à 17,95% pour *Pseudomonas fragi* sur Inox également). Les valeurs présentées sur cette figure sont les valeurs moyennes, tous les facteurs confondus. Ces différences peuvent s'expliquer par des propriétés physico-chimiques de surface (charge électrique, hydrophobicité, caractère acido-basique) différentes d'un micro-organisme à un autre. Les forces d'adhésion au support résultant de ces caractéristiques, les micro-organismes se décrocheront plus ou moins facilement de la surface.

A l'exception de *Pseudomonas fragi*, il n'existe pas de différences significatives entre les deux surfaces (cf. figure 1).

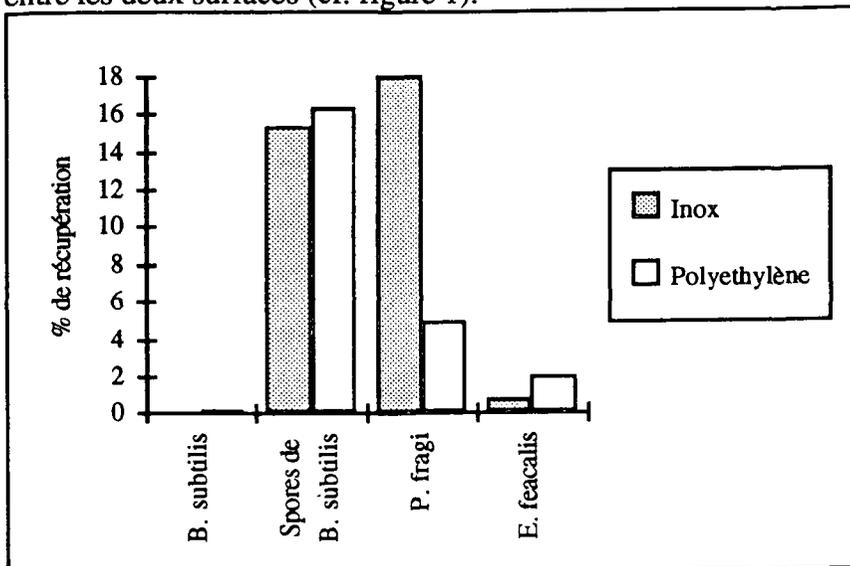


Figure 1 Pourcentage de récupération en fonction du type de micro-organisme

L'étude statistique effectuée montre qu'il est possible de classer les différentes techniques de prélèvements de façon différente en fonction du type de micro-organisme (cf. figure 2). Ainsi, pour les spores de *Bacillus subtilis* les techniques sont séparées en 3 groupes : les pétrifilms permettent de prélever 24% des cellules présentes sur la surface, le double écouvillonnage et la boîte de contact permettent de prélever environ 15% de la contamination présente sur la surface, enfin, la lame de surface ne permet de prélever que 9,3% des spores. Pour *E. faecalis* des résultats différents ont été obtenus. L'étude statistique met en évidence 2 groupes. Le double écouvillonnage avec 2,6% constitue le premier, la boîte de contact, le pétrifilm et la lame de surface avec des taux de prélèvement de respectivement 1,2 ; 0,9 et 0,8% constituent le deuxième

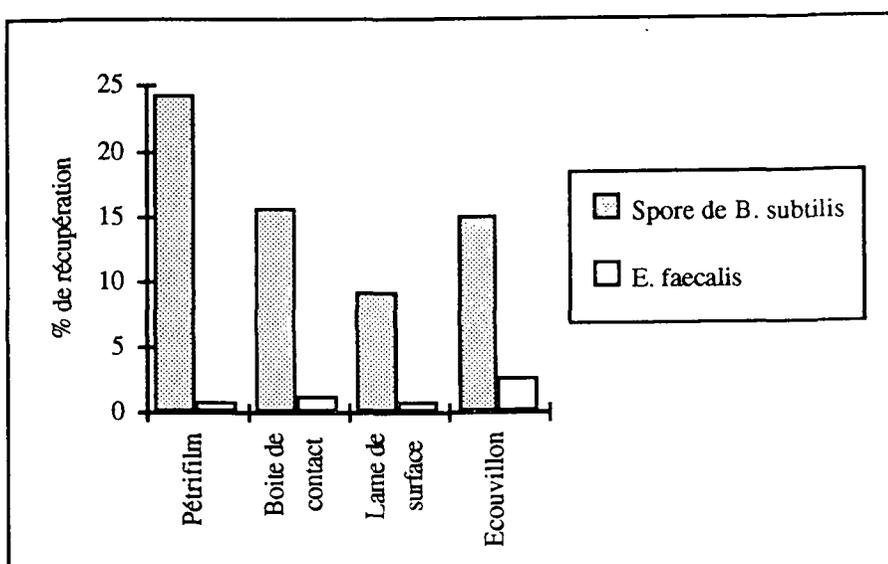


Figure n°2 Efficacité des prélèvements pour chacune des techniques.

La présence d'un encrassement de type jus de cuisson semble augmenter l'efficacité du prélèvement pour le pétrifilm, la boîte de contact et la lame de surface. Différentes hypothèses peuvent être émises. Les forces d'adhésion entre le support encrassé et le microorganisme peuvent être plus faible que celles entre le support propre et le microorganisme. Dans ce cas, il est plus facile de décrocher les microorganismes des surfaces encrassées. De plus, en présence d'une souillure les microorganismes ne sont pas en état de stress nutritif, comme ils le sont sur une surface propre. Par conséquent, moins stressés, les bactéries se multiplient plus facilement sur les supports gélosés et pour une même efficacité de décrochage le nombre de bactéries dénombrées sera plus important. Par contre, le double écouvillonnage semble plus efficace sur des surfaces propres que sur des surfaces encrassées.

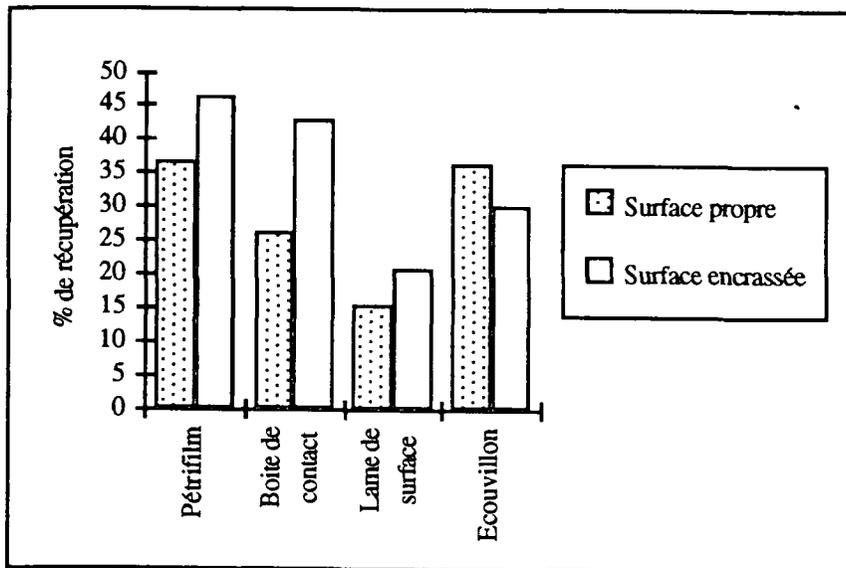


Figure n°3 Effet d'un encrassement sur l'efficacité des prélèvements.

Cette étude a permis de mettre évidence une influence de la rugosité sur l'efficacité du prélèvement. Les essais réalisés confirment les résultats de nombreuses études : la rugosité diminue le taux de récupération. Ainsi, dans notre étude le taux de récupération moyen passe de 18% pour l'ensemble des surfaces lisses à 14% pour les surfaces rugueuses. Ceci peut s'expliquer par la présence de crevasses où se logent les micro-organismes qui deviennent inaccessibles.

De plus, sur une surface lisse de meilleurs résultats sont obtenus avec le pétrifilm alors que sur les surfaces rugueuses les meilleurs résultats sont obtenus avec les boîtes de contact.

Conclusion:

Sur le terrain, le double écouvillonnage est la technique présentant les meilleurs taux de récupération. Cependant, lorsque que les conditions de prélèvement sont standardisées, le pétrifilm présentent les taux de récupération les plus élevés. Nous avons pu, également montrer, au cours de cette étude que les taux de récupération dépendaient essentiellement du type de micro-organismes (propriétés physico-chimiques, capacité à se

développer sur le milieu nutritif). Il est à noter que dans tous les cas la contamination est sous estimée. Par conséquent, ces techniques peuvent apporter une fausse sécurité notamment dans le cas de micro-organismes stressés (stress lié aux procédures de nettoyage et désinfection ou aux traitements thermiques).

Elaboration d'un protocole expérimental de contamination des matériaux de construction par un aérosol bactérien

E.Robine*, .M.Attoui**, .D.Dérangère***, R.Moreau*

* Université Paris XII, UFR Sciences, Microbiologie appliquée,
Avenue du général de Gaulle, F-94010 Creteil.

** Laboratoire de Physique des Aérosols, Université Paris XII.

*** Centre Scientifique et Technique du Bâtiment,
84 avenue J.Jaurès, F-77421 Marne la vallée cedex 02.

RESUME

Un montage expérimental a été conçu pour permettre une aérocontamination des surfaces de matériaux de construction. La production du bioaérosol est obtenue à partir d'un nébuliseur de type Collision. Il génère un aérosol polydispersé, non aggloméré à partir d'une suspension bactérienne de *Pseudomonas fluorescens* 56-90 et *Enterococcus faecalis* 10-30-15 (Collection de l'Institut Pasteur). Le comportement et les caractéristiques des deux bioaérosols, en fin de chaîne de production, ont été étudiés dans des conditions d'humidité et de température contrôlées.

Les résultats montrent que le montage assure une aérocontamination stable et contrôlable des surfaces, par un aérosol de bactéries viables. Les conditions d'aérosolisation affectent de manière différente les deux souches bactériennes.

Abstract

Development of bioaerosol technique for the evaluation of microbial growth on inert surfaces

The growth of micro-organisms in indoor environments has been associated with human health effects. Inhalation of micro-organisms or their products can cause a range of respiratory symptoms depending of their nature, the circumstances of exposure and the immunological reactivity of the subject. These symptoms have been widely referred to Sick Building Syndrome (SBS). Building materials could be considered as sinks for micro-organisms. The ability of materials in contact with indoor air to promote bacterial growth has not been extensively studied so far. Our purpose was to develop an experimental apparatus able to contaminate building material surfaces in repeatable conditions.

In order to characterize inert surfaces behaviour face to microbial contamination, an experimental apparatus and a procedure have been so developed. A 3-jets Collision nebulizer was used in the apparatus to produce a controllable concentration of polydisperse aerosols of bacteria from liquid suspensions. The characteristics of aerosolized *Enterococcus faecalis* 10.30.15 and *Pseudomonas fluorescens* 56.90 (Institut Pasteur Collection) cells have been studied, versus bacterial concentration of inoculum, working pressure, temperature...

The experimental apparatus is able to contaminate surfaces with a bioaerosol in repeatable conditions and different bacteria cells behaviour have been observed.

INTRODUCTION

La qualité de l'air intérieur constitue une préoccupation croissante en terme de santé publique. Au même titre que les polluants chimiques, les pollutions biologiques peuvent être responsables directement ou indirectement de pathologies. Le développement de micro-organismes dans l'environnement intérieur est souvent associé à des troubles de la santé. L'inhalation de bactéries ou d'endotoxines, par exemple, peut entraîner l'apparition de symptômes, pour la plupart respiratoires. Ces manifestations pathologiques dépendent des espèces, des circonstances d'exposition et du terrain immunologique des occupants. L'illustration des problèmes de santé rencontrés dans les locaux est un phénomène bien décrit dans la littérature, il s'agit du Sick Building Syndrome (SBS) traduit par le "syndrome des bâtiments malsains" (Verhoeff, Flannigan et al. 1993). Pour l'O.M.S., un bâtiment est dit "malade" lorsqu'on constate chez les occupants une série de troubles. Ces symptômes se traduisent par des troubles irritatifs (respiratoires, oculaires, cutanés, ...) qui disparaissent lorsque le sujet quitte le bâtiment. On parle de SBS si les manifestations sont répertoriés pendant une période d'au moins deux semaines chez 10 à 20% des occupants. Les causes de SBS sont multiples mais souvent imputées tout ou en partie, à une mauvaise qualité microbiologique de l'air intérieur. La survie des micro-organismes dans les locaux comme dans les milieux naturels est liée en grande partie à leur aptitude à coloniser les surfaces. Or, la capacité des matériaux de toute nature à favoriser ou inhiber la croissance microbienne est méconnue. De plus, Il n'existe pas à notre connaissance de montage permettant une aérocontamination contrôlée de matériaux de construction. Les seules références

bibliographiques, se rapprochant de nos préoccupations, utilisent la génération d'aérosol microbien dans le but d'étudier l'efficacité des préleveurs (Terzieva et al. 1996).

Les travaux de recherche engagés par le Centre Scientifique et Technique du Bâtiment (CSTB) visent l'étude des potentialités des matériaux de construction à favoriser ou non le développement microbien.

La démarche adoptée repose sur la mise au point d'un aérosol bactérien permettant de simuler une contamination microbienne aérienne des matériaux de construction et ultérieurement de caractériser l'évolution des populations microbiennes sur les surfaces contaminées, en fonction de conditions expérimentales définies (temps de contact, température, humidité relative ...) et des caractéristiques physico-chimiques des matériaux.

MONTAGE EXPERIMENTAL

Montage expérimental :

Il est composé de trois parties (lettres et chiffres renvoient au schéma 1).

La première partie, c'est à dire le générateur d'aérosol (A) est constitué par un nébuliseur Collison 3 jets (1) dont la pression est contrôlée par un manomètre (6). La gamme de pression supportée par l'atomiseur est comprise entre 0.5 et 3 bars. Pour une pression de 1 bar, le débit d'air est de 6.8 dm³/min et le débit d'eau est de 11 ml/h. L'air comprimé est préalablement purifié par une chaîne de filtration (7) composé par un filtre coalescent, un filtre charbon et un filtre à Très Haute Efficacité (THE).

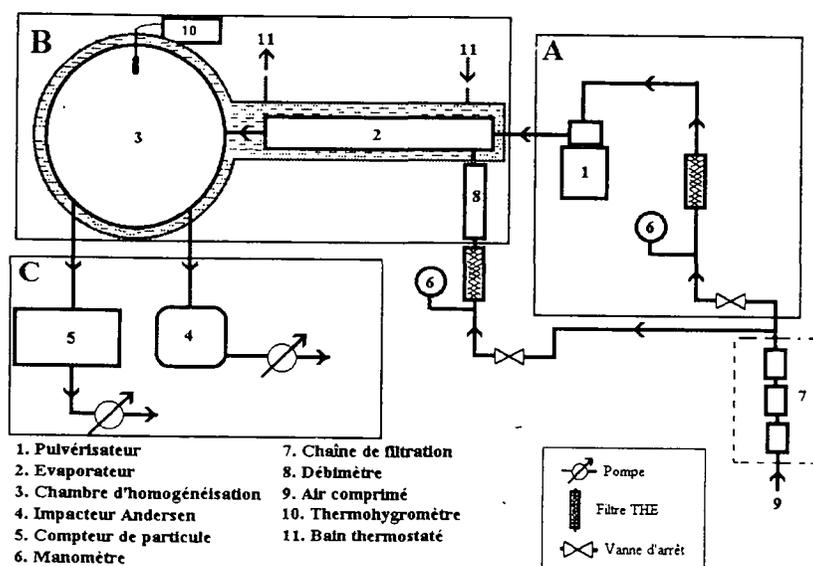


Schéma 1: Montage expérimental

La partie (B) correspond à la chaîne de production de l'aérosol. Celui-ci est dilué et séché dans un évaporateur (2) avec un débit contrôlé d'air sec (8), puis projeté dans la chambre d'homogénéisation (3). Dans cette section la température et l'humidité sont contrôlées et mesurées (10,11).

La partie (C) permet d'évaluer, en fin de chaîne de production, la concentration de bactéries cultivables (4), ainsi que la concentration particulaire (5). L'impacteur Andersen à 1 étage a pour but d'estimer la concentration des bactéries cultivables aérosolisées. Après 24 heures de culture, sur un milieu trypto caséine soja les colonies sont comptées et les résultats sont exprimés en Unités Formant Colonies par décimètre cube d'air prélevé (UFC/dm³) (Andersen, 1958). Pour notre application la gélose sera remplacée ultérieurement par le matériau à contaminer. Un compteur optique (Kratel, modèle AR S/N 842) est utilisé pour mesurer la taille (0.5 à 13 μm) et le nombre de particules aérosolisées. Le débit de prélèvement de l'appareillage est de 2.94 dm³/min et les résultats sont exprimés en particules par décimètre cube d'air prélevé (Part/dm³). Le montage fonctionne en surpression. Enfin, par mesure de sécurité, le montage assemblé de façon étanche, est placé sous une hotte à flux laminaire.

Les micro-organismes

Les essais ont été réalisés avec des souches d'*Enterococcus faecalis* 10.30.15 et *Pseudomonas fluorescens* 56.90 (Collection de l'Institut Pasteur). Les bactéries sont conservées sur des milieux trypto caséine soja en gélose inclinée à 4°C. Avant utilisation, elles subissent trois subcultures. Les colonies sont obtenues après 24 heures à 37°C pour l'*Enterococcus faecalis* et 24 heures à 28°C pour *Pseudomonas fluorescens*. Une colonie bactérienne est ensuite mise en suspension dans une eau déionisée filtrée. L'inoculum de micro-organismes est alors diluée avec de l'eau déionisé filtré dans le flacon du nébuliseur et sa concentration évaluée par la technique de dénombrement total par microscopie à épifluorescence. La coloration des cellules bactériennes est assurée par le fluorochrome 4',6-Diamidino-2-phényl-indole (DAPI) et le dénombrement est automatisé par un système d'analyse d'image.

RÉSULTATS et DISCUSSION

• Distribution en taille des particules bactériennes aérosolisées

Le compteur optique placé en aval du montage permet d'évaluer la distribution en taille des aérosols. Un témoin, composé uniquement d'eau distillée filtrée (filtre Nalgene 0.2 μm), n'induit pas la détection de particules aérosolisées en fin de chaîne de production (seuil de détection 0.5 μm). Les particules comptées, dans la suite des expérimentations seront exclusivement des particules bactériennes.

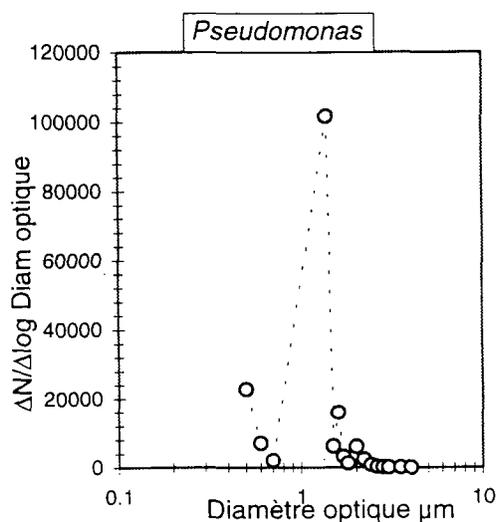


Figure 1 : profil granulométrique de *Pseudomonas fluorescens*

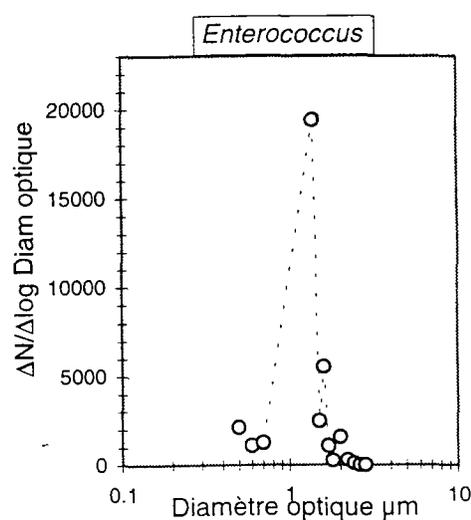


Figure 2: profil granulométrique d'*Enterococcus faecalis*

Le nébuliseur de type Collison produit un bioaérosol non aggloméré, polydispersé ($\sigma_g=1.8$), caractéristiques également observées par May, 1973. Le diamètre mesuré est de 1.4 μm pour l'*Enterococcus* et 1.5 μm de long sur 0.6 de large pour le *Pseudomonas* (Thompson et al., 1994).

• Influence de la concentration bactérienne sur la mesure d'aérocontamination

En terme de bactéries cultivables aérosolisées (UFC/dm³), nous avons constaté une relation linéaire entre la concentration introduite dans le nébuliseur et la concentration recueillie en aval sur l'impacteur Andersen. Pour prévenir la saturation de l'impacteur, la concentration microbienne à introduire dans l'atomiseur est de l'ordre de 10⁴ Bact/ml pour l'*Enterococcus* et 10⁵ Bact/ml pour *Pseudomonas*. En ce qui concerne les particules bactérienne aérosolisées, une relation linéaire pour les deux bactéries a été également observée entre la concentration introduite dans le flacon de l'atomiseur et la concentration de particules (Figure 3).

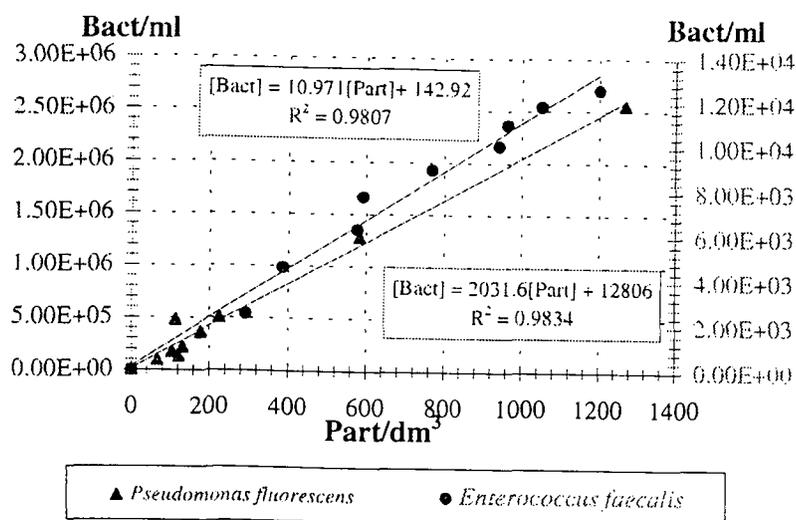


Figure 3 : influence de la concentration bactérienne dans le flacon du nébuliseur sur la concentration particulaire pour *Enterococcus* et *Pseudomonas*.

• **Influence de la pression en entrée du nébuliseur**

Il existe une corrélation linéaire entre le nombre des particules aérosolisées et la pression de nébulisation. L'augmentation de la pression accroît proportionnellement la concentration aéroportée des particules bactériennes. Par contre, en terme de bactéries cultivables, un plateau est atteint dès 0.5 bar pour le *Pseudomonas* (figure 4).

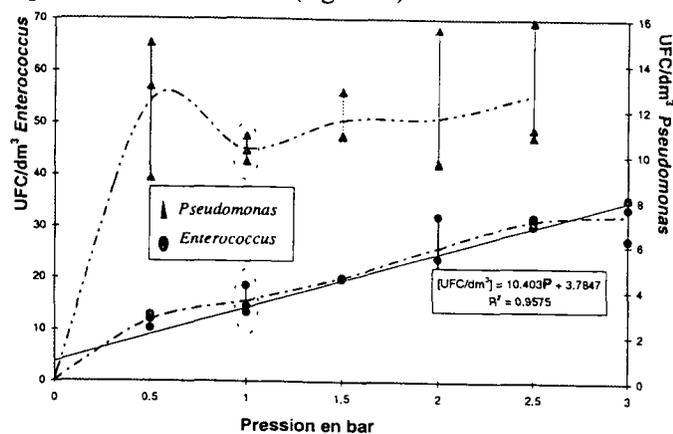


Figure 4: UFC/dm³ prélevées sur l'impacteur Andersen, pour les souches de *Pseudomonas* et *Enterococcus*, en fonction de la pression exercée en entrée de nébuliseur

La pression exercée au niveau du nébuliseur endommage probablement les cellules bactériennes qui ne peuvent plus cultiver. Une pression consigne de 1 bar a été fixée pour les deux bactéries testées, en raison de la bonne répétabilité des résultats

• **Effet de la température sur les deux bioaérosols testés**

Les valeurs d'aérocontamination pour la souche d'*Enterococcus* restent stables, sur une plage de température de 20 à 42°C. Par contre, la concentration de *Pseudomonas* décroît fortement de 22° à 25°C, puis de façon moins prononcée jusqu'à 40°C (figure 5).

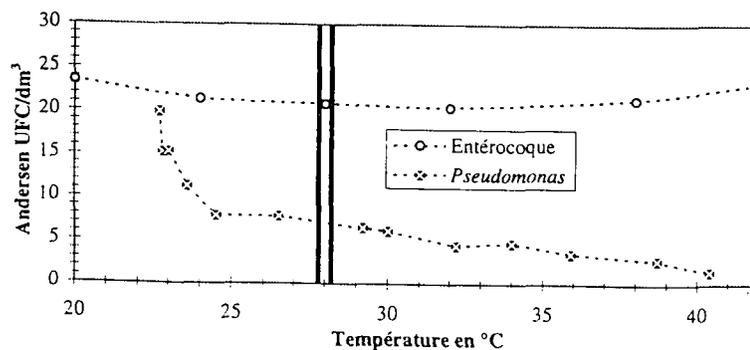


Figure 5: Influence de la température dans le montage sur la concentration bactérienne aéroportée en UFC/dm³

La cellule bactérienne est considérée comme un corps hygroscopique et l'augmentation de la température provoque une perte en eau qui endommage, parfois de façon irréversible, le micro-organisme. Le mécanisme d'action combiné de la température et de l'humidité sur la cellule bactérienne a été décrit par Cox, 1989. Une chaleur stable de 28°C(+/-0.2) a été choisie car elle évite la condensation dans le montage et limite l'effet de la température sur le comportement du bioaérosol.

• Influence du temps de prélèvement

Ces mesures avaient pour but de vérifier la proportionnalité entre le temps d'échantillonnage (au niveau de l'impacteur Andersen) et la quantité de bactéries cultivables aérosolisées recueillie. Une relation linéaire est observée pour l'*Enterococcus* pour des temps de prélèvement de 15 secondes à 5 minutes. Par contre, la souche de *Pseudomonas* conserve une linéarité jusqu'à 2 minutes de prélèvement seulement (figure 6), au delà de ce temps, la quantité prélevée devient aléatoire et peut même diminuer. La durée d'échantillonnage a donc une grande importance sur la viabilité et la culture des bactéries aérosolisées. Un temps de prélèvement trop long entraîne le dessèchement du milieu ainsi que la dessiccation des bactéries déjà impactées, ce qui provoque une mortalité ou une absence de culture pour les souches les plus fragiles.

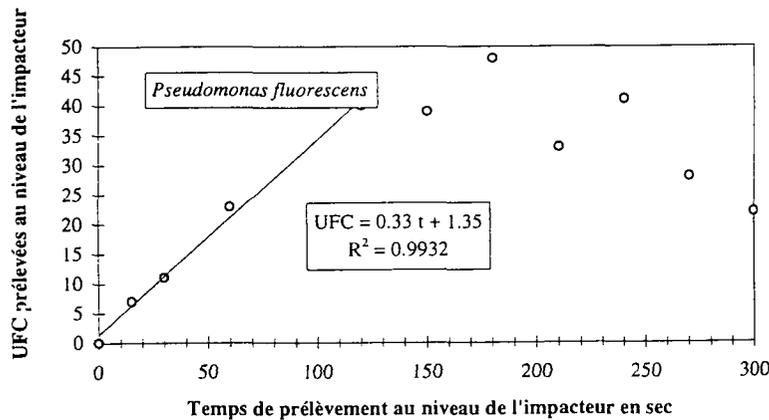


Figure 6 : Quantité de bactéries cultivables prélevées sur l'impacteur Andersen en Unités Formant Colonies (UFC) en fonction de la durée d'échantillonnage en secondes, pour la souche de *Pseudomonas*.

• Stabilité de l'aérosol

La concentration particulaire pour les deux souches bactériennes, mesurée à l'aide du compteur optique (Part/dm³), reste constante sur une période de 1 heure. L'aérosol d'*Enterococcus* mesuré à l'aide de l'Andersen (UFC/dm³) reste stable avec une répétabilité de la mesure de 10% (figure 8). Par contre, la concentration de *Pseudomonas* décroît rapidement au delà des 20 minutes de nébulisation. Une expérimentation complémentaire avec *Pseudomonas*, recentré sur cette plage de 20 minutes, a montré une stabilité de la concentration aéroportée de 17%. Le ratio entre le nombre de particules bactériennes comptées et la mesure de l'aérosol en bactéries cultivables est en moyenne de 20.

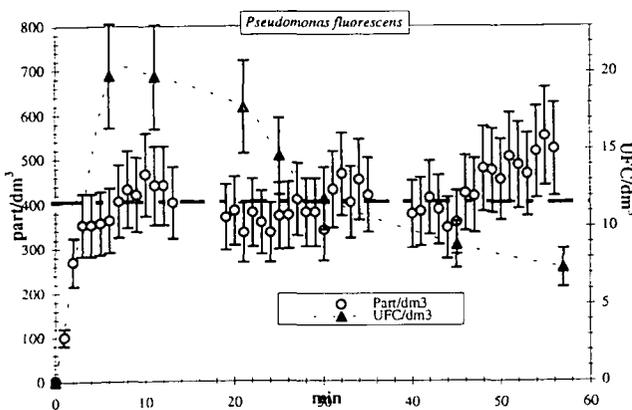


Figure 7 : Évolution de la concentration particulaire (particules par dm³) et la concentration de bactéries aérosolisées cultivables (unité formant colonie par dm³) pour le *Pseudomonas*.

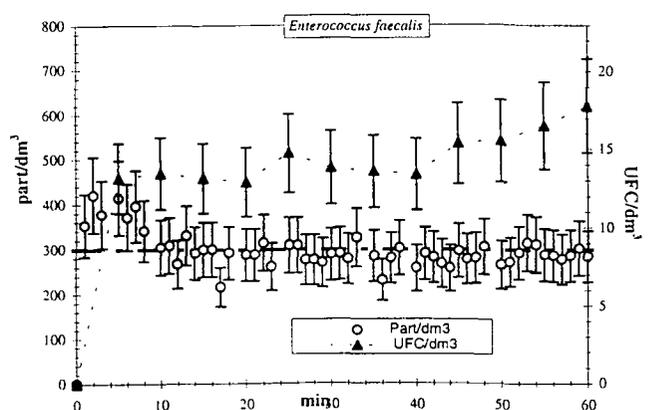


Figure 8 : Évolution de la concentration particulaire (particules par dm³) et la concentration de bactéries aérosolisées cultivables (unité formant colonie par dm³) pour *Enterococcus*.

CONCLUSION

Il existe une différence très nette de comportement entre les deux souches bactériennes étudiées. Le *Pseudomonas* se montre plus sensible que l'*Enterococcus* à l'augmentation de la pression en tête de nébuliseur, de même qu'à celle de la température; celle-ci provoque une perte en eau qui endommage les cellules. L'allongement de la durée d'aérosolisation semble aussi avoir une grande importance sur la viabilité ou du moins sur l'aptitude des cellules à cultiver. Ces observations confirment la résistance plus élevée des *Enterococcus* à Gram positif par rapport aux bactéries à Gram négatif (Strange et Cox, 1976).

Une bonne répétabilité des résultats a été obtenue pour les deux espèces étudiées dans les conditions suivantes d'aérosolisation : pression consigne de 1 bar, température stable 28°C (± 0.2); humidité relative de 30% (± 1). Il en résulte une survie de 5% des germes cultivables, ce qui est une proportion déjà élevée compte tenu des conditions expérimentales très limitantes. Enfin, les deux paramètres utilisables pour faire varier l'aérocontamination des surfaces sont la concentration de l'inoculum de départ et la durée du prélèvement au niveau de l'impacteur qui devra se limiter à 2 minutes pour la souche de *Pseudomonas*.

Le couplage du protocole d'aérosolisation contrôlée avec une technique de mesure de la contamination de surface devrait permettre de caractériser l'évolution des populations microbiennes sur les matériaux, en fonction de conditions expérimentales définies (température, humidité relative, durée d'exposition, ...). La finalité de cette étude vise la classification des matériaux de construction selon des critères de vulnérabilité à la colonisation. Des études de terrain seront indispensables à la validation des résultats de laboratoire.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- ANDERSEN, A., 1958. New sampler for the collection, sizing, and enumeration of viable airborne particles, *J. of Bact.*, 26, p 481-484.
- COX, C.S., 1989. Airborne bacteria and viruses, *Sci. Prog. Oxf.*, 73, p.469-500
- MAY, K.R., 1973. The Collison nebulizer : description, performance and application, *Aerosol Science*, 4, p 235-243.
- STRANGE, R.E., COX, C.S., 1976. Survival of dried and airborne bacteria, *Sympo.Soc.Gen.Microbiol.* 26, p 111-154.
- TERZIEVA, S., DONNELLY, J., ULEVICIUS, V., GRINSHPUN, S., A., WILLEKE, K., STELMA, G., N., BRENNER, P., 1996. Comparaison of methods for detection and enumeration of airborne micro-organisms collected by liquid impingement, *Applied and Environmental Microbiology*, july, Vol 62, N°7, p 2264-2272.
- THOMPSON, M.W ., DONNELLY, J ., SERGEY, A.G., JUOZAITIS, A., WILLEKE, K., 1994. Method and test system for evaluation of bioaerosol samplers, *J.Aerosol. Sci.*, Vol 25, N°8, p 1579-1593.
- VERHOEFF, A., FLANNIGAN, B., GRAVESEN, S., MOUILLESEAU, A., NEVALAINEN, A., COLOMBI, A., WANNER, H.U., PAPADAKCS, J., SEIDEL, K., 1993. Biological Particles in Indoor Environments, *Report n°12 European collaborative action, indoor air quality and its impact on man*, p 50.

**SOLID AND LIQUID AEROSOL PARTICLE LOADING EFFECTS ON FIBROUS FILTER
MATERIAL PERFORMANCE: AN EXPERIMENTAL STUDY**

K. L. Scurrah, J. I. T. Stenhouse
Aerosol Technology Group, Department of Chemical Engineering,
Loughborough University, Ashby Road, Loughborough, Leics. LE11 3TU, UK.

ABSTRACT

Prefilters are used in a variety of domestic and industrial applications in order to remove nuisance dusts and oils. Often, the prefilter material will require replacing after a period of use, so it is economically important to consider the lifetime of filter materials in addition to their loading behaviour.

When fibrous filters are loaded with solid aerosol particles, the deposited particles act as collection sites for incoming solid particles and dendritic structures are formed. These structures cause the collection efficiency and pressure drop across the filter to increase. Ultimately, the filter becomes 'clogged', where it becomes full of solid particles, and a cake builds up on the filter surface. As the pressure drop across this cake is usually very high, it is common practice to dispose of the media at this stage.

In contrast, loading fibrous filters with liquid aerosol particles generates an interesting response. During the initial stages of loading, both the efficiency and pressure drop increase in a similar way as found in solid particle loading. Thereafter, the behaviour becomes much more complex, due to fact that liquids flow more easily than solids. As the filter is loaded further, collected liquid particles coalesce on the filter fibres to form liquid bridges, which act as additional collection sites and enhance the filter performance. After further loading, the filter never becomes 'clogged', but reaches an equilibrium condition where the filter pressure drop and collection efficiency are constant. Additionally, liquid particle collection, drainage, internal relocation and particle re-entrainment exist during this operating regime and some types of fibrous filters can be operated for extended periods, as well as be cleaned and re-used.

This paper reports on experimental investigations into the loading behaviour of fibrous filters under solid or liquid aerosol particle loads, highlighting both the similarities and differences between the two systems.

MESURE DE PARTICULES CYLINDRIQUES PAR ANEMOMETRIE PHASE DOPPLER

N. Gauchet, T. Girasole, K.F. Ren, 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
Tél. : 35 52 83 91, fax : 35 52 83 90

Abstract : the extension of Phase Doppler Anemometry to the measurement of cylinder diameters is studied with a rigorous approach based on the resolution of Maxwell's equations. The differences induced by the choice of the model of the incident beam description are shown. Then, the properties of different possible geometries are compared.

Résumé : l'extension de l'Anémométrie Phase Doppler à la mesure du diamètre de cylindres est étudiée dans le cadre d'une approche rigoureuse, basée sur la résolution des équations de Maxwell. Les différences induites par le choix d'un modèle de description des faisceaux incidents sont mises en évidence. Puis, les propriétés de différentes géométries possibles sont comparées.

1 Introduction

L'Anémométrie Phase Doppler (APD) est une technique utilisée pour mesurer simultanément la vitesse et la taille de particules sphériques et homogènes dans des écoulements. Elle utilise la lumière que diffusent les particules lorsque celles-ci traversent un volume de mesure formé par l'intersection de deux faisceaux laser [1] [2] [3]. Récemment, cette technique a été étendue à la mesure de l'indice de réfraction des particules diffusantes [4] [5] [6] ainsi qu'à la mise en évidence d'inclusions respectant une symétrie sphérique centrée [7]. Or dans de nombreuses applications, les particules ne sont pas sphériques mais cylindriques. On trouve de telles particules lors de l'étude de fibres, ou de jets liquides en sortie d'injecteurs par exemple. La mesure des objets cylindriques n'est pas aussi développée que celle des sphères. Les principales méthodes de mesures sont basées sur l'ombroscopie, la diffractométrie [8] et les interférences entre les rayons réfléchis à l'intérieur et sur la surface du cylindre [9].

L'extension de l'Anémométrie phase Doppler, technique absolue, locale, instantanée et *in situ*, à la mesure de particules cylindriques est l'un des objectifs du laboratoire. Pour atteindre cet objectif, des approches complémentaires (théoriques, numériques et expérimentales) ont été développées à l'URA CNRS 230.

La description analytique de l'interaction entre un faisceau focalisé et un cylindre infini a été obtenue pour différentes représentations du faisceau incident [10] [11] [12] [13] [14] [15]. Puis des programmes de calculs associés, avec en particulier l'introduction d'une approximation localisée pour le calcul des coefficients de forme du faisceau, ont été écrits [16] [17] [18]. Parallèlement à cet effort fondamental, des études expérimentales, guidées par des modèles basés sur l'optique géométrique (limitée à la réflexion pure ou à la réfraction pure) ont été conduites. Ces expériences ont démontré la faisabilité de la mesure de cylindres infinis par Anémométrie Phase Doppler [19] [20] [21] [22] [23].

Cette présentation est dédiée à la description d'une géométrie phase Doppler dans le cadre rigoureux de l'électromagnétisme. Celle-ci est organisée comme suit. La section 2 rappelle les principaux résultats obtenus pour la diffusion d'un faisceau laser par un cylindre infini. La section 3 présente la géométrie phase Doppler étudiée et sa modélisation (description de la diffusion de deux faisceaux laser concourant par un cylindre infini). La section 4 compile les principaux résultats obtenus. La section 5 est une conclusion.

2 Rappel théorique

En opposition avec le cas de la sphère, toutes les imprécisions dans la description du champ incident au loin de l'axe optique sont importantes dans la prédiction de la diffusion par un cylindre qui possède une longueur infinie. Ainsi le champ diffusé ne peut être précisément décrit que dans un domaine fini de l'espace, domaine qui dépend fortement de la qualité de description du faisceau incident.

Pour représenter mathématiquement le faisceau issu d'un laser, nous pouvons choisir entre une description d'un faisceau qui satisfasse parfaitement les équations de Maxwell pour un ordre donné du développement en série de Taylor des fonctions Ψ_i qui apparaissent dans l'approche de Davis [24] ou une description du faisceau qui respecte une décroissance rapide de l'intensité dans les directions transverses (quasi-gaussien).

En coordonnées cylindriques, partant de la formulation de Davis, trois sortes de représentation de faisceau peuvent être définies:

1. Les faisceaux standards construits en utilisant un développement infini du type Davis (voir [25] pour les détails). De tels faisceaux satisfont les équations de Maxwell. Ils sont dit être maxwelliens et gaussiens. Cependant, étant difficiles à exploiter numériquement pour l'instant, ils ne seront pas discutés dans ce travail.
2. Les faisceaux qui sont maxwelliens et gaussiens seulement jusqu'à un ordre $O(s^{2p})$, où $s = \lambda/(2\pi w_0)$, avec λ la longueur d'onde du faisceau incident et w_0 le rayon au col. s est appelé le paramètre de confinement.
3. Les faisceaux quasi-gaussiens (maxwelliens) obtenus par un remodelage d'un faisceau de Davis du premier ordre (non-maxwellien), qui respectent la décroissance rapide de l'intensité dans les directions transverses.

L'interaction entre un faisceau et un cylindre infini peut être décrite sous deux formes équivalentes dans le cadre de la théorie des distributions ou par un spectre d'ondes planes [16] [17]. Suivant le type de faisceau choisi (maxwellien jusqu'à l'ordre $O(s^{2p})$ ou quasi-gaussien), et le schéma de résolution retenu (distributions ou spectre d'ondes planes), des imperfections différentes apparaîtront dans la description du champ diffusé. L'importance de ces imperfections dépend des dimensions relatives entre le cylindre et le faisceau et de la localisation du point d'étude.

Nous chercherons les conditions pour lesquelles les deux approches sont en accord, ainsi que les conditions qui permettent d'expliquer la raison de l'échec d'une approche donnée.

3 Géométrie PDA et sa modélisation

3.1 Géométrie PDA

Lorsqu'un faisceau éclaire une sphère, la lumière diffusée est distribuée dans tout l'espace. Un détecteur arbitrairement localisé collectera toujours une information sur le passage de la particule. Pour un cylindre, la lumière diffusée est localisée sur la surface d'un cône. L'axe du cône correspond à l'axe du cylindre, son demi-angle au sommet γ est égal à l'angle entre le faisceau incident et l'axe du cylindre. En outre ce cône comprend le faisceau d'éclairage après que celui-ci ait quitté la fibre (voir Fig 1-a). Ainsi, lorsqu'un faisceau fini est diffusé par un cylindre infini la lumière diffusée n'est observable que pour des positions particulières du (des) détecteur(s).

Dans cet article nous nous limitons à une orientation du cylindre orthogonale aux faisceaux incidents. Pour assurer en permanence la collection de lumière diffusée par les détecteurs, nous utiliserons la géométrie dite "plane", introduite par Naqwi pour la mesure des sphères de petites tailles [26].

Dans cette géométrie, les deux faisceaux laser incidents qui se coupent en O avec un angle 2θ , définissent un plan. La polarisation électrique des faisceaux incidents est dans ce même plan, ainsi que les détecteurs (voir Fig 1-b). Notons que Naqwi a dernièrement souligné l'intérêt de cette configuration pour la mesure de cylindres [27, 28].

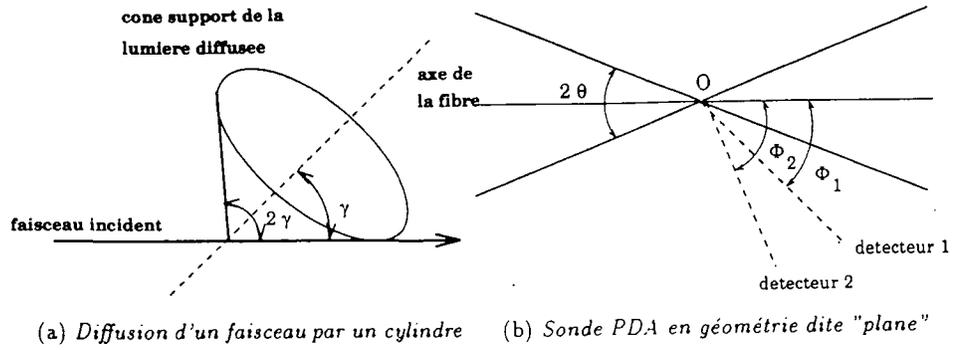


Figure 1: Représentation schématique de la configuration

3.2 Modélisation

La modélisation d'une sonde phase Doppler plane pour la mesure de cylindres infinis est l'extension formelle du travail réalisé pour les sphères (voir [29] [30], par exemple).

De la linéarité des équations de Maxwell, le champ en un point P de l'espace est la somme des champs diffusés par le cylindre à partir de chaque faisceau. Nous pouvons écrire:

$$\begin{aligned}\vec{E} &= (E_{r1} + E_{r2}) \vec{r} + (E_{z1} + E_{z2}) \vec{z} + (E_{\varphi1} + E_{\varphi2}) \vec{\varphi} \\ \vec{H} &= (H_{r1} + H_{r2}) \vec{r} + (H_{z1} + H_{z2}) \vec{z} + (H_{\varphi1} + H_{\varphi2}) \vec{\varphi}\end{aligned}\quad (1)$$

L'intensité en ce point est obtenue en injectant (1) dans l'expression du vecteur du Poynting:

$$\vec{S} = \frac{1}{2} \text{Re}(\vec{E} \wedge \vec{H}^*) \quad (2)$$

Seule la composante S_r est pertinente pour ce problème. De S_r , en factorisant le terme purement réel et en écrivant le terme complexe sous une forme exponentielle $\rho e^{i\phi}$, on obtient une expression de la forme:

$$I = P_s [1 + \nu \cos(\Delta\varpi t + \Phi)] \quad (3)$$

Dans cette expression P_s est l'intensité du signal diffusée au point P (le piédestal), ν sa visibilité (son contraste), Φ sa phase par rapport au centre O des deux faisceaux et $\Delta\varpi$ sa fréquence. Le terme $\Delta\varpi$, dû à l'effet Doppler ne dépend que de la composante de vitesse de la particule dans le plan des faisceaux, tandis que P_s , ν et Φ sont des fonctions complexes des fonctions de diffusion, c'est à dire dépendent de la particule (taille, indice de réfraction complexe, forme) du faisceau (longueur d'onde, diamètre au col), de la position de la particule dans le faisceau (position du "centre" de la fibre, orientation de la fibre) et de la position du point d'observation P . Ce sont les comportements de ces fonctions que nous allons maintenant étudier dans le cas où les faisceaux incidents sont décrits comme des faisceaux maxwelliens et gaussiens à un ordre limité (en $O(s^2)$ seulement dans ce travail) ou par un spectre d'ondes planes pour des faisceaux quasi-gaussiens.

4 Résultats numériques

4.1 Diffusion avant

Les résultats numériques présentés dans cette section correspondent tous aux géométries étudiées précédemment dans le cadre de l'optique géométrique et validées expérimentalement [23]. Les paramètres décrivant ces géométries sont compilés dans le tableau suivant:

		géométrie 1	géométrie 2
longueur d'onde	λ	0.488 μm	0.488 μm
demi-angle entre les faisceaux	θ	2.72°	2.72°
angle d'élévation détecteur 1	ϕ_1	25.2°	28.0°
angle d'élévation détecteur 2	ϕ_2	34.8°	31.9°
indice de la particule	n	1.5	1.5
ouverture des détecteurs	$\Delta\phi$	2°	2°

La figure 2 présente l'évolution de la différence de phase, du piédestal et de la visibilité en fonction de la distance détecteur-fibre. La fibre diffusante est une fibre de verre ($n=1.5$) de 10 μm de diamètre. A partir d'une distance d'environ 100 μm , ces trois quantités sont constantes. Nous effectuerons tous les autres calculs de cet article avec une distance centre du volume de mesure/détecteur de 1 mm. Ainsi, l'obtention de la valeur asymptotique des composantes du signal est assurée, quelles que soient la taille et la position de la fibre diffusante.

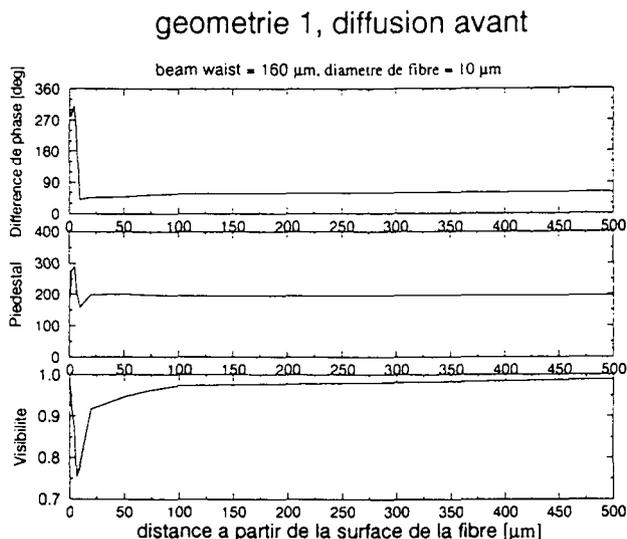


Figure 2: Evolution de la différence de phase, du piédestal et de la visibilité en fonction de la distance détecteur-fibre

La figure 3-a présente l'évolution de la phase, de la visibilité et du piédestal en fonction du diamètre de la fibre. Le col du faisceau (BW) est de 2 mm, approximant un éclairage du type onde plane. Les calculs pour des faisceaux quasi-gaussiens et pour des faisceaux maxwelliens jusqu'en $O(s^2)$ sont en parfait accord. La pente de la relation phase/diamètre est de 5.083 $^\circ/\mu m$, également en parfait accord avec les prédictions de l'optique géométrique [23], bien que de nombreuses oscillations soient prédites par la GLMT pour les cylindres. Ces oscillations, qui correspondent à des interférences entre des rayons ayant parcouru des chemins différents dans le cylindre, sont de faibles amplitudes et ne peuvent pas perturber une mesure. En effet, les pics de fortes amplitudes ont pour origine des instabilités numériques. Notons également la bonne visibilité du signal (supérieure à 0.95), ainsi que la relation linéaire croissante entre l'intensité diffusée et le diamètre du cylindre.

La série de figure 3-b/3-d présente l'évolution de la phase, de la visibilité et du piédestal en fonction du diamètre de la fibre avec comme paramètre le diamètre des faisceaux incidents. L'accord entre les prédictions pour des faisceaux quasi-gaussiens et pour des faisceaux maxwelliens jusqu'en $O(s^2)$ n'existe plus que pour les fibres de petits diamètres. Par exemple, figure 3-d, pour des fibres d'un diamètre inférieur à 50 microns environ, l'accord entre faisceaux quasi-gaussiens et faisceaux maxwelliens en $O(s^2)$ est bon. Puis un désaccord apparaît, qui s'amplifie. Ainsi pour des diamètres supérieurs à environ 70 μm , le piédestal pour des faisceaux maxwelliens en $O(s^2)$ s'accroît fortement, tandis que phase et visibilité pour ces mêmes dimensions de faisceaux oscillent fortement. Ce comportement, en désaccord avec les prédictions pour des faisceaux quasi-gaussiens et le "sens physique", est

dû aux artefacts introduits par une représentation maxwellienne en $O(s^2)$. En effet une telle représentation décrit le faisceau incident comme gaussien dans sa partie centrale, entouré de deux ailes de croissance exponentielle [17]. Lorsque la particule est suffisamment grosse, elle diffuse ces ailes, qui n'ont pas de réalité physique, et le champ diffusé à partir des ailes l'emporte sur le champ diffusé issu de la partie centrale qui, elle, continue à satisfaire l'aspect gaussien. Les faisceaux quasi-gaussiens ne souffrent pas de ce défaut.

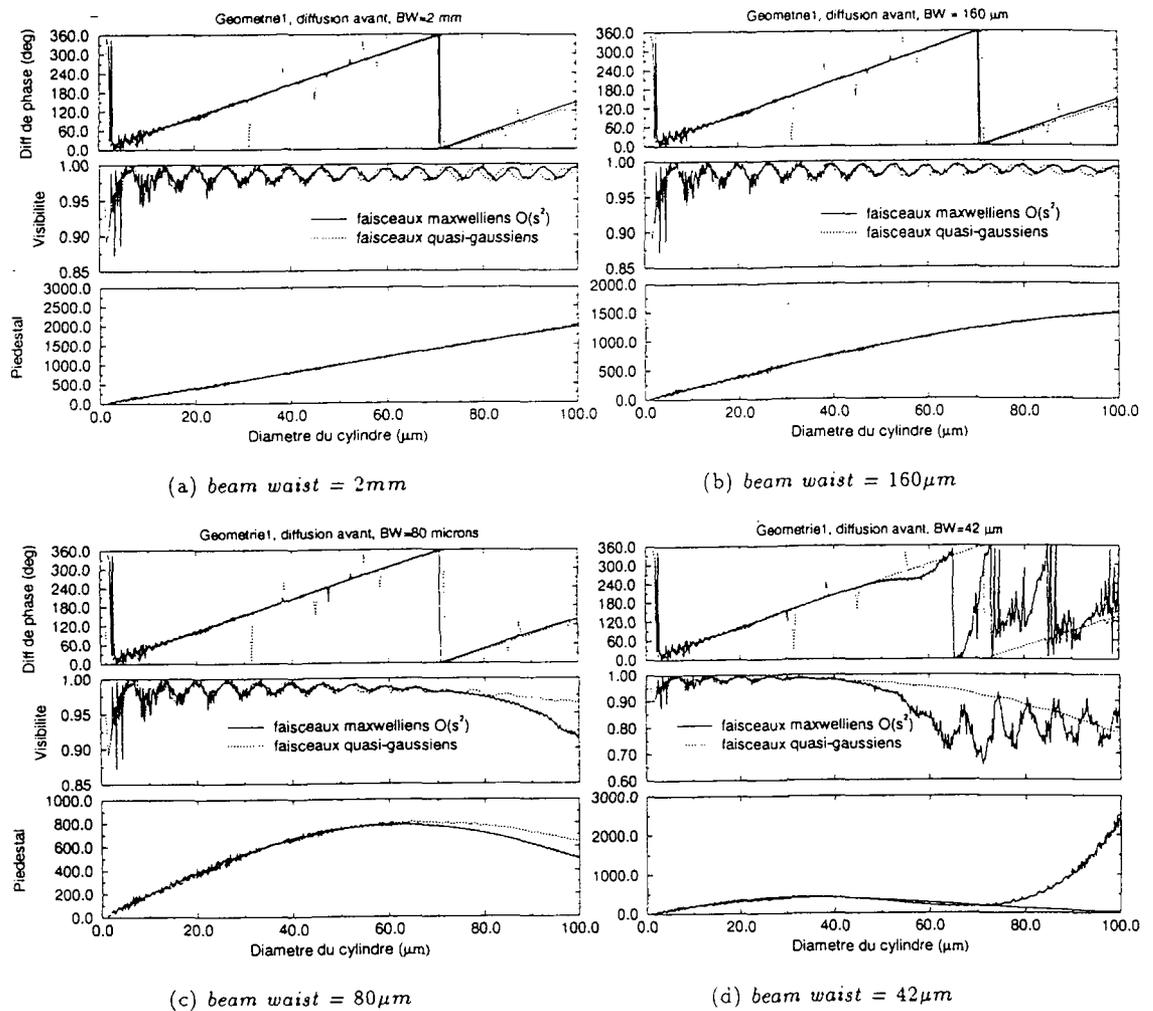


Figure 3: Evolution de la phase, de la visibilité et du piédestal en fonction du diamètre du beam waist

La série de la figure 4 décrit l'évolution de la phase, de la visibilité et du piédestal lorsque le cylindre diffusant est partiellement absorbant. Figure 4-a, l'indice du cylindre est de $1.5-0.001i$. La phase est identique à celle calculée Figure 3-a, bien que la visibilité et le piédestal évoluent différemment. Ces évolutions s'expliquent de la manière suivante: lorsque le cylindre est "petit" (inférieur à $20\ \mu\text{m}$) le phénomène de diffusion est principalement identique au cas de la particule transparente. Ensuite, plus le diamètre du cylindre augmente, plus la lumière réfractée est absorbée, le piédestal diminue. Les intensités des lumières réfléchie et réfractée se rapprochent, et la visibilité également diminue en moyenne avec de fortes oscillations. Cependant la lumière diffusée reste dominée par la lumière réfractée et la phase n'est pas altérée.

Figures 4-b et 4-c, la partie complexe de l'indice de réfraction est plus grande. Les phénomènes ci-dessus prennent plus d'importance et la lumière réfléchie devient prédominante sur la lumière réfractée. La relation phase/diamètre est altérée. Cette transition s'effectue aux alentours d'un diamètre de $30\ \mu\text{m}$, figure 4-b ($n=1.5-0.005i$), tandis que figure 4-c ($n=1.5-0.1i$), elle apparaît dès l'origine.

Les mêmes observations ont été vérifiées pour la géométrie 2.

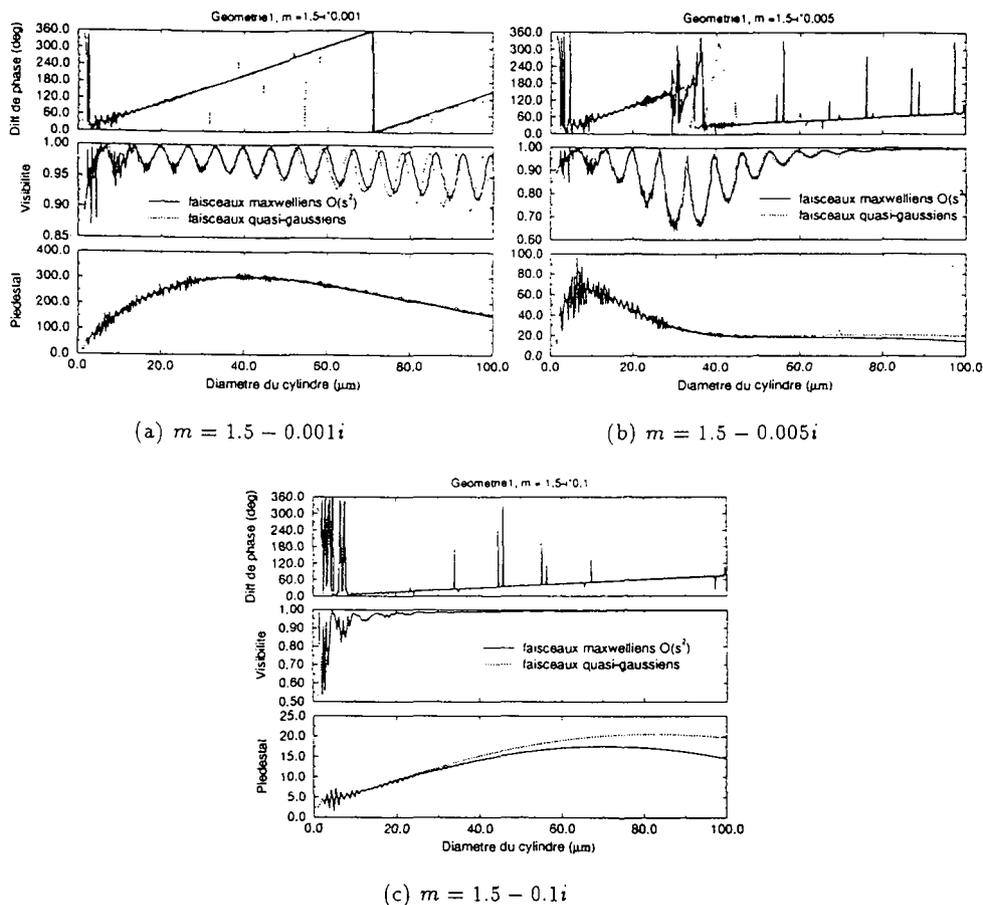


Figure 4: Evolution de la phase, de la visibilité et du piédestal en fonction de l'absorption de la fibre avec un beam waist de $160 \mu m$

4.2 Diffusion arrière

En GLMT pour les cylindres, comme en GLMT pour les sphères, la qualité de la description des champs diffusés ne dépend pas de l'angle d'observation. Nous pouvons calculer le champ diffusé en rétrodiffusion. Les géométries de calcul correspondent à celles du tableau 1 avec $\phi_i^{arrière} = 180 - \phi_i^{avant}$.

Les figures 5-a et 5-b présentent les résultats obtenus. Les pentes des relations phase/diamètre sont en accord avec les prédictions de l'optique géométrique réduite à une réflexion. Cependant, la présence de fortes oscillations dues aux interférences entre les rayons réfléchis par la surface de la particule et des rayons ayant pénétré dans la particule interdisent toute mesure avec la géométrie 1 tandis que la géométrie 2 ne présente ces oscillations que pour des diamètres de fibres inférieurs à environ 20 microns.

4.3 Cylindre hors de l'axe du faisceau

Sur la série de la figure 6, la réponse de la géométrie 1 est calculée lorsque la fibre n'est plus sur l'axe du faisceau, pour des faisceaux quasi-gaussiens. Le diamètre au col des faisceaux est de $160 \mu m$. La fibre diffusante en verre ($n=1.5-0.0i$), avec un diamètre compris entre 1 et $100 \mu m$, c'est à dire un rapport diamètre de la fibre/diamètre des faisceaux maximum de 0.625. La relation phase/diamètre est insensible à la position de la fibre dans la sonde optique (les positions transverses étudiées de la fibre varient entre -80 et $+80 \mu m$ par rapport à l'axe du faisceau).

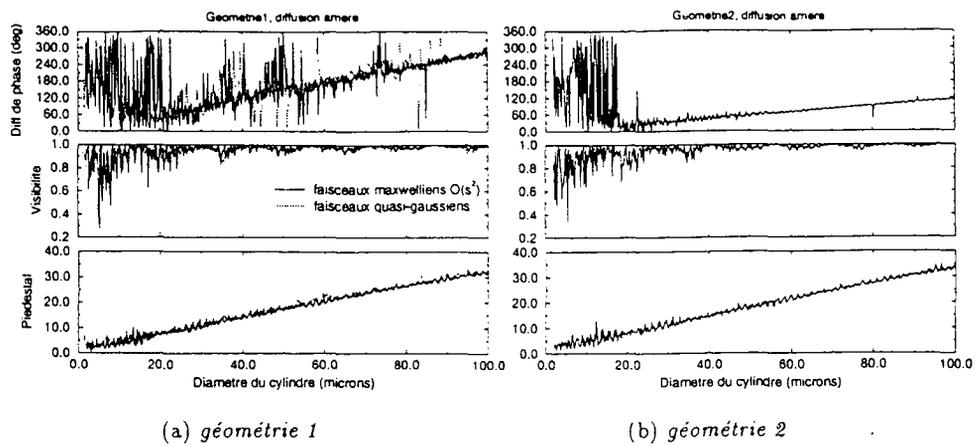


Figure 5: Evolution de la phase, de la visibilité et du piédestal pour deux géométries en diffusion arrière

La visibilité est toujours bonne, bien que son évolution pour $y_0=40 \mu\text{m}$, et $y_0=80 \mu\text{m}$ soit moins régulière que pour les autres localisations. Ceci est dû au renforcement de la lumière réfléchie dont l'importance relative croît, bien que la diffusion soit toujours dominée par la lumière réfractée. Par contre, l'évolution du piédestal est-elle très fortement fonction de la position de la fibre dans le volume de mesure. Ces quelques remarques démontrent la robustesse d'une mesure de diamètre d'objets cylindriques par anémométrie phase Doppler par rapport aux mesures basées sur l'intensité. En outre, avec les instrumentations déjà développées pour l'anémométrie phase Doppler des sphères, une très grande cadence de mesures peut être obtenue.

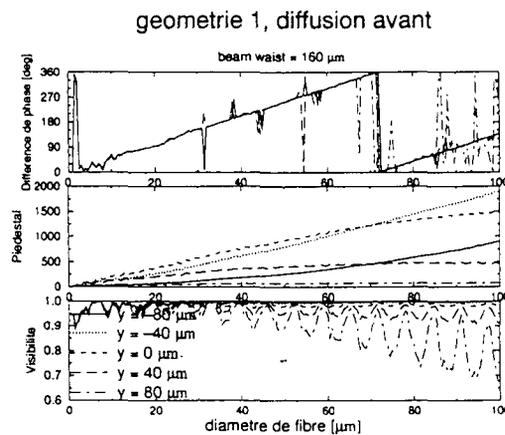


Figure 6: Evolution de la différence de phase, du piédestal et de la visibilité en fonction de la position de la fibre dans la sonde optique

5 Conclusion

La réponse d'une sonde phase Doppler est calculée dans le cadre rigoureux de l'électromagnétisme. Les résultats confirment et affinent des prédictions précédemment obtenues dans le cadre de l'optique géométrique. En outre, des résultats originaux (fibres absorbantes, fibres hors de l'axe du faisceau) démontrent les potentialités de l'approche électromagnétique. La prochaine étape est la simulation de la réponse d'un phase Doppler à une fibre arbitrairement orientée.

References

- [1] F. Durst and M. Zaré. Laser Doppler measurements in two phase flows. In *Proceedings of LDA-Symposium, Copenhagen*, pages 403-429, 1975.
- [2] W.D. Bachalo and M.J. Houser. Phase/Doppler spray analyzer for simultaneous measurements of drop size and velocity distributions. *Optical Engineering*, 23:583-590, 1984.
- [3] M. Saffman, P. Buchhave, and H. Tanger. Simultaneous measurement of size, concentration and velocity of spherical particles by a laser Doppler method. In *Laser Anemometry in Fluid Mechanics-II (Ed: Adrian, Durao, Durst, Mishina & Whitelaw) LADOAN-Lisbon*, pages 85-104, 1984.
- [4] C. Tropea, T.H. Xu, F. Onofri, G. Gréhan, P. Haugen, and M. Stieglmeier. Dual-Mode Phase-Doppler Anemometer. *Part. Part. Syst. Charact.*, 13:165-170, 1996.
- [5] G. Gréhan, F. Onofri, and G. Gouesbet. Anémométrie phase Doppler en milieux multiphasiques: vers de nouvelles possibilités. *La Houille Blanche*, (1/2):98-104, 1996.
- [6] F. Onofri, T. Girasole, G. Gréhan, G. Gouesbet, G. Brenn, J. Domnick, T.H. Xu, and C. Tropea. Phase Doppler anemometry with the dual burst technique for measurement of refractive index and absorption coefficient simultaneously with size and velocity. *Part. Part. Syst. Charact.*, 13:112-124, 1996.
- [7] F. Onofri, D. Blondel, G. Gréhan, and G. Gouesbet. On the optical diagnosis and sizing of spherical coated and multilayered particles with phase-Doppler anemometry. *Part. Part. Syst. Charact.*, 13:104-111, 1996.
- [8] D. Lebrun, S. Belaid, C. Özkul, K.F. Ren, and G. Gréhan. Enhancement of wire diameter measurements: comparaison between Fraunhofer diffraction and Lorenz-Mie theory. *Opt. Eng.*, 35(4):946-950, 1996.
- [9] J.A. Ferrari and E.M. Frins. Interferometric method for fiber diameter determination. *Opt. Eng.*, 35(4):1050-1053, 1996.
- [10] 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.
- [11] G. Gouesbet and G. Gréhan. Interaction between a Gaussian beam and an infinite cylinder using non Σ -separable potentials. *J. Opt. Soc. Amer. A*, 11(12):3261-3273, 1994.
- [12] G. Gouesbet. Interaction between Gaussian beams and infinite cylinders, by using the theory of distributions. *J. of Optics (Paris)*, 26(5):225-239, 1995.
- [13] G. Gouesbet. Scattering of a first-order Gaussian beam by an infinite cylinder with arbitrary location and arbitrary orientation. *Part. Part. Syst. Charac.*, 12:242-256, 1995.
- [14] G. Gouesbet. Interaction between an infinite cylinder and an arbitrary shaped beam. To be published by *Appl. Opt.*
- [15] G. Gouesbet. Scattering of higher-order Gaussian beams by an infinite cylinder. Submitted to *J. of Optics*.

- [16] K.F. Ren, G. Gouesbet, and G. Gréhan. Scattering of a Gaussian beam by an infinite cylinder: numerical results in GLMT-framework. In *Eight international symposium on applications of laser techniques to fluid mechanics, July 8-11, Lisbon*, pages 6.5.1-6.5.8, 1996.
- [17] K.F. Ren, G. Gréhan, and G. Gouesbet. Scattering of a Gaussian beam by an infinite cylinder in GLMT-framework, formulation and numerical results. Submitted to J.O.S.A. A.
- [18] G. Gouesbet, K.F. Ren, and G. Gréhan. Rigorous justification of the cylindrical localized approximation to speed up computations in GLMT for cylinders. Submitted to Appl. Opt.
- [19] H. Mignon, F. Onofri, G. Gréhan, G. Gouesbet, and C. Tropea. Mesure de particules non sphériques par phase-Doppler: cas des cylindres et des particules irrégulières. In *Recueil des actes du 4^{ème} congrès francophone de vélocimétrie laser*, pages 1-4, 1994. Poitiers-Futuroscope. 26-29 septembre.
- [20] F. Onofri, H. Mignon, G. Gouesbet, and G. Gréhan. Phase-Doppler measurements of non-spherical particles: cylindrical and multilayer particles. In PARTEC, editor. *4th International Congress Optical Particle Sizing*, pages 275-284. Nürnberg, Germany, 21-23 March, 1995.
- [21] H. Mignon, G. Gréhan, F. Schöone, M. Stieglmeier, C. Tropea, and T.H. Xu. Measurements of diameter and velocity of fibers using a dual PDA. In *Laser 95*. Munich, 1995.
- [22] H. Mignon, G. Gréhan, G. Gouesbet, T.H. Xu, and C. Tropea. Measurement of cylindrical particles using phase Doppler anemometer. In *Proceedings of the 1st workshop on Electromagnetic and light scattering: theory and applications*, pages 39-43. Universität Bremen, Germany, March 18-19, 1996.
- [23] H. Mignon, G. Gréhan, G. Gouesbet, T.H. Xu, and C. Tropea. Measurements of cylindrical particles using phase Doppler anemometry. *Applied Optics*, (25):5180-5190, 1996.
- [24] L.W. Davis. Theory of electromagnetic beams. *Phys. Rev.*, 19:1177-1179, 1979.
- [25] G. Gouesbet and J.A. Lock. A rigorous justification of the localized approximation to the beam shape coefficients in the generalized Lorenz-Mie theory. I: on-axis beams. *J. Opt. Soc. Amer. A*, 11(9):2516-2525, 1994.
- [26] A. Naqwi, M. Zieme, and F. Durst. Fine particle sizing using an extended phase Doppler anemometer. In *5th European Symposium Particle Characterization (PARTEC 92)*, Nurnberg, pages 267-279, 1992.
- [27] A.A. Naqwi and L.M. Jenson. Interferometric device for determining sizes and properties of cylindrical objects based on phase shift measurements., 1995.
- [28] A.A. Naqwi and L.M. Jenson. Device for interferometric measurements with compensation for tilt and position of measured cylindrical objects, 1996.
- [29] R.J. Adrian and W.L. Earley. Evaluation of laser-Doppler velocimeter performance using Mie scattering theory. T.&A.M. Report n°479, Department of Theoretical and Applied Mechanics, University of Illinois. Urbana-Champaign, USA, 1986.
- [30] A. Naqwi and F. Durst. Analysis of laser light-scattering interferometric devices for in-line diagnostics of moving particles. *Applied Optics*, 32:4003-4018, 1993.

DEVELOPPEMENT DE TECHNIQUES POUR MESURER LA DISTRIBUTION EN DIMENSION DES PRODUITS DE FILIATION A VIE COURTE DU RADON-222

C. Huet*, G. Tymen*, N. Michielsens**, D. Boulaud**

* *Laboratoire de Recherches Appliquées Atmosphère - Hydrosphère, Faculté des Sciences et Techniques, B.P. 809, 29285 BREST CEDEX*

** *Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols, IPSN/CEA, Bât 389, CE Saclay, 91191 GIF-SUR YVETTE CEDEX*

Summary : Development of techniques to measure the size distribution of short lived Radon-222 decay products. The size distribution of inhaled Radon short live decay products (Po-218, Pb-214, Bi-214, Po-214) has to be known in domestic conditions in order to determine the dose received by any individual. Usually two major fractions are considered: the unattached one represents particles whose size lies from 0.5 nm to a few nanometers and the attached compound with size going from 5 nm to a few micrometers. The last developments concerning the dosimetric models showed the importance of a better knowledge of the size distribution over the whole spectrum. The Diffusional and Inertial Spectrometer (SDI2001), conceived by IPSN, which consists in a four stages impactor followed by five parallel granular beds, is able to collect particles from 10 nm to 10 μ m. The concentrations of each short live decay product are determined by alpha-counting with Time Evolved Least squares (TELS) method. The size distributions are reconstructed by using inversion methods (EVE, Twomey). For the nanometric compound, an annular diffusion channel is used : (1) equipped with a solid state alpha track detector, it is possible to integrate free radon daughter concentration fluctuations over long periods ; (2) followed by a filter, we can continuously measure the activity concentration of radon daughters from alpha spectroscopic data. This paper reports the last developments concerning these three techniques.

Radon progeny/ attached and unattached fraction / size distribution

I- Introduction

Le radon-222 est un gaz rare naturel radioactif issu de la chaîne de décroissance de l'Uranium-238. Il est présent en teneurs variables dans les sols et matériaux de construction. Après émanation, il se désintègre et donne naissance au Po-218, au Pb-214, au Bi-214 et au Po-214 qui sont appelés produits de filiation à vie courte. Ce sont des particules solides qui se fixent facilement aux aérosols contenus dans l'atmosphère.

Le nombre important de cancers des poumons décelés chez les mineurs a conduit, dans les années 50, les scientifiques à s'intéresser au risque sanitaire dû au Radon. Ce dernier n'est pas en fait du au radon mais à ses produits de filiation à vie courte qui 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 un cancer broncho-pulmonaire.

Le risque de cancer des poumons dû à l'exposition aux dérivés du radon dans les habitations peut être estimé en considérant la dose de radiation délivrée aux cellules sensibles. Cette dose dépend principalement de la distribution en taille des aérosols, du débit de respiration et de la taille des poumons. Il est d'usage de considérer deux composantes des descendants du radon : une fraction dite non-attachée dont le diamètre particulaire varie de 0.5 nm à quelques nanomètres et une fraction attachée qui va de quelques nanomètres à quelques microns. La fraction libre représente un taux de conversion exposition-dose huit fois supérieur à celui de la fraction attachée [JA88]. Cependant, l'impact de cette dernière est loin d'être négligeable et de récentes études ont montré qu'il pourrait s'avérer plus important ; c'est pourquoi il est important d'étudier la distribution en taille sur tout le spectre.

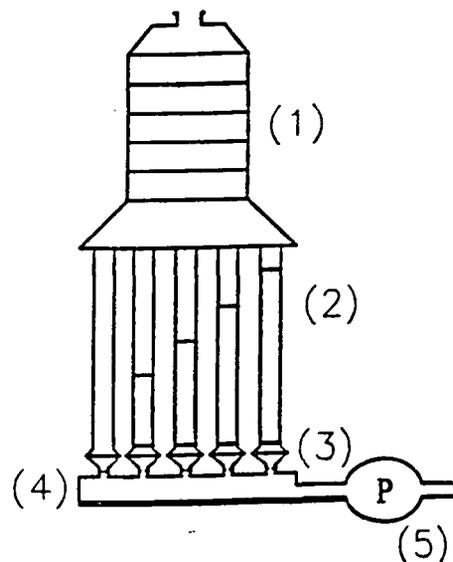
Nous nous proposons donc de présenter dans ce papier les différentes techniques que nous utilisons de façon à mieux caractériser l'aérosol dérivé du Radon. Tout d'abord, nous détaillons l'instrumentation utilisée pour restituer la distribution en dimension de la composante attachée. Ensuite nous rappelons brièvement la technique de mesure intégrée dans le temps du Po-218 ultrafin développée au laboratoire puis nous présentons le système que nous mettons actuellement au point pour déterminer la fraction libre f_i de chaque produit de filiation à vie courte du Radon-222.

II- Distribution en taille de la fraction attachée

II-1- Présentation du dispositif de collection

Afin de collecter les particules constituant la composante attachée, nous utilisons le SDI-2001 (Spectromètre Diffusionnel et Inertiel) (figure 1), mis au point à l'Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, qui est constitué d'un impacteur en cascade Andersen suivi d'un ensemble de cinq lits granulaires en aval desquels une pompe permet de prélever l'aérosol à analyser. La batterie de diffusion ainsi conçue est composée de cinq canaux disposés en parallèle dont un est vide afin de fournir la concentration en amont des quatre autres. En aval de chaque canal, un filtre est placé afin de récolter les particules non piégées par les billes. En ce qui concerne l'impacteur, nous utilisons seulement cinq étages pour lesquels nous avons choisi les diamètres de coupure les mieux adaptés à couvrir l'ensemble du spectre dimensionnel. Cependant, nous n'effectuons pas le comptage du premier étage. Théoriquement il collecte les particules les plus grosses en suspension dans l'air, mais vraisemblablement, une partie de la fraction nanométrique des dérivés du radon s'y piège également par diffusion ; l'activité qui y serait mesurée deviendrait alors difficilement exploitable. Les diamètres de coupure expérimentaux obtenus par Diouri [DI87] pour l'ensemble du système sont consignés dans le tableau ci dessous.

Etage	Diamètre de coupure (nm)
F5 (canal ouvert)	-
F4	12
F3	30
F2	70
F1	170
D4	315
D3	620
D2	1750
D1	4500



- (1) Impacteur en cascade ANDERSEN MK II
- (2) Lits granulaires
- (3) Filtres
- (4) Orifice critique
- (5) Pompe

Figure 1 : représentation schématique du SDI-2001

II-2- Mesure des concentrations

Une fois le prélèvement réalisé, les concentrations sont obtenues en utilisant un appareillage de comptage des émissions alpha qui a été spécialement conçu pour être associé au SDI-2001. Il comprend neuf unités de comptages composées de quatre détecteurs alpha à semi-conducteur au silicium de 50 mm de diamètre destiné au comptage des quatre disques d'impacteur et de cinq détecteurs plus petits pour l'étude des filtres. Pour calculer les concentrations en Po-218, en Pb214 et en Bi-214, nous avons mis en œuvre la méthode Time Evolved Least Squares (TELS) proposée par Hartley en 1989 [HA89]. Bien qu'étant la méthode de comptage global la plus récente, elle n'a cependant encore jamais été mise en application. Le principe innovant de la méthode est qu'elle prend en compte les temps d'arrivée des particules alpha contrairement aux anciennes méthodes qui se limitent à compter le nombre de particules alpha reçues durant un intervalle de temps donné.

Cette méthode consiste donc à approcher le comptage expérimental total donné par :

$$(1) \quad C_{\alpha} = \sum_{i=1}^n H(t - t_i) \quad \text{avec } H(t - t_i) = 1 \text{ si } t > t_i \text{ et } 0 \text{ si } t < t_i$$

où les t_i sont les temps d'arrivée des particules alpha, par la fonction de comptage théorique :

$$(2) \quad F(t) = \alpha_{Po} (1 - e^{-\lambda_{Po} t}) + \alpha_{Pb} (1 - e^{-\lambda_{Pb} t}) + \alpha_{Bi} (1 - e^{-\lambda_{Bi} t})$$

$\alpha_{Po}, \alpha_{Pb}, \alpha_{Bi}$ qui sont les nombres de particules alpha provenant respectivement du Po-218, du Pb-214 et du Bi-214 et qui sont les inconnues à déterminer sont choisis de façon à minimiser l'intégrale suivante :

$$(3) \quad I = \int_0^t [C_\alpha(t) - F(t)]^2 dt$$

Dans un premier temps, afin de tester la méthode, nous avons mené un calcul d'incertitudes ; celui-ci nous a montré que la méthode TELS introduisait systématiquement un biais. Afin de réduire ce biais et d'optimiser la méthode dans le cas de faibles comptages (ce qui est le cas lors de nos expériences), de récentes améliorations ont été apportées. Premièrement nous avons adopté une nouvelle fonction de comptage théorique. Celle-ci ne présuppose pas le passage de la courbe par l'origine et permet donc une construction plus fine de celle-ci dès les premières secondes de comptage. Ensuite, l'intégrale (3) a été remplacée par une sommation discrète consistante avec la mesure discrète puisque nous mesurons des temps d'arrivée. Notons que si nous avons un nombre important de points, la somme converge bien entendu vers l'intégrale mais dans le cas de faibles comptages la somme est beaucoup mieux adaptée. Enfin, nous utilisons un nouvel algorithme de minimisation. Le calcul d'incertitude appliqué à la méthode avec ces modifications nous a montré de biens meilleurs résultats.

Comme nous sommes à présent capables de déterminer les concentrations de chaque produit de filiation à vie courte du Radon-222, intéressons-nous maintenant à la restitution des spectres dimensionnels.

II-3 Distribution en taille

A partir des données recueillies, après chaque expérience, exprimées sous forme d'activités volumiques déposées sur les quatre derniers étages de l'impacteur et les cinq filtres placés en aval des canaux de la batterie de diffusion, il s'agit de restituer la distribution de l'aérosol radioactif.

Si $K(i, d_{pj})$ est la matrice noyau représentant la fonction réponse de l'appareil et $f(d_{pj})$ la fraction élémentaire de particules de diamètre compris entre d_{pj} et $d_{pj} + dd_{pj}$, la fraction de particules recueillies sur l'étage i ou en aval du canal i s'écrit après discrétisation :

$$(4) \quad F(i) = \sum_{j=1}^M K(i, d_{pj}) f(d_{pj}) + \epsilon_i$$

L'inconnue à déterminer se trouvant au second membre de l'équation, cela nécessite une méthode inverse. A cet effet, nous avons à notre disposition deux algorithmes d'inversion : Twomey et EVE. Twomey [TW75] est une méthode itérative non-linéaire. La méthode Extreme Value Estimation (EVE), mise au point par Paatero [PA90], consiste quant à elle à rechercher une solution centrale à partir d'une association de plusieurs log-normales. L'intérêt de cet algorithme est qu'en plus d'une solution centrale, il nous donne une limite inférieure et supérieure qui permettent de valider un certain domaine du spectre.

III- Etude de la composante ultrafine

III-1- Mesures intégrées dans le temps du Po-218 ultrafin

Afin de permettre une mesure intégrée dans le temps de la concentration en Po-218 ultrafin, une technique consistant en un canal de diffusion annulaire muni d'un détecteur solide de traces alpha a été développée au laboratoire. Le canal (figure 3) est constitué de deux cylindres coaxiaux et a fait l'objet d'une étude théorique préalable [KE96a]. Autour du cylindre interne, un film détecteur de traces alpha (le LR115) a été enroulé ainsi qu'un écran ralentisseur constitué de Mylar nécessaire à la détection des alpha issus du Po-218 qui constitue en fait près de 90% de la fraction libre.

Après exposition, le film est développé puis lu à l'aide d'une technique à étincelage qui comptabilise les traces laissées par le passage de la particule alpha dans le LR115.

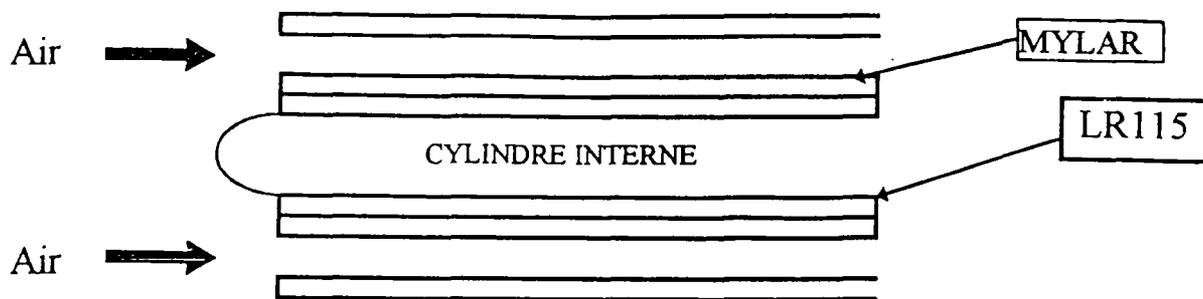


Figure 3 : coupe transversale du canal annulaire

Cet appareil a été étalonné en laboratoire [KE96b] et la courbe de la figure 4 résume les résultats obtenus.

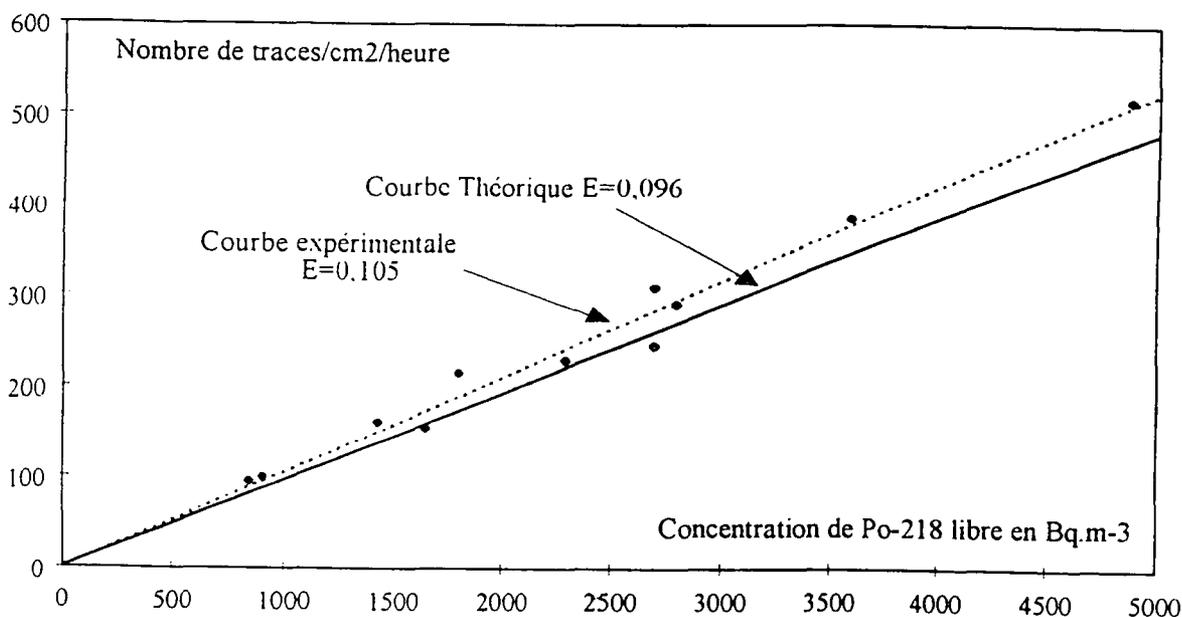


Figure 4 : courbe d'étalonnage du canal annulaire (E exprimé en traces/cm²/heure)

Nous constatons que le nombre de traces expérimental par unité de surface et par heure reste proportionnel à la concentration en Po-218 ultrafin conformément à ce que nous avons prévu en théorie, le coefficient d'étalonnage expérimental n'excédant pas de plus de 10% l'estimation théorique. Ces résultats montrent que l'appareil est donc tout à fait adapté à une mesure intégrée dans le temps du Po-218 ultrafin.

En outre, il s'avère que ce dispositif permet également, par le biais de techniques d'inversion, de restituer la distribution en dimension du Po-218 sous forme libre. Ceci est réalisable en découpant le film LR115 en 12 bandes d'égales largeur et en construisant la matrice noyau correspondante. Les résultats obtenus sur un certain nombre d'expériences [KE96b] donnent un diamètre médian en activité de 0,7 nm pour Twomey et 0.62 nm pour EVE, ces résultats étant comparables avec ceux trouvés dans la littérature ([RE93], [RA93]).

Ce dispositif étant parfaitement adapté à la collection des particules ultrafines, nous avons pensé à l'utiliser pour la mesure de la fraction libre et de ses variations au cours du temps.

III-2- Mesure en continu de la fraction libre

Le dispositif que nous mettons actuellement au point, afin de permettre des mesures en continu de la fraction libre f , de chaque produit de filiation à vie courte du Radon, est schématisé sur la figure 5. Il consiste en la mise en parallèle du canal de diffusion annulaire décrit précédemment et d'un filtre ouvert. Nous plaçons à l'extrémité du canal un filtre en regard duquel se trouve un semi-conducteur au silicium PIPS (Canberra, CAM900); seules les particules de la composantes attachée atteignent le filtre et s'y déposent. Les particules alpha émises sont alors détectées par le PIPS qui est relié à un système de spectroscopie alpha. Le filtre ouvert,

quant à lui, collecte toutes les particules du spectre. En comparant l'activité de chaque descendant sur les deux filtres, nous obtenons la fraction libre donnée par :

$$(5) \quad f_i = \frac{A_{i,l}}{A_i}$$

où $A_{i,l}$ est l'activité du descendant i libre et A_i est l'activité totale du descendant i . Ce dispositif est actuellement en phase finale de réalisation.

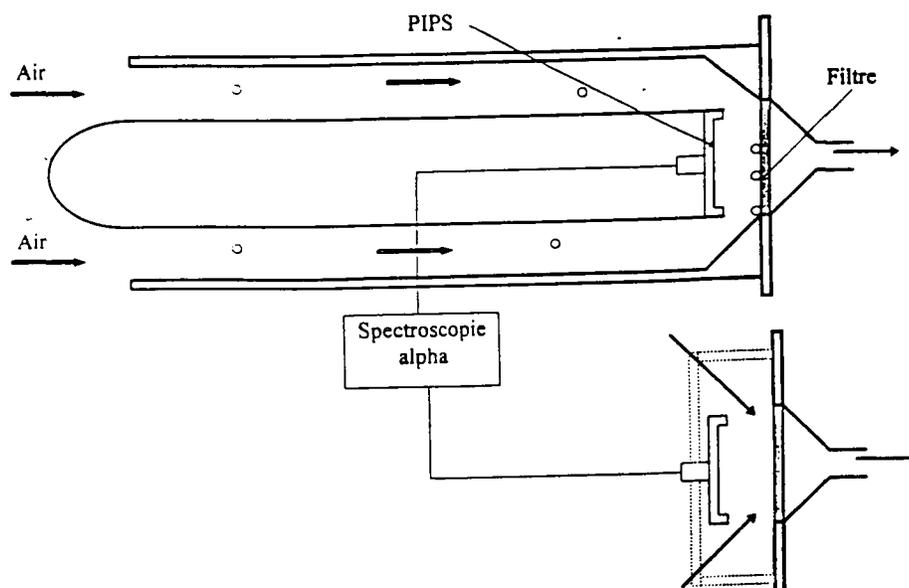


Figure 5 : représentation schématique du dispositif

IV- Conclusion

L'utilisation simultanée des trois techniques présentées précédemment doit nous permettre de caractériser de façon satisfaisante la distribution dimensionnelle de l'aérosol dérivé du Radon grâce à la détermination des concentrations par la méthode TELS. En outre, le calcul d'incertitude que nous avons mené nous permettra une meilleure utilisation des algorithmes d'inversion puisque nous savons à présent quantifier l'erreur sur la mesure. En ce qui concerne le composante ultrafine, nous disposons d'une technique, le canal de diffusion annulaire que nous utilisons de deux manières : (1) avec un détecteur solide de traces, il nous permet de restituer la distribution en dimension du Po-218 ultrafin sur de longues périodes d'exposition, (2) avec un détecteur à semi-conducteur nous pouvons procéder à des mesures en continu et ainsi suivre les variations temporelles des dérivés fin du Radon.

Bibliographie

- [DI87] DIOURI M. (1987). Thèse de l'Université de Paris XII.
- [HA89] HARTLEY B.M. (1989). Radiological Protection, vol.9, p165-177.
- [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.
- [KE96a] KEROUANTON D., TYMEN G., BOULAUD D. (1996), J. of Aerosol Science, vol.27, p345
- [KE96b] KEROUANTON D. (1996). Thèse de l'Université de Bretagne Occidentale.
- [PA90] PAATERO P. (1990). Université d'Helsinki, Report Series in Physics, HU-P-250.
- [RA93] RAMAMURTHI M. , STRYDOM R., HOPKE P.K., HOLUB R.F. (1993), J. of Aerosol Science, vol.20. p393-397.
- [RE93] REINEKING et al. (1993). First international workshop on indoor radon remedial action, Rimini, Italy, June 27- July 3
- [TW75] TWOMEY S. (1975). J. Comput. Phys., vol.18, p188-200.

Mobilité des particules ultrafines radioactives

Nouvelle technique de mesure

B. Mesbah, B. Fitzgerald and P. K. Hopke

Department of Chemistry, Clarkson University, Box 5810
Potsdam, NY 13699-5810

M. Pourprix

Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, DPEA, CE Saclay,
91191 Gif sur Yvette

Résumé

Les ions $^{218}\text{Po}^+$ se forment suite à la décroissance radioactive du Radon. Inhalées, ces particules chargées présentent un risque potentiel pour la santé. Ces ions interagissent avec l'atmosphère ambiante, forment des "clusters", et leur taille évolue en conséquence. Dans le domaine de dimension concerné [0.5 - 3 nm], le calcul dosimétrique est très sensible aux variations de la taille des particules inhalées. Il est donc primordial de mesurer de la façon la plus précise possible la taille de ces "clusters" radioactifs si l'on souhaite faire un calcul réaliste de la distribution de la dose dont elles sont responsables.

Les méthodes de mesures optiques ne sont pas utilisables dans ce domaine de dimension. Les méthodes basées sur la diffusion présentent un problème lié à la dépendance entre le coefficient de diffusion et l'état de charge électrique des particules. Nous proposons une technique qui permet de remonter à la taille des particules radioactives ultrafines à partir de la mesure de leur mobilité. Cette technique couple une méthode électrique de sélection et un système de détection de particules radioactives (Alpha). Nous utilisons un Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire (SMEC) du premier ordre pour classer les particules ultrafines suivant leur mobilité électrique. La géométrie du SMEC est bien adaptée pour ce type de mesure. Elle permet de minimiser les pertes liées à la diffusion ainsi que la déformation de la fonction de transfert. A la sortie du SMEC, nous disposons un filtre pour collecter les particules non précipitées et un détecteur approprié pour faire un comptage radioactif sélectif des seules particules concernées.

Nous appliquons cette technique pour étudier la formation des "clusters" du $^{218}\text{Po}^+$ dans des atmosphères dont nous contrôlons la composition. Nous avons ainsi mesuré des "clusters" dans le domaine de dimension [0.7 - 2.0 nm] qui se forment dans des mélanges de radon avec différents gaz et différents composés organiques volatiles.

Abstract

The ^{218}Po clusters formed during radon decay in well controlled composition atmospheres are too small to be detected by a classical aerosol detection device such as a condensation nuclei counter. In this work, we have modified the first order version of the SMEC (Spectrometre de Mobilité Electriques Circulaire) and made it able to detect such particles/clusters. The geometry of this radial flow electric mobility analyzer is well adapted for ultrafine clusters measurement because of the short particle residence time and hence lower effects of diffusion. The major modification of this device was the detection system. At the exit of the SMEC, a filter and an alpha particle detector holder were mounted. The airflow containing the particles is draw through the system when the particles exiting the SMEC are trapped on the filter. An appropriate radioactivity detector mounted directly opposite the filter can separate and count The ^{218}Po particles/clusters. We have used this electrostatic size discrimination based technique to investigate the formation of ^{218}Po clusters in well controlled atmospheres. We measured clusters in the size range [0.7 - 2.0 nm] formed in various gas like N_2 and clean dry air, and also some gas mixtures containing short chain alcohols.

INTRODUCTION

Dans une atmosphère riche en Radon, l'inhalation des descendants radioactifs de ce gaz présente des risques sur la santé. L'importance de ce risque dépend de la quantité de ces descendants qui se déposent dans les différentes parties du système respiratoire. En effet, c'est cette quantité qui permet d'évaluer la dose radioactive d'exposition pour la partie considérée et donc les dommages qui y sont occasionnés.

Par ailleurs, la mécanique des particules en suspension nous apprend que le dépôt de celles-ci sur une surface se fait par plusieurs mécanismes bien connus. Ces derniers sont tous essentiellement gouvernés par la taille de la particule ainsi que le montre la représentation de la dose par unité d'exposition liée au ^{218}Po (figure 1) issue du modèle du système respiratoire proposé par la Commission Internationale de la Protection Radiologique (ICRP66, 1994).

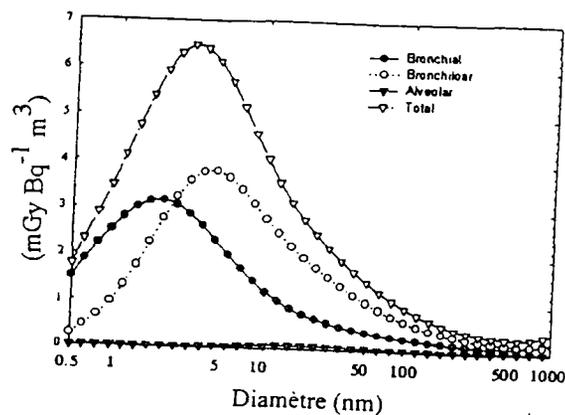


Figure 1 : Dose physique dans les différentes régions du système respiratoire humain, pour un taux de respiration de $0.74 \text{ m}^3\text{h}^{-1}$ selon le modèle ICRP66

Cette modélisation montre aussi qu'une variation très importante de cette distribution en dose se situe dans le domaine [0.5 - 5 nm]. Il en ressort, en ce qui nous concerne, qu'un calcul réaliste de cette dose passe forcément par une mesure précise de la dimension de ces particules (^{218}Po) dans ce domaine dit nanométrique. On observe, dans la littérature, une grande disparité concernant cette dimension. Cette disparité est due à la différence dans les conditions de la mesure et à la technique utilisée. En effet la plupart des moyens de métrologie des aérosols se trouve à la limite de leur application sur une partie ou la totalité du domaine [0.5 - 5 nm].

Formation des clusters

L'ion $^{218}\text{Po}^+$ est obtenu à la suite de décroissances radioactives et de divers mécanismes d'ionisation et de neutralisation. La durée de vie de cet ion est assez importante pour permettre l'interaction avec les composés chimiques qui l'entoure et la formation de "clusters". C'est la dynamique de formation de ces clusters qui va déterminer leur taille et, par conséquent leur comportement mécanique.

L'énergie libre de formation de clusters de vapeur ou de gaz autour d'un ion est décrite par l'équation de Thompson (Castelman 1982, Raes 1985) :

$$\Delta G = -nkT \ln S + 4\pi r^2 \sigma + \frac{q^2}{2} \left(1 - \frac{1}{\epsilon}\right) \left(\frac{1}{r} - \frac{1}{r_0}\right) \quad (1)$$

Où ΔG est l'énergie de Gibbs de formation du cluster, r est le rayon du cluster, r_0 est le rayon de l'ion initial (0.23 nm pour le Po), S est le taux de saturation (p/p_0), p est la pression de vapeur du milieu gaz/vapeur, p_0 est la pression de vapeur de saturation, T est la température en ° Kelvin, n est le nombre de molécules gaz/vapeur formant le cluster, k est la constante de Boltzmann, σ est la tension de surface, q est la charge de l'ion et ϵ est la constante diélectrique du milieu. L'équation de Thompson est une bonne approche dans la formation de clusters. Elle est pourtant souvent critiquée, mais aucune autre expression n'est proposée par ailleurs. C'est à cause du manque de résultats expérimentaux fiables si d'autres théories ne sont pas disponibles. D'où l'intérêt de faire de nouvelles expériences sur la formation de clusters avec des moyens de contrôle des ions comme des composés l'atmosphère où ils interagissent ainsi qu'une métrologie qui permet de suivre avec précision leur évolution.

TECHNIQUE DE MESURE

Principe du SMEC : Fonction de transfert

Le Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire (SMEC) est un analyseur de mobilité électrique avec une géométrie plane circulaire et un écoulement radial (Pourprix, et al., 1990). Celui que nous utilisons dans cette étude est du premier ordre. Il s'agit d'un agencement de deux disques parallèles et concentriques. Sur le disque supérieur, une fente annulaire permet l'injection de l'aérosol à analyser. Ce dernier est véhiculé radialement, par de l'air filtré, vers une buse d'extraction. Un champ électrique est établi entre les deux disques. Lors de son passage dans le SMEC, une particule d'aérosol est soit précipitée vers la plaque inférieure soit évacuée par la buse de sortie. Ceci selon la valeur de sa mobilité électrique, c'est à dire à la fois selon sa charge électrique et sa dimension. Il en découle que si la charge électrique de la particule est connue le SMEC est un moyen de déterminer la dimension de cette dernière.

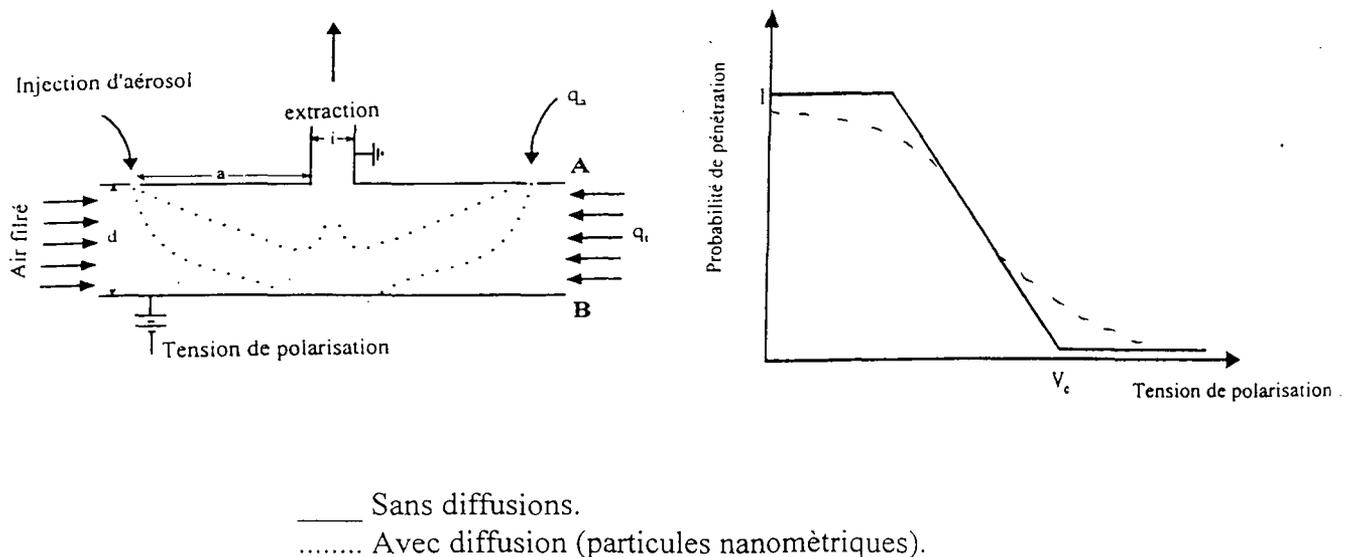


Figure 2 : Le SMEC, principe et fonction de transfert.

Une particule de mobilité électrique Z , introduite dans le SMEC, a une probabilité P d'être évacuée par la buse de sortie, donnée par (Mesbah, 1994) :

$$P = \frac{1}{q_a} \text{Max}[0, \min(q_a, (q_t + 2\pi Z \Delta\Phi^*))] \quad (2)$$

avec $\Delta\Phi^* = \frac{V}{2d}(a^2 - i^2)$ et $q_t = q_a + q_f$

Cette probabilité peut être déterminée expérimentalement en faisant varier la tension de polarisation du SMEC et en mesurant le flux de particules à sa sortie et ainsi la probabilité de pénétration. Cette réponse du SMEC vis à vis d'un aérosol permet de déterminer la mobilité électrique de ce dernier à partir des expressions suivantes :

$$Z = \frac{B}{V_c} \quad \text{avec} \quad B = \frac{q_t \cdot d}{\pi(a^2 - i^2)} \quad (3)$$

EXPERIMENTATION

Le SMEC modifié : comptage Alpha

Le SMEC est bien adapté pour la mesure des particules nanométriques car son fonctionnement est moins sensible aux effets de la diffusion, responsable des pertes de particules et de déformation de la fonction de transfert. Il est aussi facile à modifier pour se prêter à la mesure de particules radioactives. Ainsi au niveau de sa buse d'extraction, on dispose un montage comportant un porte filtre et détecteur de particules Alpha. Les particules qui sortent par le SMEC sont piégées par le filtre (Millipore AA 0.8 mm) et comptées par le détecteur à barrière de Silicium (EG & C ORTEC DIAD) placé en face. Le détecteur possède un amplificateur incorporé. Relié à un analyseur multicanal (AMC), il permet de compter spécifiquement les "clusters" ^{218}Po en identifiant l'énergie des particules Alpha qu'ils émettent.

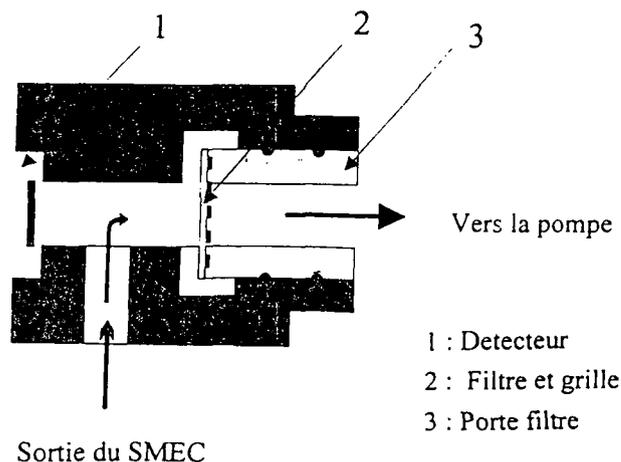


Figure 3 : Modification du SMEC, adaptation du compteur de particules radioactives

La génération de clusters

Un débit moyen de Radon de l'ordre de $3.0 \cdot 10^2 \text{ Bq min}^{-1}$ est obtenu par le passage d'un flux constant de Nitrogène ultrapure (99.998%) à travers une source appropriée (PYLON - 1025). Le N_2 chargé de Rn est filtré pour éliminer les descendants préexistants. Il est alors injecté dans une chambre de mélange où l'on ajoute l'atmosphère que l'on désire étudier. Dans le cas d'une atmosphère chargée de Composés Organiques Volatiles (COV), leur concentration est contrôlée grâce à une cellule de diffusion. Le mélange obtenu est introduit dans un volume de 200 l où est disposé le SMEC. Le débit total dans ce dernier est de 20 l min^{-1} et l'échantillonnage se fait à 2 l min^{-1} .

Chaque expérience est précédée par un temps nécessaire pour obtenir un état stationnaire. Un programme informatique contrôle à la fois la tension du SMEC et l'analyse des spectres de l'AMC correspondant. Cette automatisation du système permet des temps d'expérience importants, nécessaires pour avoir des comptages significatifs.

RESULTATS

La figure 4 illustre le type de représentations que nous obtenons à partir des données de nos expériences. Le comptage normalisé est le rapport du comptage considéré et du comptage maximum obtenu au cours de l'expérience. Une interpolation linéaire des points correspondants à la décroissance de cette fonction de transfert expérimentale permet de repérer la tension de coupure V_c .

Le premier exemple correspond au cas d'un mélange Rn - N_2 pur. On peut voir la décroissance nette de la fonction de transfert. La tension de coupure est estimée à 0.5 V. A partir de l'expression théorique de cette fonction et de la relation diamètre - mobilité électrique nous remontons à un diamètre de 0.7 nm. Dans le deuxième exemple (Butanol - Rn), nous distinguons deux rampes décroissantes qui présagent l'existence d'au moins deux modes. Le premier mode est le même que celui observé dans l'exemple précédent. le second repéré par une tension de coupure plus grande correspond aux « clusters » formés par l'agglomération des vapeurs de butanol sur l'ion $^{218}\text{Po}^+$. Son diamètre est de ce fait plus important, il est évalué à 2.2 nm.

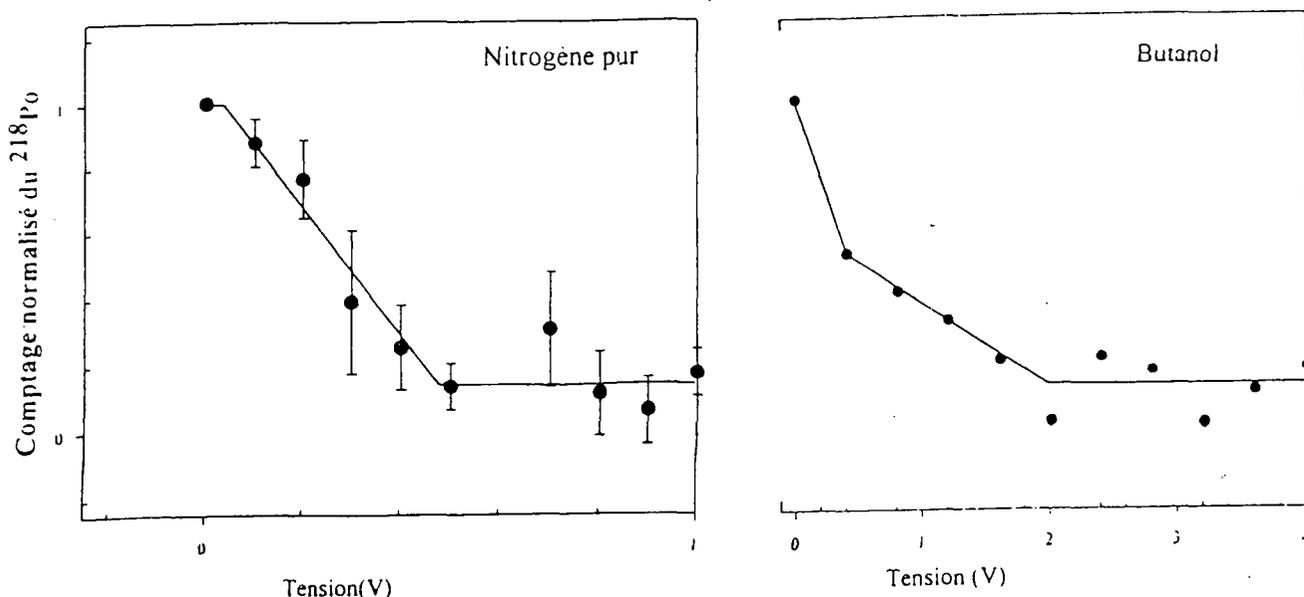


Figure 4 : Exemples de fonction de transfert expérimentale

CONCLUSIONS

La Technique de mesure que nous proposons, couple un sélecteur électrostatique (SMEC) et un compteur de particules radioactives. Il apparaît, à travers les expériences que nous avons effectuées, que cette technique est un bon outil pour étudier l'évolution des dimensions des particules de ^{218}Po dans diverses atmosphères ou la formation de clusters en général. Nous pouvons aussi envisager l'utilisation de cette technique pour toute métrologie des particules nanométriques radioactives.

REFERENCES

International Commission on Radiological Protection (ICRP) (1994), Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection, ICRP Publication 66, Annals of the ICRP, 24(1/3), 482 pp.

Castleman, A. W. Jr. (1982). Experimental studies of ion clustering relationship to aerosol formation process and some atmospheric applications. *J. Aerosol Sci.* 13:73.

Raes, F. (1985). Description of the properties of unattached ^{218}Po and ^{212}Pb particles by means of classical theory of cluster formation. *Health Phys.* 49:1177.

Pourprix, M., Daval, J. And Berne, P (1990). Device permitting the controlled deposit of fine particles on surfaces. AAAR'90 Meeting. Philadelphia, PA.

Mesbah, B. (1994). Le Spectromètre de Mobilité Électrique Circulaire. Thèse de Doctorat de l'Université Paris XII.

EFFICACITE D'ECHANTILLONNAGE DES APPAREILS DE PRELEVEMENT DE LA FRACTION ALVEOLAIRE D'UN AEROSOL

P. Görner (1), R. Wrobel (1), V. Micka (2), J. Denis (3), J.F. Fabriès (1)

(1) INRS, Laboratoire de Métrologie de la Pollution par les Aérosols, BP 27, av. de Bourgogne, 54501 Vandœuvre-les-Nancy, France

(2) Institut d'Hygiène du Travail d'Ostrava, Laboratoire National de Référence pour le Risque dû à l'Empoussièrément, Partyzanské Nam. 7, 72892 Ostrava, République Tchèque

(3) Université Henri Poincaré, Faculté des Sciences de Nancy I, bd; des Aiguillettes, 54500 Vandœuvre-les-Nancy, France.

ABSTRACT :

This study was focused on 15 aerosol samplers used for sampling the conventional respirable fraction. Their sampling efficiency was measured in a low velocity wind tunnel, using an aerodynamic particle sizer APS3300. An adapter was designed, which was placed between the sampler outlet and the aerodynamic particle sizer, in order to work with any flow rate value for the sampler. The flow rate range was 0.8 - 50 l.min⁻¹. The errors in efficiency data were estimated. These experimental informations were then used to optimise the parameters of a model able to represent the data without any distortion. The performances of the samplers were determined in terms of bias and accuracy maps, as proposed by a new CEN draft standard. Bias is expressed relatively to the conventional respirable fraction C*, corresponding to the new CEN and ISO standardised curve. Accuracy is calculated as the uncertainty X, so that the probability that the interval around the conventional respirable concentration C*(1±X) includes the measured concentration value C, is (1-α). Accuracy includes both the bias and the random errors in the experimental values of sampling efficiency, as well as those in sampling parameters : flow rate, variability in samplers of the same type. The uncertainty due to the analytical technique used after sampling should be added. The maps obtained could be used in practice for choosing the most adequate aerosol sampler, when the particle-size distribution is at least roughly known.

RESUME :

15 échantillonneurs d'aérosols destinés à mesurer la fraction conventionnelle alvéolaire ont été étudiés. Leur efficacité d'échantillonnage a été mesurée dans un tunnel aéraulique à basses vitesses, à l'aide d'un appareil APS 3300 (Aerodynamic Particle Sizer). Un adaptateur a été conçu, positionné entre la sortie de l'échantillonneur et l'APS, afin de pouvoir travailler à des débits variés. Le domaine de débit couvert est 0.8 - 50 l.min⁻¹. Les erreurs expérimentales ont été estimées. Ces informations ont été ensuite utilisées pour optimiser les paramètres d'un modèle capable de représenter les données sans distorsion. Les performances des échantillonneurs ont été déterminées en termes de cartes de biais et de précision., comme cela est proposé dans le nouveau projet de norme CEN. Le biais est exprimé relativement à la concentration alvéolaire conventionnelle C*, correspondant à la nouvelle courbe CEN et ISO. La précision est calculée comme étant l'incertitude X, telle que la probabilité pour que l'intervalle entourant la concentration alvéolaire conventionnelle C*(1±X) inclue la valeur mesurée de la concentration C, soit (1-α). La précision inclut à la fois le biais et les erreurs aléatoires sur les valeurs expérimentales de l'efficacité d'échantillonnage, ainsi que celles affectant les paramètres du prélèvement : débit, variabilité des appareils du même type. L'incertitude liée à la technique d'analyse mise en oeuvre après le prélèvement doit être ajoutée. Les cartes obtenues pourraient être utilisées en pratique pour choisir l'échantillonneur le mieux adapté, si l'on connaît au moins approximativement la granulométrie de l'aérosol.

INTRODUCTION

L'estimation de la concentration pondérale de la fraction alvéolaire des aérosols industriels correspond à une longue tradition. Historiquement on a introduit le concept de "poussières respirables", pour désigner les poussières susceptibles d'atteindre le poumon profond, en vue de mesurer les risques de pneumoconiose liés à l'inhalation de particules siliceuses. Des appareils de prélèvement individuels ont été conçus pour réaliser un échantillonnage sélectif des particules présentes au niveau des voies respiratoires supérieures d'un opérateur. D'autres appareils sont destinés à être utilisés à poste fixe. La sélection granulométrique des particules y est telle que la probabilité pour qu'une particule de diamètre aérodynamique donné soit échantillonnée et collectée sur le support terminal de l'appareil, qu'on désigne couramment sous le nom d'efficacité d'échantillonnage, respecte le mieux possible une courbe définie de manière purement conventionnelle. Plusieurs courbes différentes ont été proposées au cours de ces quarante dernières années, et ce n'est que tout récemment que l'ensemble des conventions a été harmonisé dans le cadre de la normalisation européenne [1,2] et internationale [3]. Dans le cas de la convention alvéolaire la courbe représente une courbe moyenne de pénétration des particules ambiantes dans les voies aériennes non ciliées, correspondant à la région des échanges respiratoires.

Il est apparu nécessaire d'étudier comment se positionnaient les différents appareils disponibles par rapport à la nouvelle convention alvéolaire. D'autre part, alors qu'une nouvelle approche conceptuelle de l'évaluation des performances des échantillonneurs est actuellement en cours d'élaboration [4], il était devenu souhaitable d'appliquer les nouveaux critères proposés à un ensemble complet d'appareils a priori équivalents.

15 appareils ont été ainsi étudiés, d'origines diverses et de types assez différents: cyclones, éluutriateur horizontal, impacteurs (Tableau 1). Leur efficacité d'échantillonnage a été mesurée au laboratoire, puis représentée par un modèle adapté. Ensuite des cartes d'écart et de précision ont été calculées, comme cela est explicité dans un chapitre suivant.

MESURAGE DE L'EFFICACITE D'ECHANTILLONNAGE : MATERIEL ET METHODE

Sur le plan expérimental les méthodes de détermination de l'efficacité d'échantillonnage divergent en fonction de la fraction d'aérosol étudiée. Pour les fractions alvéolaire et thoracique, il est possible de mesurer l'efficacité d'échantillonnage en air calme ou avec de faibles vitesses (< 30 à 50 cm/s). Dans le cas de la fraction inhalable, où de plus grosses particules (jusqu'à $100 \mu\text{m}$) sont concernées, les conditions aérauliques extérieures jouent un rôle important dans le processus d'échantillonnage. La vitesse du vent et la présence d'obstacles au voisinage de l'échantillonneur doivent être prises en compte, en particulier lors des prélèvements individuels.

Nous avons choisi de positionner les appareils étudiés dans un tunnel aéraulique à basses vitesses de notre laboratoire [5], et de travailler avec un aérosol expérimental de charbon. L'efficacité de pénétration des particules ambiantes à travers le sélecteur de chaque appareil a été mesurée à l'aide de la méthode APS, déjà développée auparavant [6]. Cette méthode consiste à mesurer de manière séquentielle la concentration en particules dont le diamètre aérodynamique est compris à l'intérieur d'un certain intervalle à la sortie du sélecteur, puis dans l'aérosol ambiant à l'aide d'un prélèvement de référence. Le système de mesurage utilisé est un analyseur APS (Aerodynamic Particle Sizer 3300, TSI Inc., St Paul, MN,

USA). L'efficacité est simplement dans cet intervalle de diamètre le rapport des deux concentrations. Les montages utilisés sont décrits dans la Figure 1. Ils diffèrent selon que le débit d'échantillonnage Q_1 est inférieur ou supérieur au débit nominal de fonctionnement de l'analyseur APS, soit 5 l.min^{-1} . Le débit des appareils pouvait varier entre 0.8 et 50 l.min^{-1} . Dans le cas où $Q_1 > 5 \text{ l.min}^{-1}$, l'aérosol est fractionné à l'aide d'un système de prélèvement isocinétique. Dans les deux cas, une dilution de l'aérosol est pratiquée en vue de limiter les erreurs de coïncidence. Le système de dilution a été placé entre l'échantillonneur testé et l'APS. La dilution et l'apport d'air de compensation étaient assurés par de l'air filtré sur cartouche de haute efficacité.

La méthode APS a été étendue aux échantillonneurs de la fraction thoracique d'un aérosol. C'est ainsi que des résultats relatifs à l'échantillonneur CATHIA ont été obtenus par ailleurs [7]. Cependant cette méthode présente deux limitations, notamment lorsque la taille des particules dépasse environ $10 \mu\text{m}$ en diamètre aérodynamique. La première limitation est due à la gamme de travail de la version 3300 que nous possédons, la limite supérieure de taille étant pratiquement $D_{ae} = 18 \mu\text{m}$. Or le pied de la courbe conventionnelle thoracique est situé à environ $30\text{-}35 \mu\text{m}$. La deuxième limitation provient du non respect de la loi de Stokes au-delà de $10 \mu\text{m}$ environ au niveau de la buse d'accélération de l'APS. Cette limitation a fait l'objet de nombreuses publications ces dernières années [8-18]. Les particules liquides, non utilisées ici, posent également problème, en raison de leur déformation [17, 19, 20].

En raison du non respect de la loi de Stokes pour l'écoulement au niveau de la buse d'accélération de l'analyseur APS, on a apporté des corrections de densité et de forme des particules aux mesures de leur diamètre aérodynamique. Le facteur dynamique de forme K_{rv} des particules a été déterminé en comparant la distribution granulométrique de chaque aérosol mesurée au compteur Coulter (en échelle de diamètre équivalent volume D_v) à celle mesurée à l'aide d'un impacteur (Marple Personal Impactor, 8 étages, Andersen Inc., Atlanta, USA) (en échelle de diamètre aérodynamique D_{ae}). Cependant ces corrections n'ont pas été appliquées au cas des aérosols de charbon, en raison d'une mauvaise stabilité des valeurs obtenues de K_{rv} en fonction du diamètre des particules. Dans ce cas on a pu vérifier indirectement la justesse de la méthode en reproduisant les résultats d'efficacité d'échantillonnage pour un appareil bien étudié dans la littérature, en l'occurrence le cyclone 10-mm nylon à 1.7 l.min^{-1} [21-25]. La méthode APS nécessite une bonne stabilité de la concentration et de la distribution granulométrique des particules au point de prélèvement, où sont situés successivement l'échantillonneur étudié et l'échantillonneur de référence. Cette stabilité est contrôlée dans notre installation à l'aide d'un photomètre Leitz TM-Digital (Leitz, Wetzlar, RFA).

PRINCIPE DE CALCUL DES CARTES D'ECARTS ET DE PRECISION

Le principe d'évaluation des performances à l'aide des cartes d'écarts préconisées dans le projet de norme européenne [4] repose sur la simulation du comportement d'un échantillonneur placé dans un aérosol donné, traduit en terme de concentration mesurée C , et sur la comparaison de celle-ci à la concentration qui serait mesurée par un appareil "idéal" C^* , dont l'efficacité d'échantillonnage respecterait exactement la convention. Ces deux concentrations peuvent être calculées de la manière suivante :

$$C = C_0 \int_0^{\infty} E_E(D_{ae}, Q) F_M(D_{ae}) d \ln D_{ae} \quad (1)$$

$$C^* = C_0 \int_0^{\infty} E^*(D_{ae}) F_M(D_{ae}) d \ln D_{ae} \quad (2)$$

où C_0 est la concentration totale de l'aérosol
 Q est le débit de l'échantillonneur
 F_M désigne la fonction de distribution de la masse des particules de l'aérosol
 E_E est l'efficacité d'échantillonnage de l'appareil
 E^* est la fonction définissant la convention (inhalable, alvéolaire, thoracique)

Le biais Δ est défini simplement par l'écart relatif sur la concentration :

$$\Delta = (C - C^*) / C^* \quad (3)$$

Les cartes de biais sont obtenues en calculant Δ pour un ensemble de distributions log-normales de la masse des particules de l'aérosol, en faisant varier le diamètre médian en masse et l'écart-type géométrique à l'intérieur d'une fourchette qui est précisée dans le projet.

Les cartes de précision ("accuracy maps"), quant à elles, représentent dans le même système d'axes et pour les mêmes distributions granulométriques d'aérosols la fraction X , telle que l'intervalle de confiance centré sur la valeur "vraie" C^* et défini par $C^* (1 \pm X)$ englobe la valeur mesurée C , au niveau de risque global α (ici 10%). L'incertitude globale sur le résultat est due pour une part à l'incertitude sur le biais Δ , et d'autre part aux facteurs d'erreur tels que ceux liés au réglage du débit ou aux tolérances de fabrication de l'appareil. La précision sur le résultat C (ou sur l'estimation de C^* déduite de C et de Δ), liée au seul échantillonnage, est donc exprimée par la valeur de X . En pratique, il convient d'ajouter à l'incertitude liée à l'échantillonnage celle liée à l'analyse. Le principe du calcul de X est inspiré des travaux portant sur les performances des échantillonneurs effectués par d'autres auteurs [25-28]. Nous avons appliqué ici l'approche de Bonferroni, qui consiste à calculer tout d'abord la limite supérieure de l'intervalle de confiance Δ_{\max} du biais Δ en valeur absolue, au niveau de risque α_1 :

$$\Delta_{\max} = |\Delta| + t \sigma_{\Delta} \quad (4)$$

t : valeur de la variable de Student au niveau de risque unilatéral α_1 (ici 5 %) pour $n-k$ degrés de liberté (n : nombre de valeurs expérimentales de l'efficacité d'échantillonnage prises en compte dans l'ajustement des paramètres du modèle, k : nombre de paramètres ajustés).

σ_{Δ} écart-type sur Δ estimé à partir de la matrice variance-covariance des paramètres du modèle.

Dans une deuxième étape, on calcule la limite supérieure de l'écart relatif standard $RSD_t = \sigma(C)/C^*$ au niveau de risque α_2 (ici 5 %). La limite supérieure $RSD_{t,max}^2$ est la somme de plusieurs contributions dues au débit, à la variabilité interspécimen, ..etc. Pour l'ensemble des calculs, nous avons fixé $RSD_{t,max}$ à la valeur constante 0.02. Elle devrait être normalement évaluée pour chaque appareil. RSD_t traduit la reproductibilité du mesurage à l'aide du même type d'appareil.

Enfin on est amené à résoudre l'équation suivante :

$$\Phi [(\Delta_{max} + X) / RSD_{max}] - \Phi [(\Delta_{max} - X) / RSD_{max}] = 1 - \alpha \quad (5)$$

$$\alpha_1 + \alpha_2 = \alpha \quad (6)$$

Φ est la fonction normale réduite cumulée (fonction de Gauss) :

$$\Phi (z) = 1 / (\sqrt{2\pi}) \int_{-\infty}^z \exp(-u^2/2) du \quad (7)$$

RESULTATS OBTENUS

La Figure 2 montre que les résultats obtenus pour le cyclone 10-mm à 1.7 l.min^{-1} , représentés ici avec leur intervalle de confiance au niveau 95 %, sont en bon accord avec les résultats de la littérature [21-25], dont certains ont été reportés graphiquement. Ce regroupement des points permet de vérifier la justesse de la méthode. La Figure 3 montre à titre d'exemple les résultats obtenus pour le même appareil cyclone 10-mm, pour deux valeurs du débit : 1.7 l.min^{-1} et 1.5 l.min^{-1} . La première valeur correspond au débit actuellement utilisé en France et aux Etats-Unis; elle avait été fixée de telle sorte que l'efficacité d'échantillonnage soit la plus proche possible de l'ancienne convention ISO-ACGIH [29]. La deuxième valeur correspond à une valeur optimale du débit, sur la base de la nouvelle convention CEN. Elle a été obtenue en appliquant la méthode décrite par Saltzman [30], permettant d'établir la valeur du débit correspondant à un diamètre de coupure à 50 % donné, soit ici $4.0 \mu\text{m}$. Tsai et Shih [24] ont proposé un débit de 1.3 l.min^{-1} , sur la base de leurs propres mesures d'efficacité effectuées avec des particules solides.

Outre la nécessité d'avoir dû développer un logiciel d'acquisition des données brutes (concentrations, fonctions de distribution granulométrique) et de calcul des différents paramètres expérimentaux, le calcul des cartes de biais et de précision impliquait évidemment la disponibilité d'outils informatiques spécifiques. Bien que le projet de norme européenne prévoie la possibilité d'une simple interpolation linéaire entre les valeurs d'efficacité, nous avons d'emblée préféré développer un programme d'ajustement des paramètres d'un modèle de représentation d'une série de données expérimentales, prenant en compte l'ensemble des informations : valeurs d'efficacité d'échantillonnage et erreurs expérimentales estimées sur chaque point. La méthode, présentée par ailleurs [7], permet d'obtenir des estimateurs de l'erreur sur chaque paramètre du modèle, et ensuite de déterminer l'erreur autour de la valeur

du biais Δ . Le modèle choisi doit lui-même être suffisamment flexible pour ne pas introduire un biais supplémentaire, et d'autre part doit permettre de réaliser les extrapolations nécessaires au calcul des équations (1) et (2) en dehors du domaine de taille des particules à l'intérieur duquel on dispose de valeurs expérimentales. Plusieurs modèles de représentation ont été programmés pour représenter correctement la sélectivité d'un échantillonneur alvéolaire. Pour l'étude des appareils dans le cadre de cette étude, nous avons appliqué avec succès le modèle proposé par Lidén et Kenny [31] :

$$\text{arc tanh}(1-2E_E) = \sum_{j=0}^p W_j D_{ae}^j \quad (8)$$

Cette fonction analytique est capable de représenter également le cas d'une efficacité d'échantillonnage qui présente un maximum, comme par exemple pour l'appareil CIP10-R, en raison du rejet partiel des fines particules par la coupelle rotative.

Dans la Figure 3 présentant les résultats obtenus pour le cyclone 10-mm à 1.7 l.min⁻¹ et 1.5 l.min⁻¹, on a aussi représenté graphiquement les courbes correspondant au modèle ajusté pour chaque valeur du débit respectivement, ainsi que la courbe conventionnelle alvéolaire.

Le logiciel spécifique de calcul des cartes, fonctionnant sous environnement Microsoft Windows[®], nécessite l'entrée des données suivantes : choix du modèle, valeurs optimisées des paramètres du modèle, matrice de variance-covariance, convention choisie, nombre de points sur les cartes, type de calcul (biais, précision). Le programme fournit les cartes sous forme graphique, avec des codes de couleur ou de caractère pour chaque classe de biais ou de précision.

Les Figures 4 à 7 montrent les cartes de biais et de précision obtenues pour l'exemple traité. Les valeurs du biais Δ et de l'incertitude X apparaissent naturellement plus faibles dans le cas du débit optimal.

CONCLUSION

La méthodologie en vue d'évaluer les performances d'appareils d'échantillonnage, proposée dans un projet de norme européenne, a été appliquée à un ensemble d'échantillonneurs de la fraction alvéolaire conventionnelle d'un aérosol. Cette méthodologie exploite l'ensemble des informations expérimentales disponibles, en incluant les incertitudes de mesurage de l'efficacité d'échantillonnage, estimées au laboratoire, et les incertitudes associées aux paramètres de fonctionnement. Les résultats se présentent sous la forme de cartes de biais et de précision, qui traduisent de manière concrète la qualité des mesurages, liée au seul prélèvement, que l'on peut être amené à effectuer dans un environnement donné.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

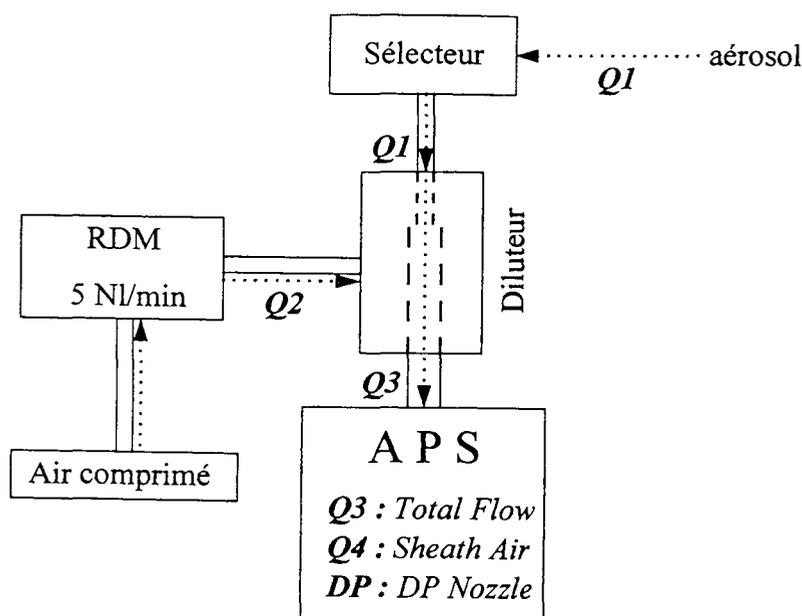
- [1] CEN (Comité Européen de Normalisation) (1993) European Standard EN 481. Workplace atmospheres - Size fraction definitions for measurement of airborne particles. CEN, Bruxelles.
- [2] AFNOR (Association Française de Normalisation) (1993) norme NF EN 481, (indice de classement X 43-276). Atmosphères des lieux de travail - Définition des fractions de taille pour le mesurage des particules en suspension dans l'air. AFNOR, Paris.
- [3] ISO (International Standards Organization) (1995) norme internationale ISO 7708. Air quality - Particle size fraction definitions for health-related sampling. ISO, Geneva.
- [4] CEN (Comité Européen de Normalisation) (1996) TC137/WG3 Draft Standard N171, Workplace atmospheres : Assessment of performance of instruments for measurement of airborne particles.
- [5] Fabriès, J.F., Carton, B., Wrobel, R. (1984) Equipment for the study of air sampling instruments with real time measurement of aerosol concentration. *Staub-Reinhalt. Luft*, **44**, 405-409.
- [6] Fabriès, J.F., Wrobel, R., Görner, P. (1991) Détermination expérimentale de l'efficacité d'échantillonnage d'appareils de prélèvement d'aérosols - Méthodes APS et Coulter. In actes des 8^{èmes} Journées d'études sur les aérosols, COFERA, Paris, 12-13 Novembre, pp. 117-126.
- [7] Fabriès, J.F., Görner, P. (1993) Accuracy requirements in performance assessment of particle size-selective samplers. *Am. Ind. Hyg. Conf. & Exp., Communication 350*, New Orleans, May 15-21, abstract, pp.77.
- [8] Chen, B.T., Cheng, Y.S., Yeh, H.C. (1985) Performance of a TSI aerodynamic particle sizer. *Aerosol Sci. Technol.*, **4**, 89-97.
- [9] Marshall, I.A., Mitchell, J.P., Griffiths, W.D. (1991) The behaviour of regular-shaped non-spherical particles in a TSI aerodynamic particle sizer, *J. Aerosol Sci.*, **22**, 73-89.
- [10] Cheng, Y.S., Chen, B.T., Yeh, H.C., Marshall, I.A., Mitchell, J.P., Griffiths, W.D. (1993) Behavior of compact nonspherical particles in the TSI aerodynamic particle sizer model APS33B : ultra-stokesian drag forces. *Aerosol Sci. Technol.*, **19**, 255-267.
- [11] Brockmann, J.E., Rader, D.J. (1990) APS response to nonspherical particles and experimental determination of dynamic shape factor. *Aerosol Sci. Technol.*, **13**, 162-172.
- [12] Wang, H.-C., John, W. (1989) A simple iteration procedure to correct for the density effect in the aerodynamic particle sizer. *Aerosol Sci. Technol.*, **10**, 501-505.
- [13] Chen, B.T., Cheng, Y.S., Yeh, H.C. (1989) An experimental approach to studying particle density effects in the TSI aerodynamic particle sizer (3300). *J. Aerosol Sci.*, **20**, 1489-1492.
- [14] Ananth, G., Wilson, J.C. (1988) Theoretical analysis of the performance of the TSI aerodynamic particle sizer - The effect of density on response. *Aerosol Sci. Technol.*, **9**, 189-199.
- [15] Wang, H.-C., John, W. (1987) Particle density correction for the aerodynamic particle sizer. *Aerosol Sci. Technol.*, **6**, 191-198.
- [16] Cheng, Y.S., Chen, B.T., Yeh, H.C. (1990) Behaviour of isometric nonspherical aerosol particles in the aerodynamic particle sizer. *J. Aerosol Sci.*, **21**, 701-710.
- [17] Baron, P.A. (1986) Calibration and use of the aerodynamic particle sizer (APS 3300). *Aerosol Sci. Technol.*, **5**, 55-67.

- [18] Cheng, Y.-S., Chen, B.T., Yeh, H.-C. (1993) Performance of an aerodynamic particle sizer. *Appl. Occup. Environ. Hyg.*, **8**, 307-312.
- [19] Chen, B.T., Cheng, Y.S., Yeh, H.C. (1990) A study of density effect and droplet deformation in the TSI aerodynamic particle sizer. *Aerosol Sci. Technol.*, **12**, 278-285.
- [20] Griffiths, W.D., Iles, P.J., Vaughan, N.P. (1986) The behaviour of liquid droplet aerosols in an APS 3300. *J. Aerosol Sci.*, **17**, 921-930.
- [21] Caplan, K.J., Doemeny, L.J., Sorenson, S.D. (1977) Performance characteristics of the 10-mm cyclone respirable mass sampler : part I - monodisperse studies. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, **38**, 83-95.
- [22] Baron, P.A. (1983) Sampler evaluation with an aerodynamic particle sizer. In *Aerosols in the Mining and Industrial Work Environments*, Int. Symp., Minneapolis, MN, November 1-6, 1981, eds.: Marple, V.A., Liu, B.Y.H., vol.3, Ann Arbor Science, pp. 861-877.
- [23] Ettinger, H.J., Partridge, J.E., Royer, G.W. (1970) Calibration of two-stage air samplers. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, **31**, 537-545.
- [24] Tsai, C.-J., Shih, T.-S. (1995) Particle collection efficiency of two personal respirable dust samplers. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, **56**, 911-918.
- [25] Bartley, D.L., Fischbach, T.J. (1993) Alternative approaches for analyzing sampling and analytical methods. *Appl. Occup. Environ. Hyg.*, **8**, 381-385.
- [26] Bartley, D.L., Chen, C.-C., Song, R., Fischbach, T.J. (1994) Respirable aerosol sampler performance testing. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, **55**, 1036-1046.
- [27] Lidén, G., Kenny, L.C. (1992) The performance of respirable dust samplers : sampler bias, precision and inaccuracy. *Ann. Occup. Hyg.*, **36**, 1-22.
- [28] Kenny, L.C., Bartley, D.L. (1995) The performance evaluation of aerosol samplers tested with monodisperse aerosols. *J. Aerosol. Sci.*, **26**, 109-126.
- [29] ISO (International Standards Organization) (1983) Air quality - Particle size fraction definitions for health-related sampling. Technical Report ISO TR 7708, ISO, Geneva.
- [30] Saltzman, B.E. (1984) Generalized performance characteristics of miniature cyclones for atmospheric particulate sampling. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, **45**, 671-680.
- [31] Lidén, G., Kenny, L.C. (1991) Comparison of measured respirable dust sampler penetration curves with sampling conventions. *Ann. Occup. Hyg.*, **35**, 485-504.

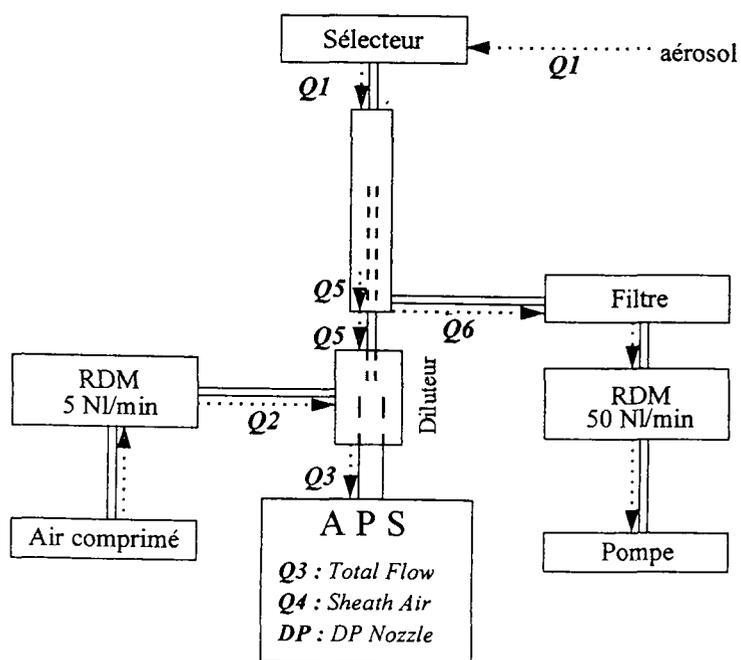
Echantillonneur	Individuel, Statique	Origine	Type sélecteur	de Débit nominal [l.min ⁻¹]	Débit optimal [l.min ⁻¹]	Ø du filtre [mm]
Cyclone nylon	10mm I	USA	Cyclone	1.7	1.5	25 ou 37
Cyclone plastique	SKC I	GB	Cyclone	1.9	1.9	25
Cyclone plastique	Casella I	GB	Cyclone	1.9	1.9	25
Cyclone Gamma, Al	SKC I	GB	Cyclone	1.9	2.2	25
Cyclone Africain	Sud- I	SA	Cyclone	1.9	-	25
Cyclone Lippmann	6 mm I	USA	Cyclone	2.4	-	37
ODPN	I	CS	Cyclone	0.8	-	35
CXF - 2	I	Chine	Impacteur virtuel	2.0	2.0	25
CIP 10-R	I	F	Impacteur, mousse sél.	10	10	Coupelle rotative
MRE 113 A	S	GB	Elutriateur horizontal	2.5	-	55
C.A.Th.I.A alvéolaire	S	F	Impacteur, mousse sél.	10	10	37
Cyclone Lippmann	12 mm S	USA	Cyclone	10	-	20
DP - 20	S	CS	Cyclone	20	8	35
DP - 50	S	CS	Cyclone	50	25	28 x 90*
TBF - 50	S	D	Cyclone	50	-	Cyclone§

* filtre à § 2ème
manche Ø 28 mm L 90 mm cyclone comme collecteur

Tableau 1 Appareils étudiés permettant l'échantillonnage de la fraction alvéolaire d'un aérosol, et valeurs du débit nominal d'utilisation et du débit optimal déterminé selon la méthode de Saltzman [30]. Les dimensions du filtre terminal sont indiquées, ou bien lorsqu'il n'en est pas prévu, la nature du système de collection des particules sélectionnées par l'appareil.



(a)



(b)

Figure 1

Dispositifs expérimentaux permettant de déterminer l'efficacité de pénétration des particules à travers un système sélecteur à l'aide de l'analyseur APS. Q1 : débit d'échantillonnage, Q2 : débit de dilution, Q3 : débit entrant dans l'APS ($5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$), Q4 : débit de dilution interne de l'APS ($4 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$), Q5 : débit de l'aérosol en sortie de sélecteur et transmis au diluteur, Q6 : débit de fractionnement de l'aérosol, RDM : débitmètre massique régulateur, DP : perte de charge au niveau de la buse d'accélération de l'APS

(a) montage pour $Q1 < 5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ (b) montage pour $Q1 > 5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$

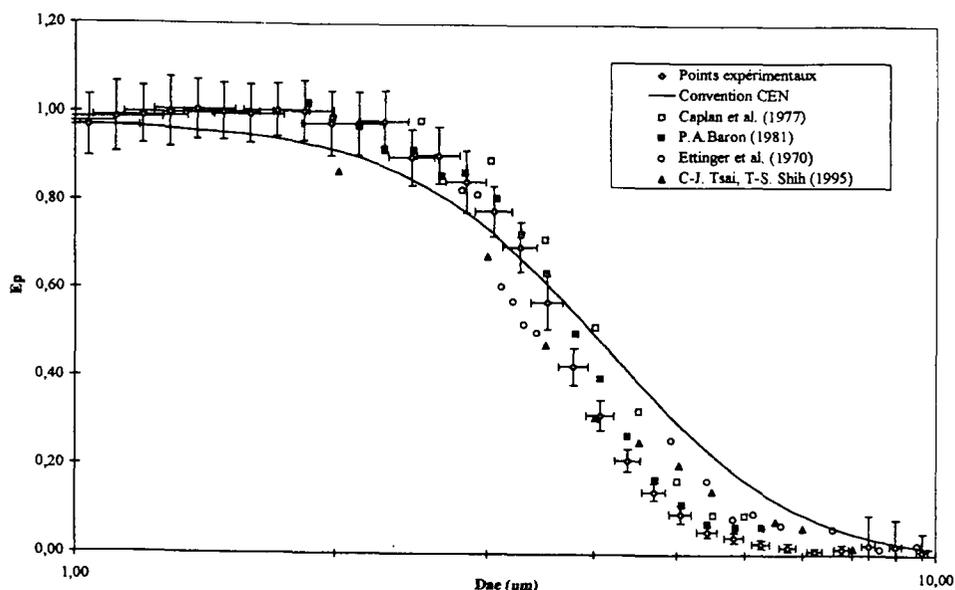


Figure 2 Efficacité d'échantillonnage mesurée pour le cyclone 10-mm nylon à 1.7 l.min^{-1} . Les intervalles de confiance à 95 % sont indiqués. Les données obtenues par d'autres auteurs sont reportées : Caplan et al. [21], Baron [22], Ettinger et al. [23], Tsai et Shih [24], ainsi que la courbe conventionnelle alvéolaire [1].

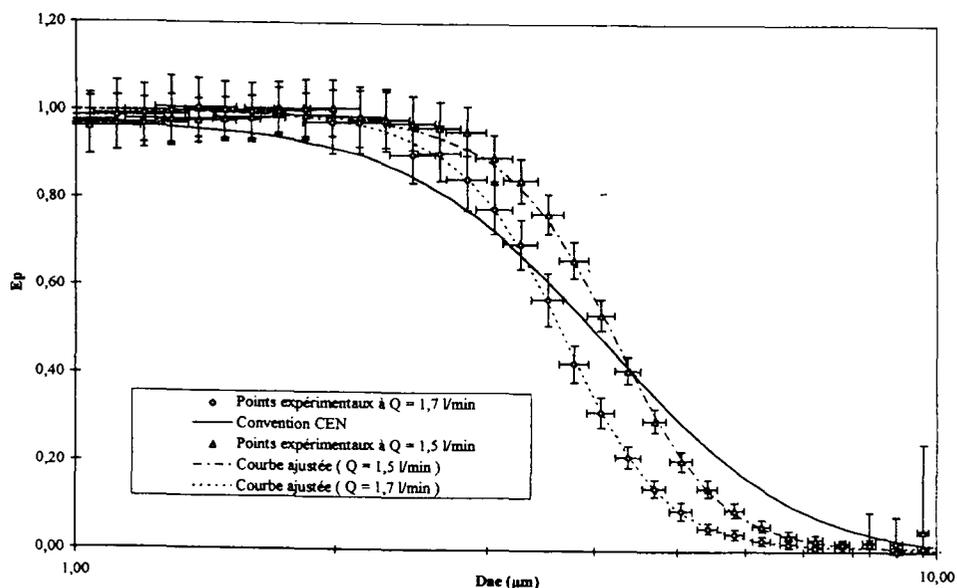


Figure 3 Efficacité d'échantillonnage mesurée pour le cyclone 10-mm nylon pour le débit nominal 1.7 l.min^{-1} et pour le débit optimal 1.5 l.min^{-1} . Les courbes en pointillés représentent pour chaque valeur du débit le meilleur ajustement obtenu avec le modèle décrit par l'équation (8) :

$$1.7 \text{ l.min}^{-1} : W_0 = -4.86560, W_1 = 1.69145, W_2 = -0.0986133$$

$$1.5 \text{ l.min}^{-1} : W_0 = -4.43434, W_1 = 1.31325, W_2 = -0.0603865$$

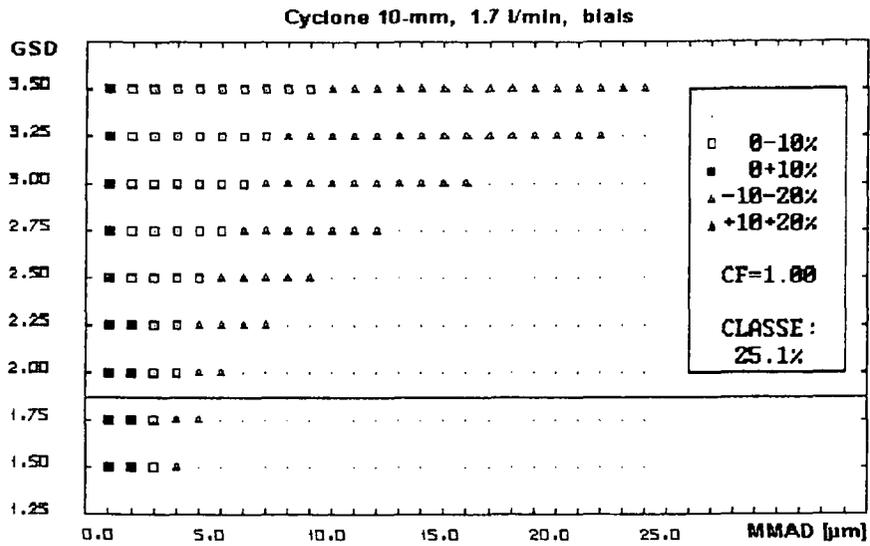


Figure 4 Carte de biais correspondant au cyclone 10-mm nylon à $1.7 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, calculée à partir du modèle de représentation de l'efficacité d'échantillonnage.

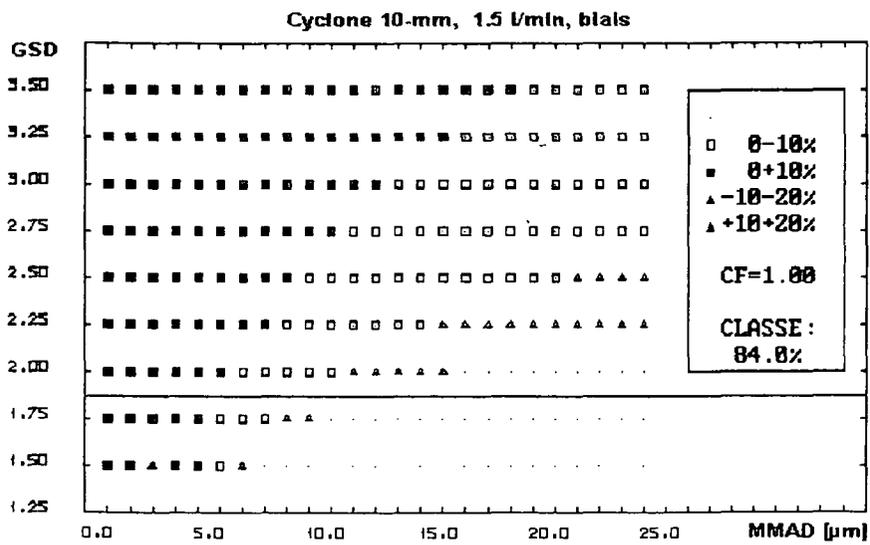


Figure 5 Carte de biais correspondant au cyclone 10-mm nylon à $1.5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$, calculée à partir du modèle de représentation de l'efficacité d'échantillonnage.

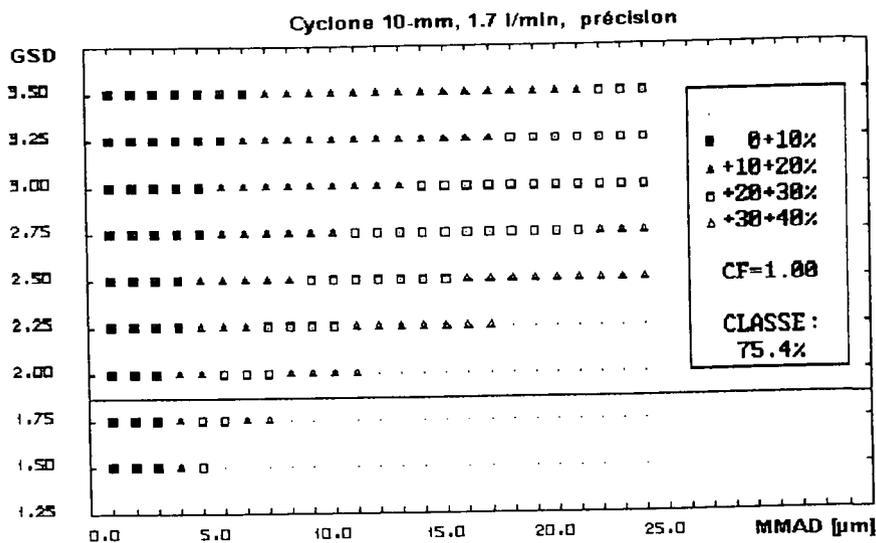


Figure 6 Carte de précision correspondant au cyclone 10-mm nylon à 1.7 l.min⁻¹, calculée à partir du modèle de représentation de l'efficacité d'échantillonnage et de l'incertitude sur les valeurs expérimentales.

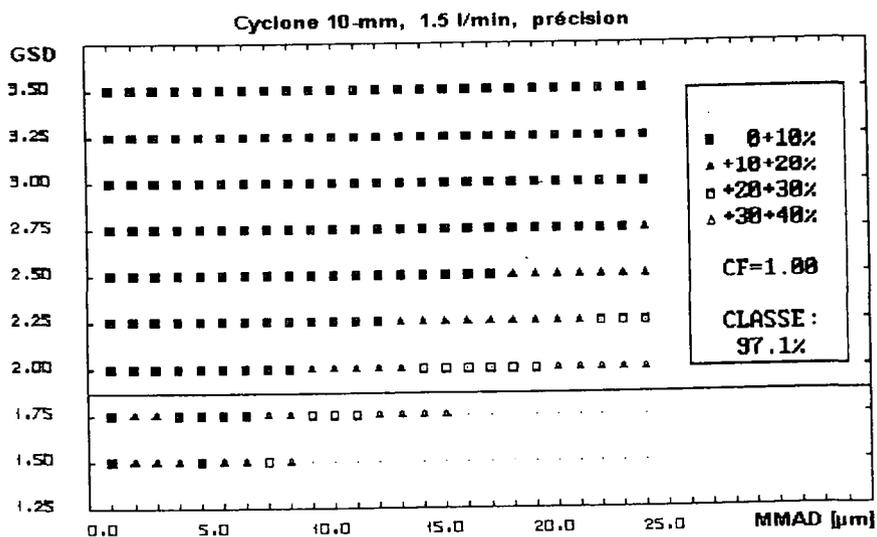


Figure 7 Carte de précision correspondant au cyclone 10-mm nylon à 1.5 l.min⁻¹, calculée à partir du modèle de représentation de l'efficacité d'échantillonnage et de l'incertitude sur les valeurs expérimentales.

Les analyseurs différentiels de mobilité électrique, une nouvelle méthode pour la détermination de la densité et de la masse des aérosols.

E. LE BRONEC¹, D. BOULAUD², M. POURPRIX², A. RENOUX¹
1 Université Paris XII, LPATC, Créteil,
2 IPSN, CEA Saclay, LPMA

Abstract

In many applications we need to know the particle substance density. Our new method to determine the particle density and mass is based on a simultaneous measurement of the electrical mobility (Z) and the relaxation time (τ) of the particle. To do this we use a Radial Differential Mobility Analysers (RFDMA) know under the name SMEC (Spectrometre de mobilite électrique circulaire). To check the correctness of the theoretical results the mass of polystyrene Latex (PSL) particles were measured. The agreement between the theoretical predictions and the experimental results was good and the uncertainty is less than 5% when the PSL particles are greater than $6\mu\text{m}$.

Introduction

Dans de nombreux domaines, il est nécessaire de connaître la densité et la masse des particules. Les travaux précurseurs de Milikan permettaient de déterminer la masse des aérosols par équilibre de forces (forces électrique et gravitationnelle) mais nécessitaient une mesure indépendante du volume des particules. Par la suite Emmets et ses collaborateurs (1) mettent au point une nouvelle méthode utilisant des analyseurs différentiels de mobilité électrique. Cette méthode a cependant l'inconvénient de nécessiter une inversion de données difficile. Notre nouvelle méthode utilise également des analyseurs de mobilité électrique qui sont des Spectromètres de Mobilité Electrique Circulaires (SMEC)(3,4). Ces appareils, de symétrie circulaire, permettent, par une combinaison de forces électrique et aéraulique, de sélectionner les aérosols en fonction de leur mobilité électrique (Z). Notre but est de développer une méthode en ligne pour la mesure de la masse et de la densité des particules. Son principe est basé sur la mesure simultanée de la mobilité électrique et du temps de relaxation des particules.

I - Le SMEC, présentation

Le Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire ou SMEC (figure 1) est un appareil composé de deux plaques métalliques circulaires séparées d'une distance h , formant ainsi un condensateur. Une des deux plaques est portée à un potentiel électrique négatif et l'autre est mise à la masse créant ainsi un champ électrique E . Un flux d'air propre et sec de débit Q_f est injecté par la périphérie de l'appareil et en est évacué par le centre. Une fente circulaire de rayon a , découpée sur la plaque supérieure du SMEC, permet d'injecter un aérosol avec un débit Q_a . Cet aérosol est sélectionné dans la zone interplaque par la combinaison de deux forces. D'une part une force de viscosité due aux flux aérauliques, et d'autre part une force électrique due à la différence de tension entre les deux plaques.

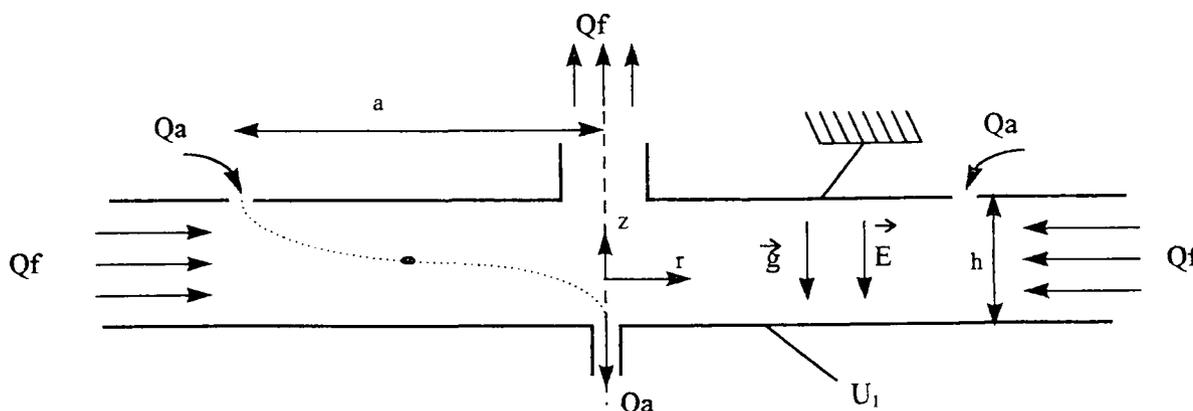


Figure 1 : Le Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire.

En ne considérant que ces deux forces on sélectionne les particules en fonction de leur mobilité électrique Z .

$$Z = n_p eB$$

où e (charge élémentaire) = $1.602 \cdot 10^{-19}$ C
 n_p : nombre de charges élémentaires de la particule
 B : mobilité dynamique de la particule :

$$B = \frac{C_u}{3\pi\mu D_p}$$

Où C_u est le coefficient de correction de Cunningham

$$C_u = 1 + Kn \left[1.142 + 0.558 \exp\left(\frac{-0.999}{Kn}\right) \right]$$

et Kn , le nombre de Knudsen.

$$Kn = \frac{2\lambda}{D_p}$$

Notre idée est de tenir compte également de la gravité dont on caractérise l'influence par le temps de relaxation τ de la particule de masse m_p :

$$\tau = m_p B$$

Le déplacement d'une particule dans le SMEC n'est donc plus fonction que de sa seule mobilité électrique, mais également de son temps de relaxation. C'est ce que nous allons introduire dans la fonction de transfert.

II - La fonction de transfert

Afin de caractériser les performances d'un analyseur différentiel de mobilité électrique, on étudie la fonction de transfert P de l'appareil.

P = probabilité pour qu'une particule de caractéristiques données soit sélectionnée par l'analyseur

Une particule est considérée comme ayant été sélectionnée si, après être entrée par le trou d'injection d'aérosol avec le débit Q_a dans l'analyseur, elle en ressort par l'orifice d'extraction d'aérosol sans avoir touché aucune paroi.

Pour définir la fonction de transfert, on parle de particule de caractéristiques données qui sont sa mobilité électrique Z , et son temps de relaxation τ .

Afin de déterminer l'expression analytique de la fonction de transfert, nous utilisons la méthode d'analyse de Knutson et Whitby (2) basée sur un changement de variables, ce qui évite d'avoir une connaissance détaillée de la structure du champ de vitesse.

Soit r et z les coordonnées radiale et axiale, et U , E et G les vecteurs représentant respectivement le champ de vitesse aéraulique, le champ électrique et le champ de gravité.

Nous devons tout d'abord faire plusieurs hypothèses:

- les champs de vitesse, électrique et de gravité sont axi-symétriques et stationnaires
- les écoulements sont laminaires et incompressibles ($\text{div}(U)=0$)
- les charges d'espace et image sont négligeables ($\text{div}(E)=0$)

Nous pouvons donc définir la fonction de courant :

$$\Psi(r, z) = \int^{r,z} [rU_r dz - rU_z dr]$$

De la même façon, on peut définir pour le champ électrique E , une fonction de flux de champ électrique ϕ :

$$\phi(r, z) = \int^{r,z} [rE_r dz - rE_z dr]$$

Et pour le champ de gravité G une fonction flux de champ de gravité σ :

$$\sigma(r, z) = \int^{r,z} [rG_r dz - rG_z dr]$$

Où les indices r et z représentent respectivement les composantes radiales et axiales des vecteurs.

Le principe de notre analyse est basé sur le remplacement des coordonnées r et z par les différentes fonctions que nous venons de définir.

La figure 2 nous permet de visualiser ces fonctions.

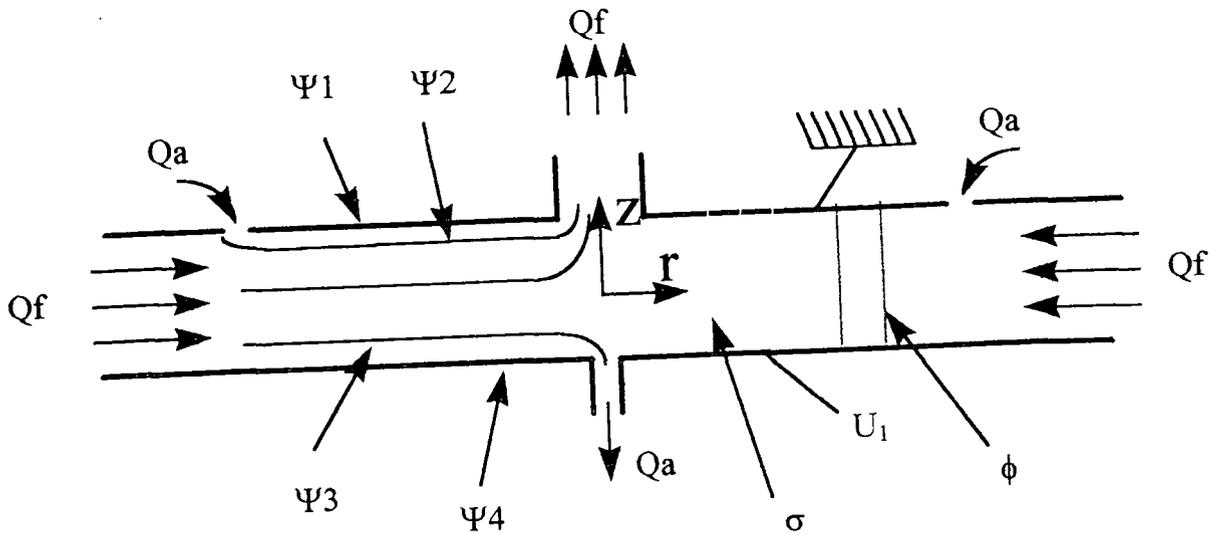


Figure 2 : Lignes de courant, de champ électrique, et de champ de gravité.

La figure 2 nous montre 4 lignes de courant particulières. Ψ_1 et Ψ_2 qui représentent les limites du débit d'injection d'aérosol et Ψ_3 et Ψ_4 qui représentent les limites du débit d'extraction d'aérosol.

Le débit entre deux lignes de courant Ψ'' et Ψ' est donné par

$$Q(\Psi'', \Psi') = 2\pi(\Psi'' - \Psi')$$

Ce qui donne (figure 2)

$$Q_a = 2\pi(\Psi_2 - \Psi_1) = 2\pi(\Psi_4 - \Psi_3)$$

$$Q_f = 2\pi(\Psi_4 - \Psi_2) = 2\pi(\Psi_3 - \Psi_1)$$

Si on ne tient pas compte des perturbations aux environs des zones d'injection et d'extraction d'aérosol, le champ électrique dans la zone de sélection est constant et donné par:

$$E_r = 0, \quad E_z = U_1/h \quad (U_1 \text{ négatif})$$

De même le champ de gravité est donné dans le SMEC par

$$G_r = 0; \quad G_z = -g$$

Si on suppose qu'il n'y a pas de glissement des particules par rapport aux lignes de courant, la vitesse d'une particule dans le SMEC est donnée à tout instant par :

$$V = U + ZE + \tau G$$

Où ZE représente la vitesse limite de chute de la particule due au champ électrique et τG la vitesse limite de chute due à la pesanteur.

Le fluide étant incompressible on a $\text{div}(U) = 0$

De même le champ électrique et le champ de pesanteur sont à divergence nulle. On peut donc écrire :

$$\text{Div}(V) = 0$$

En se ramenant aux fonctions de courant, de flux électrique et de champ de gravité, on peut définir une fonction de courant de la particule

$$\Gamma(r, z) = \int^{r,z} [rV_r dz - rV_z dr]$$

En développant V on obtient

$$\Gamma(r, z) = \psi(r, z) + Z\phi(r, z) + \tau\sigma(r, z)$$

Les particules suivent les lignes de Γ constant donc entre l'entrée et la sortie du SMEC

$$\Gamma_{in} = \Gamma_{out} = \text{cst}$$

Ce qui implique $\Delta\Gamma = 0$

En intégrant la fonction de courant de la particule entre l'entrée et la sortie d'aérosol et en transformant la fonction de courant en débit, il est possible d'obtenir P :

$$P = (1/Q_a) \cdot \text{Max}[0, \text{min}(Q_a, Q_a - |2\pi Z\Delta\Phi + 2\pi\tau\Delta\sigma + Q_f|)]$$

La figure 3 donne un schéma de cette fonction

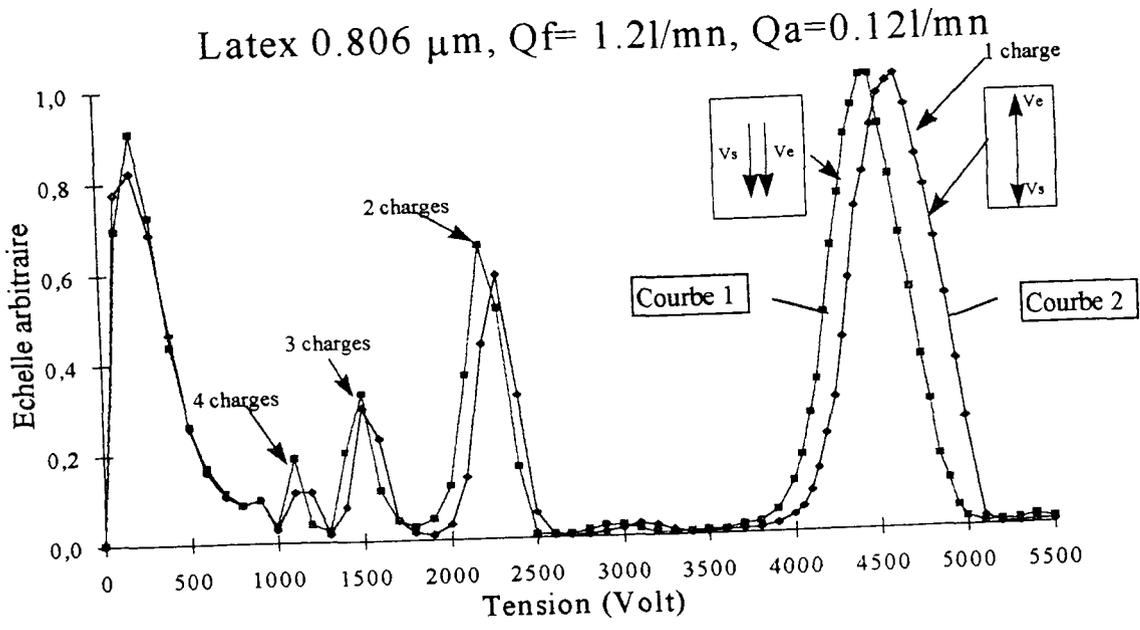


Figure 5 : Granulométrie d'un aérosol de latex. Courbes 1 et 2.

Puis, nous réalisons la même manipulation mais cette fois en retournant le SMEC (extraction de l'aérosol au dessus de l'appareil). Dans ce cas les champs électrique et de gravité agissent en sens opposé. Nous obtenons la courbe 2 figure 5.

On observe un décalage entre les deux courbes. Cet effet est dû à l'influence de la gravité et c'est à partir de ce décalage que nous allons remonter à la masse de l'aérosol. Intéressons nous au pic correspondant à une charge élémentaire. D'après la relation (1), on voit que, pour sélectionner les particules lorsque les forces de gravité et électrique agissent dans le même sens, il faut appliquer une tension U_1 au SMEC avec

$$U_1 = \left(\frac{Qf}{\pi B a^2} - mg \right) \frac{h}{ne}$$

et dans le cas où les forces de gravité et électrique agissent en sens contraire, il faut appliquer une tension U_2

$$U_2 = \left(\frac{Qf}{\pi B a^2} + mg \right) \frac{h}{ne}$$

La figure 6 donne la comparaison entre la théorie et l'expérience pour ce pic.

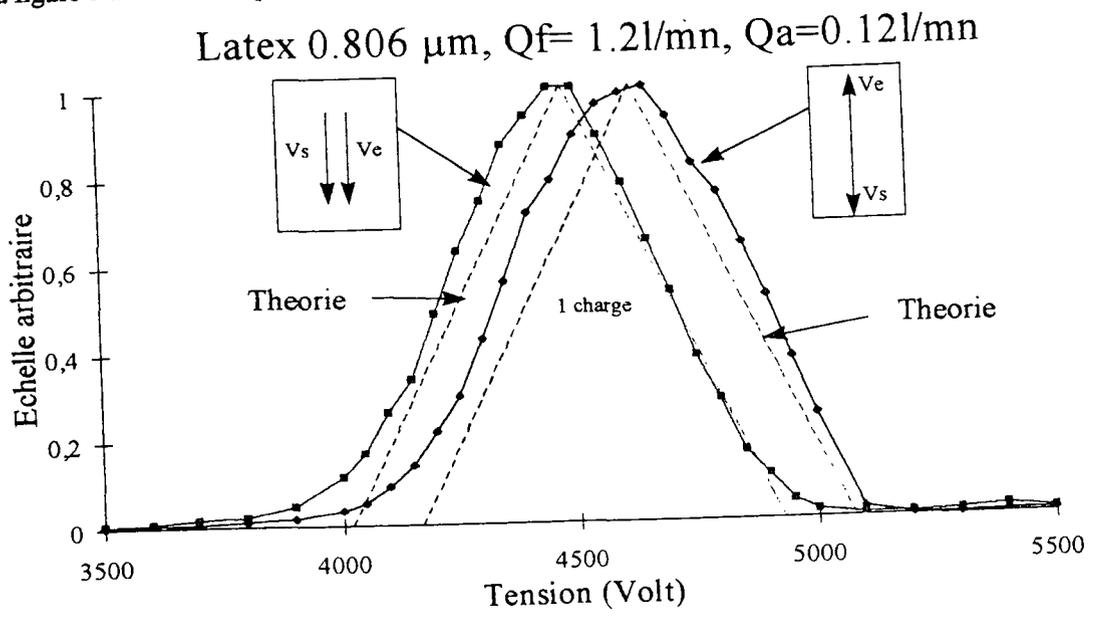


Figure 6 : Le pic des une charge.

A partir de ces deux pics nous pouvons déterminer une tension moyenne :

$$\bar{U} = \frac{U_2 + U_1}{2} = \frac{Qf \cdot h}{\pi n e B a^2}$$

On remarque que cette tension moyenne n'est fonction que de la mobilité électrique de l'aérosol. Le nombre de charges étant connu il est donc aisé de remonter au diamètre de la particule. Calculons maintenant la différence entre U_1 et U_2 :

$$\Delta U = U_2 - U_1 = \frac{2mgh}{ne}$$

On remarque que cette fois ci ΔU n'est fonction que de la masse des particules. On peut donc, à partir de ces deux mesures, remonter directement au diamètre, à la masse, et donc à la densité des particules.

Comparons ces résultats théoriques avec nos expériences.

Les expériences ont été réalisées avec différentes tailles de latex et la figure 7 rassemble tous nos résultats en donnant les décalages en tension (ΔU) en fonction de la masse des particules.

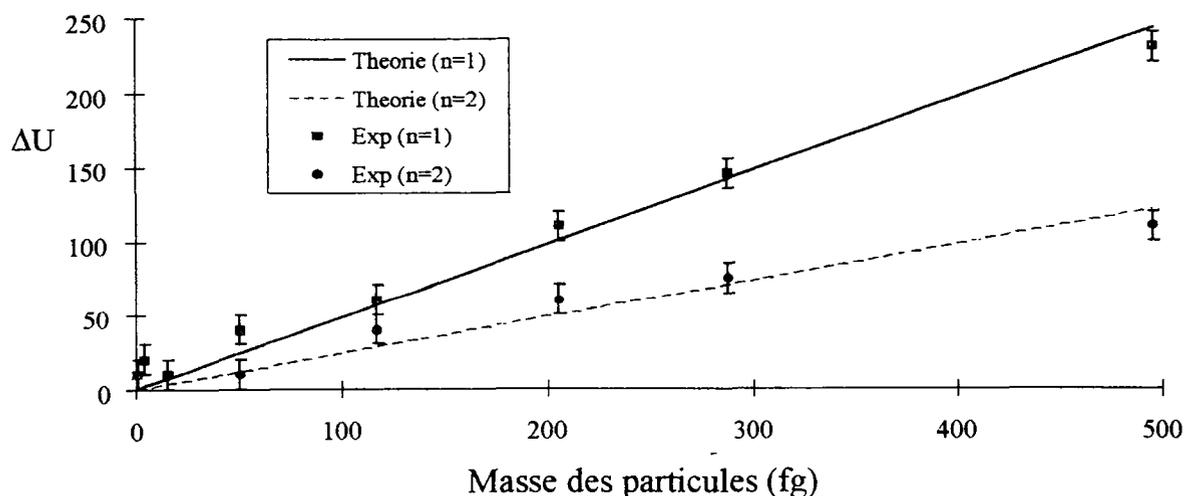


Figure 7 : Comparaison théorie expérience pour différents latex.

Conclusions et perspectives

Notre méthode s'avère être tout a fait valable pour des particules de masse supérieure à 10^{-13} g ce qui correspond à des diamètres supérieurs à $0.6 \mu\text{m}$. Pour les tailles supérieures nous avons une incertitude inférieure à 5% pour la détermination de la masse.

Notre travail va maintenant s'attacher à déterminer la masse des aérosols pour des particules supermicroniques, mais surtout pour des aérosols polydispersés .

Bibliographie :

- 1- E.P. Emets, V.A. Kascheev and P.P. Poluektov (1992) J. Aerosol Sci. 23 :27-35,
- 2- E.O. Knutson and K.T. Whitby (1975) J. Aerosol Sci. 6 :443-451,
- 3- M. Pourprix, D. Boulaud, B. Mesbah and M. Ooghe (1994) 4th International Aerosol Conference, Los Angeles, 1, 463,
- 4- B. Mesbah (1994) Thèse de l'Université PARIS XII.

UTILISATION DES FILTRES FIBREUX POUR LA MESURE DE LA RADIOACTIVITE DES AEROSOLS

USING FIBER FILTERS TO MEASURE AEROSOLS RADIOACTIVITY

Liliane GRIVAUD - Sylvain FAUVEL

Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, Département de Prévention et d'Etude des Accidents,
Service d'Etudes et de Recherches en Aérocontamination et en Confinement
CEA/SACLAY - bâtiment 389 - 91191 GIF-SUR-YVETTE, France

ABSTRACT

Fiber filters are widely used to take aerosol samples to monitor radioactivity in nuclear facilities and their environments. The 5 most commonly used filters have pressure drops of less than 150 hPa for filtering speeds of 1 m/s and therefore enable sampling rates of several dozen cubic meters per hour using relatively inexpensive pumps.

Depending on the filter used, the minimum collection efficiency, measured with 0.15 μm particles, varies from 47 to 97 %. These values correspond to filtering speeds ranging from 0.1 and 1 m/s. It should be noted that this efficiency increases as the filter load increases.

Special care is required when using these filters to measure the α radioactivity of aerosols. During tests performed using a 0.4 μm aerosol marked with ^{239}Pu and sampled using cellulose fiber filters, we observed a decrease in overall α detection efficiency which may reach 65 % of that obtained using a membrane type filter. Furthermore, the α spectrometric analysis of the sample requires prior mineralization of the filter; since direct analysis is impossible due to the deterioration of the α energy within the media, caused by the burying of the particles.

1. INTRODUCTION

La surveillance radiologique des zones de travail et de l'environnement des sites nucléaires comprend entre autres la mesure de la radioactivité des aérosols.

Dans le cadre de cette surveillance, deux types de mesures sont effectuées :

- ◆ des mesures en continu qui donnent une indication de l'activité volumique en temps réel et peuvent déclencher une alarme précoce en cas de dépassement de seuil. Celles-ci sont effectuées à l'aide de moniteurs de contamination atmosphérique équipés de dispositifs électronique et informatique qui effectuent une compensation automatique de l'activité naturelle prélevée. Cette compensation repose souvent sur une discrimination de l'énergie des particules α mesurées ce qui implique l'utilisation de filtres de prélèvement de type membrane. Ces filtres ont en effet la particularité de collecter les aérosols à leur surface, évitant ainsi la dégradation de l'énergie des particules α au sein du média.
- ◆ des mesures différées en laboratoire qui permettent de mesurer des activités inférieures aux Limites Dérivées de Contamination dans l'Air (LDCA)[1]. Dans ce cas, des prélèvements de 24 heures sur filtre fixe sont effectués ; leur activité est mesurée après décroissance de la radioactivité naturelle. L'utilisation de grands débits d'échantillonnage (1000 l.min⁻¹ dans l'environnement) permet d'abaisser le seuil de détection. Compte tenu de la durée et des débits de prélèvement, il convient d'utiliser pour ce type de surveillance des filtres qui ont une grande capacité d'empoussièrement sans

entraîner une augmentation importante de perte de charge, ce qui aurait pour conséquence de faire chuter le débit de prélèvement. Les filtres fibreux répondent mieux à cet impératif que les filtres membrane. De plus, l'investissement financier d'un programme de surveillance impliquant un grand nombre de points de prélèvement est à prendre en compte. Les filtres fibreux répondent également à ce critère car, plus économiques que les filtres membrane ils présentent une résistance à l'écoulement plus faible que ces derniers permettant l'utilisation de pompes moins onéreuses.

Des études ont été effectuées pour le compte des services de radioprotection afin de connaître les performances de ces filtres vis-à-vis de la mesure de la radioactivité des aérosols. Les résultats de ces études sont présentés ci-dessous. Il est à noter que tous les filtres fibreux testés sont commercialisés par la société Bernard DUMAS.

2. ETUDE PRELIMINAIRE

Cette première étude avait pour objectif de connaître le rendement de mesure des ensembles de comptage utilisés dans les 14 laboratoires du service de radioprotection de Centre d'Etudes de Saclay au moyen d'une intercomparaison.

Cette intercomparaison a porté sur :

- ◆ deux types de filtres : filtres de cellulose C-135 et filtres de cellulose imprégnés de charbon actif, réf. 902,
- ◆ trois diamètres utiles de filtres : 34 mm, 110 mm et 125 mm,
- ◆ trois radionucléides : ^{239}Pu , ^{14}C et $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$.

Les aérosols ont été obtenus à partir d'une solution de chlorure de baryum marquée avec le radionucléide sélectionné. Cette solution est pulvérisée au moyen d'un générateur pneumatique, les aérosols déshydratés sont prélevés sur le filtre étudié. La vitesse de filtration est de $1,5 \text{ m.s}^{-1}$. La masse surfacique des aérosols collectée ($0,1 \text{ mg.cm}^{-2}$) est représentative du dépôt moyen obtenu lors d'un prélèvement de 24 heures en zone de travail.

Parallèlement à la réalisation de ces filtres, nous avons effectué un dépôt, sur une coupelle de 128 mm de diamètre, de chacune des solutions radioactives utilisées précédemment. La masse surfacique du dépôt est égale à celle collectée sur les filtres afin de connaître l'influence de l'auto-absorption du rayonnement α dans la couche de sel.

Enfin nous avons fourni une source étalon, de chacun des radionucléides, délivrée par le Laboratoire de Métrologie des Rayonnements Ionisants (LMRI), ces sources étant le moyen habituellement utilisé pour vérifier le rendement de détection des ensembles de comptage.

Outre la connaissance des rendements de mesure de chaque installation pour les deux types de filtres utilisés, cette étude a permis de déterminer le coefficient de corrélation K entre le rendement de mesure de ces filtres et celui obtenu avec l'étalon solide du LMRI tel que :

$$K = \frac{\text{Rendement de mesure des filtres}}{\text{Rendement de mesure de l'étalon solide}}$$

Le rendement de mesure des filtres inclut l'influence des paramètres suivants :

- ◆ le rendement de collection des aérosols sur le filtre,
- ◆ l'angle solide de détection,
- ◆ l'atténuation du rayonnement α ou β dans le média,
- ◆ l'auto-absorption du rayonnement α ou β dans l'épaisseur de la couche de sel prélevé.

Les résultats de mesure (tableau 1) montrent que :

- ◆ les coefficients de corrélation sont reproductibles (écart-type relatif de la population de l'ordre de 10 %) bien que les valeurs de rendement obtenues sur l'ensemble des laboratoires soient assez dispersées du fait de la disparité du matériel de détection utilisé ;
- ◆ la valeur du coefficient de corrélation est petite notamment pour le plutonium 239 ce qui entraînerait une sous-estimation de l'activité mesurée si les détecteurs n'étaient étalonnés qu'à partir de sources étalons solides.

Nature de l'échantillon	²³⁹ Pu		¹⁴ C		⁹⁰ Sr + ⁹⁰ Y	
	Coefficient de corrélation K_α	Ecart-type S_K	Coefficient de corrélation K_β	Ecart-type S_K	Coefficient de corrélation K_β	Ecart-type S_K
Source solide	1	-	1	-	1	-
Résidu d'évaporation	0,73	0,07	0,76	0,06	0,95	0,04
Filtre cellulose (C-135) :						
Ø 125 mm	0,41	0,03	0,42	0,05	0,76	0,06
Ø 110 mm	0,45	0,04	0,47	0,07	0,78	0,06
Ø 34 mm	0,50	0,05	0,49	0,06	0,91	0,03
Filtre cellulose et charbon (902) :						
Ø 125 mm	0,13	0,01	0,26	0,04	-	-
Ø 110 mm	0,14	0,01	0,28	0,03	-	-
Ø 34 mm	0,14	0,01	0,30	0,04	-	-

Tableau 1 - Coefficient de corrélation pour la mesure de l'activité alpha ou bêta globale d'aérosols prélevés sur filtre

Compte tenu de ces résultats, une étude systématique des filtres les plus souvent utilisés par les différents organismes concernés par la radioprotection : CEA, COGEMA, EDF et OPRI a été entreprise. Cette étude a porté dans un premier temps sur les caractéristiques aérauliques de ces filtres puis sur le facteur d'influence de grandeurs telles que la vitesse et la durée du prélèvement sur le rendement de mesure de l'activité alpha des aérosols.

3. CARACTERISTIQUES AERAIQUES DES FILTRES

Les données commerciales des filtres testés sont indiquées dans le tableau suivant :

Référence	Nature	Couleur
B-132	cellulose	bleu
C-135	cellulose	rouge
C-357	fibres de verre	blanc
C-569	cellulose et fibres de verre	jaune
C-577	cellulose et fibres de verre	rose
902	cellulose et charbon	noir

Tableau 2 - Filtres testés pour leurs performances aérauliques

A titre de comparaison, nous rappelons ici les performances de la membrane AW 19, qui équipe la plupart des moniteurs de contamination atmosphérique. Cette membrane, commercialisée par la société MILLIPORE, est constituée d'esters de cellulose.

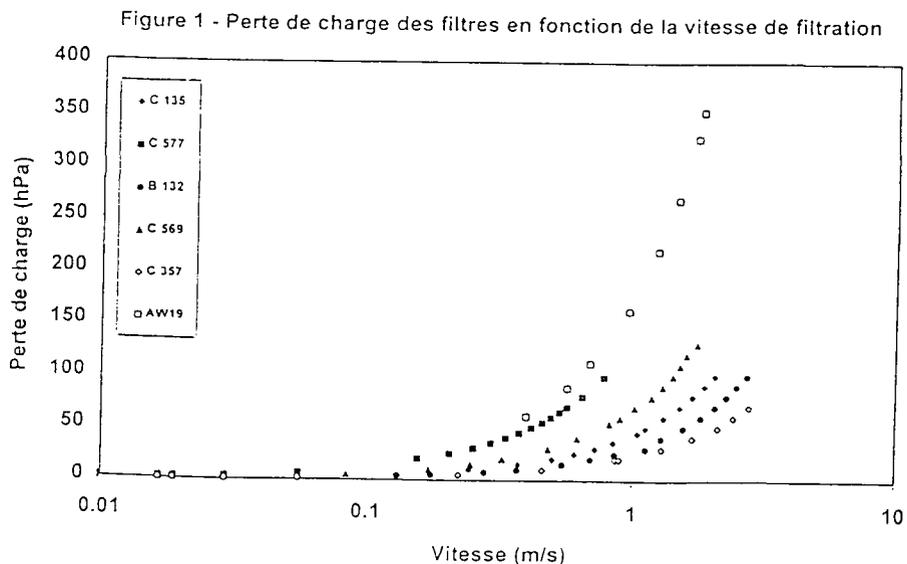
L'étude a porté sur :

- ◆ la mesure de la perte de charge en fonction de la vitesse de filtration et du colmatage,
- ◆ la détermination du rendement de collection d'aérosols de $0.15\mu\text{m}$ sur des filtres vierges,
- ◆ l'influence du colmatage du filtre sur le rendement de collection.

3.1. Perte de charge des filtres [2]

Les mesures sont effectuées sur des filtres vierges pour des vitesses frontales de filtration variant de $0,02\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ à $2\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. L'air prélevé est celui du laboratoire.

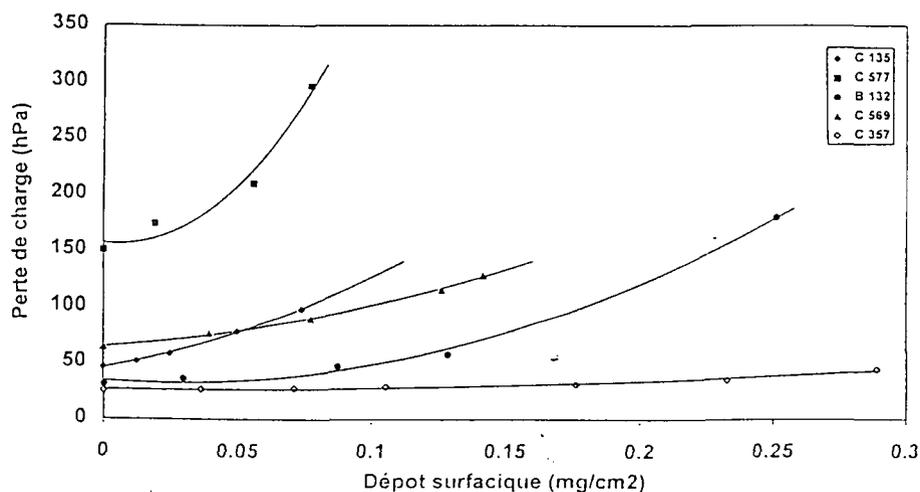
Les résultats obtenus (figure 1) montrent que pour une même vitesse de filtration, la perte de charge peut varier d'un facteur 5 selon le type de filtre utilisé.



Plusieurs facteurs influencent ces résultats, notamment :

- ◆ le lot de fabrication ; des essais effectués sur plusieurs lots ont mis en évidence une dispersion des résultats pouvant atteindre 25 % pour un même type de filtre,
- ◆ le taux d'humidité de l'air prélevé ; ainsi, bien qu'hydrofugé, la perte de charge du filtre C-569 augmente de 50 % lorsque le taux d'humidité relative de l'air passe de 60 à 90 %. Parmi les filtres testés, seul le filtre C-357 constitué de fibres de verre pures conserve une perte de charge constante quelle que soit la teneur en eau de l'air prélevé,
- ◆ le colmatage du filtre ; au fur et à mesure de son colmatage la perte de charge du filtre augmente (figure 2). Cette augmentation est plus faible pour le filtre C-357 que pour les filtres comportant de la cellulose. L'essai a été effectué avec une vitesse de filtration de 1 m.s^{-1} .

Figure 2 - Perte de charge des filtres en fonction du colmatage pour une vitesse de 1 m/s



3.2. Rendement de collection des filtres vierges [2]

Le rendement de collection est mesuré, selon les recommandations de la norme AFNOR NF X44-011, avec des aérosols secs de sel de sodium de fluorescéine (uranine) de diamètre médian massique égal à $0,15 \mu\text{m}$.

Les essais ont été effectués sur des filtres vierges avec des temps de prélèvement courts de façon à éviter l'influence du colmatage du filtre sur le rendement de collection. L'aérosol est caractérisé en amont et en aval du filtre testé au moyen d'un prélèvement isocinétique, les particules étant collectées sur des filtres de très haute efficacité.

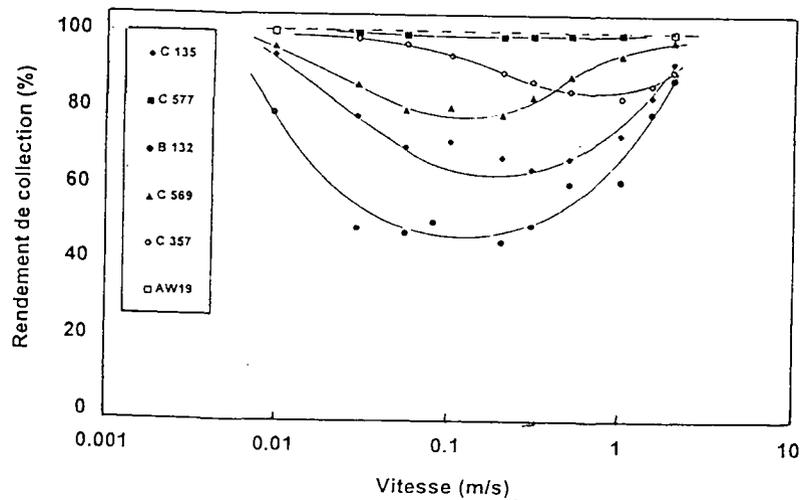
Le rendement de collection R_c est obtenu par la relation suivante :

$$R_c(\%) = 100 \left(1 - \frac{1}{CE} \right)$$

CE étant le coefficient d'épuration du filtre qui est égal au rapport entre la concentration de l'aérosol en amont du filtre à sa valeur en aval.

Les résultats obtenus (figure 3) montrent une grande disparité selon le filtre testé. Les valeurs minimales de rendement, qui s'échelonnent de 46 à 99 %, sont obtenues pour des vitesses de filtration comprises entre 0,1 et 0,2 $m.s^{-1}$ pour les filtres contenant de la cellulose. Le filtre C-357, constitué uniquement de fibres de verre, présente un rendement minimum égal à 84 % pour 1 $m.s^{-1}$.

Figure 3 - Rendement de collection des filtres en fonction de la vitesse de filtration

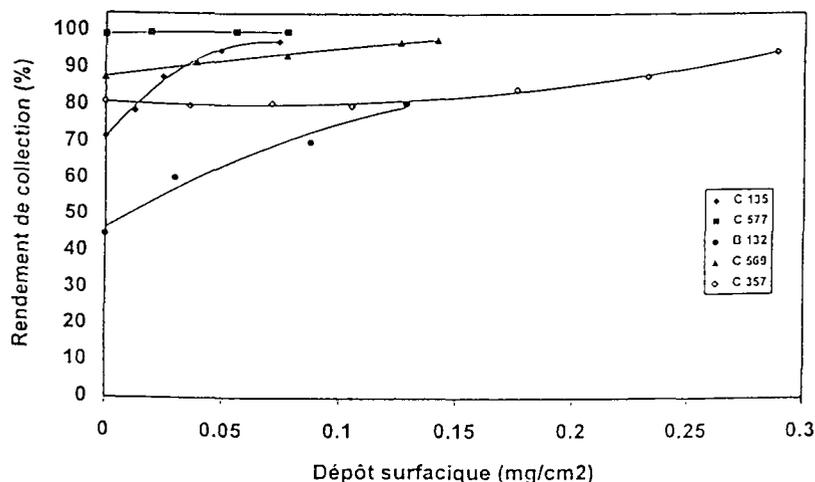


3.3. Influence du colmatage sur le rendement de collection

Cet essai est effectué dans les mêmes conditions que l'essai précédent avec une vitesse de filtration de 1 $m.s^{-1}$.

On observe une augmentation rapide du rendement de collection des filtres au fur et à mesure de leur colmatage (figure 4). Dans les conditions habituelles de prélèvement, un dépôt surfacique de 0,1 $mg.cm^{-2}$ correspond à un prélèvement de 24 heures en zone contrôlée ou de 2,5 heures dans l'environnement.

Figure 4 - Rendement de collection des filtres en fonction du colmatage pour une vitesse de filtration de 1m/s



4. INFLUENCE DE LA VITESSE DE PRELEVEMENT SUR LA MESURE DE LA RADIOACTIVITE ALPHA

La dernière partie de ce travail a consisté à mesurer l'influence de la vitesse de prélèvement sur le rendement de mesure des émetteurs α . En effet, celui-ci est influencé par la profondeur des sites de piégeage des particules dans le média.

Dans un premier temps seuls les filtres C-357 et C-135, qui sont les plus couramment utilisés en France, ont été testés. Les vitesses de filtration choisies - 0,5 ; 1,2 et 2 $m.s^{-1}$ - couvrent la gamme généralement utilisée en radioprotection.

Les essais ont été effectués sur le banc ICARE [3] avec des aérosols de diamètre médian en masse égal à 0,4 μm marqués avec du plutonium 239. Ces aérosols sont obtenus à l'aide d'un générateur ultrasonique, l'écart-type géométrique de la population est de 1,4. Une seconde série de filtres a été réalisée dans les mêmes conditions avec des aérosols marqués avec du césium 137. Le rayonnement γ de 662 keV du césium 137 n'étant pas sensiblement atténué dans l'épaisseur du média, la comparaison de l'activité prélevée sur ces filtres, mesurée par spectrométrie γ , avec l'activité générée dans le banc nous a permis de déterminer leur rendement de collection dans les conditions de l'essai. Les mesures ont montré que ce rendement est supérieur à 99,99 % pour l'ensemble des conditions d'essais ; à l'exception du prélèvement effectué avec une vitesse de 0,5 $m.s^{-1}$ sur le filtre C-135 pour lequel il est de 87 %.

Les résultats de mesure (tableau 3) sont exprimés par le coefficient de corrélation K_α entre le rendement de mesure α global obtenu avec le filtre étudié et celui des sources étalons solides.

On observe une influence de la vitesse de filtration sur le rendement de mesure particulièrement importante pour les filtres C-135.

Vitesse de filtration de l'aérosol (m.s ⁻¹)	Filtre fibre de verre (C-357)		Filtre cellulose (C-135)	
	Prélèvement 1 h	Prélèvement 3 h	Prélèvement 1 h	Prélèvement 3 h
0,5	0,80	0,81	0,31	0,30
1,2	0,89	0,91	0,50	0,51
2	1	1	0,61	0,67

Tableau 3 - Variation du coefficient de corrélation alpha global en fonction de la vitesse de prélèvement

5. CONCLUSION

Le choix d'un filtre de prélèvement doit s'effectuer en fonction des caractéristiques de celui-ci en ce qui concerne le prélèvement et la mesure directe de la radioactivité. Par ailleurs, si une mesure physico-chimique est requise il convient d'être attentif à la composition des fibres. En effet, la présence de fibres de verre gêne le processus de minéralisation. De plus la présence de potassium 40 dans le verre augmente le bruit de fond β des filtres qui en comportent au détriment de la limite de détection.

Les résultats de cette étude ont mis en évidence les difficultés rencontrées pour connaître le rendement de mesure vrai de l'activité des aérosols prélevés sur un filtre fibreux. La suite de ce travail portera sur une étude systématique du coefficient de corrélation en fonction de différentes grandeurs d'influence telles que la nature du filtre ou la vitesse de filtration.

6. BIBLIOGRAPHIE

- [1] Décret n° 86-1103 du 2 octobre 1986 relatif à la protection des travailleurs contre les dangers des rayonnement ionisants. Journal officiel du 12 octobre 1986.
- [2] J. CHARUAU, P. LETOURNEAU
"Choix des filtres de prélèvement d'aérosols. Performances des filtres sélectionnés par le CEA"
Document de travail pour le sous-groupe Air-Aérosols du BNEN. Communication personnelle.
- [3] J. CHARUAU, L. GRIVAUD, M. LE BRETON
"Standard test bench for calibrating instruments used to measure natural or artificial radioactive airborne particulates".
8th Montreal IRPA conference, May 17 to 22, 1992.



Aérocinésis

Tél. 01.69.33.24.70

Fax 01.69.33.24.72

TSI

AEROMETRICS

GRANULOMETRIE DE L'AEROSOL ULTRAFIN

Fort de son expérience dans le domaine de l'instrumentation aérosols, TSI propose deux systèmes permettant d'obtenir la granulométrie de particules submicroniques **en temps réel**.

Le système SMPS Scanning Mobility Particle Sizer, modèle TSI 3934

Ce système comprenant un **Analyseur Différentiel de Mobilité Electrique** couplé à un **Compteur de Noyaux de Condensation** fournit le spectre granulométrique d'un aérosol solide ou liquide compris entre **5nm et 1µm**. La sélection en tailles d'un aérosol polydispersé est ici réalisée par **classification électrostatique**, et la détection est obtenue par la mesure de la lumière diffusée par les particules après grossissement de celles-ci par condensation de vapeur sur leur surface.

L'information taille (5nm-1µm), concentration (**1-10⁶ part/cm³**) est alors envoyée vers un micro-ordinateur qui vous restitue la distribution en dimension.

Le système DPS Diffusion Particle Sizer, modèle TSI 3931

Le DPS comprenant une **Batterie de Diffusion** et un **Compteur de Noyaux de Condensation** permet l'obtention de la granulométrie d'un aérosol compris entre **3nm et 0,2µm**. Ce dispositif met à profit le phénomène de dépôt des particules ultrafines à la surface de grilles sous l'effet du mouvement brownien (mouvement aléatoire des particules du fait de leur collision avec les molécules du gaz). Après détection des particules en amont et en aval de la Batterie de Diffusion par le CNC (10⁶ part.cm³), la déconvolution des données est réalisé par un logiciel fonctionnant sous Windows.

GRANULOMETRIE DE L'AEROSOL SUPERMICRONIQUE

Le système APS Aerodynamic Particle Sizer, modèle TSI 3320

TSI propose avec le modèle 3320 la **nouvelle génération** des **granulomètres** de type APS. En effet, cet appareil, plus petit, plus maniable, ayant une meilleure résolution présente **en temps réel** une mesure combinée du **diamètre aérodynamique** (par mesure du temps de vol) et de l'intensité de lumière diffusée par les particules dans le domaine **0,5µm à 20µm**. Un écran sur la face avant de l'appareil permet de contrôler rapidement les paramètres de fonctionnement et de visualiser les premiers spectres granulométriques. Un logiciel (Windows) permet d'acquérir et de sauvegarder les données sur une longue période.

Parc Club Orsay Université - 29, rue Jean Rostand - F. 91893 ORSAY cedex

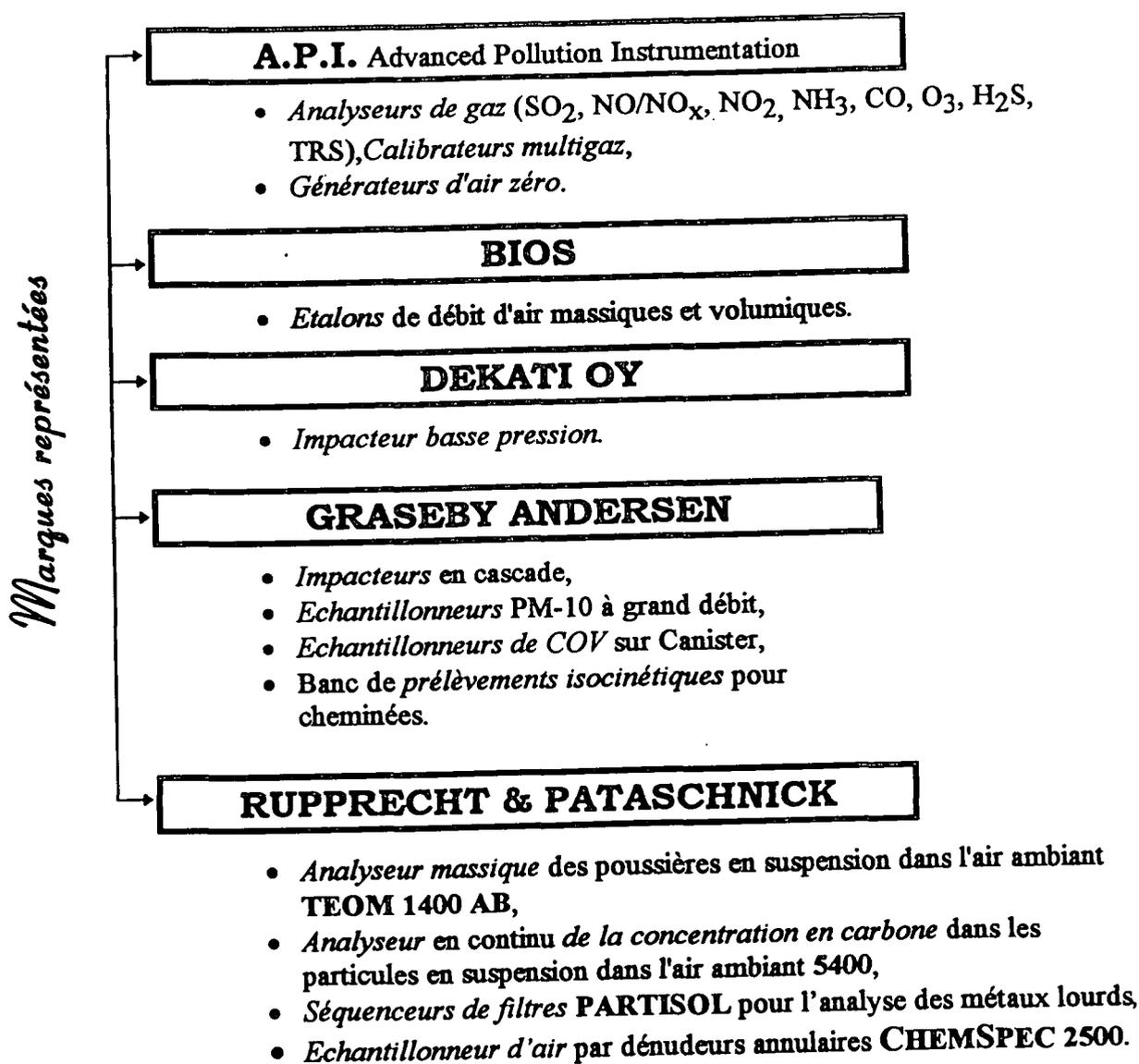
S.A.R.L. au capital de 150 000 F - R.C.S. Corbeil B 393 817 267 - SIRET 393 817 267 00015 - Code APE 333Z - N° Intracommunautaire FR 58393817267
Siège social : Aérocinésis - Bât Apis Technology - BP 537 - 10, avenue du Québec - 91946 COURTABŒUF cedex

ECOMESURE

Etudes Contrôle Mesure

ECOMESURE propose une solution technique aux problèmes variés de métrologie des polluants gazeux ou particulaires à toute concentration, de la salle blanche jusqu'aux rejets en cheminée.

ECOMESURE dispose de techniciens possédant de nombreuses années d'expériences dans le domaine de l'Instrumentation, et importe des analyseurs de marques de réputation internationale.



Depuis 1979, INSTRUMAT s'impose dans les domaines des Mesures Electro-Optiques et Physico-Chimiques.

Au service de la recherche et de l'Industrie dans le secteur très disputé des Technologies Avancées, INSTRUMAT, en tant que distributeur indépendant, occupe une position reconnue et appréciée par une nombreuse clientèle.

INSTRUMAT est constitué de 5 départements au sein desquels une équipe d'Ingénieurs assure la promotion, la vente, l'assistance à l'utilisation et à la maintenance des appareils de mesures et d'analyses les plus récents.

Le Département Analyse de Surface fournit des équipements pour la caractérisation, la visualisation et l'analyse tridimensionnelle des surfaces et des microsursaces. Son offre s'appuie sur des technologies telles que : la Microscopie à Champ Proche, la Microscopie Electronique Environnementale, l'Interférométrie Optique, l'Ellipsométrie, la Nanoindentation et l'ESCA.

Le Département Electro-Optique propose aux industriels et utilisateurs de l'optique et de la fibre optique des matériels haut de gamme, tels que des appareils de caractérisation et de l'outillage spécialisé, utilisés notamment pour le développement des réseaux ou capteurs à fibre optique, le traitement du signal optique et électronique, et la qualification optique.

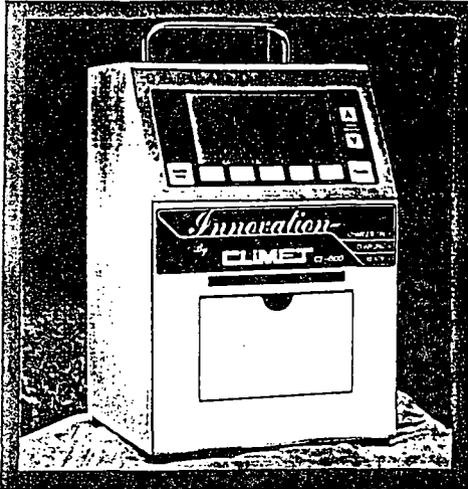
Le Département Mesure Physico-Chimique est spécialisé dans le contrôle et la caractérisation des matériaux : micro-contamination particulaire, analyse granulométrique, propriétés magnétiques des matériaux. Son activité s'étend aux laboratoires de recherche, aux industries et aux services de contrôle qualité dans les domaines de la micro-électronique, de l'aéronautique, de l'industrie pharmaceutique, de l'agro-alimentaire, etc.

Le Département Mesure de Rayonnement et Colorimétrie commercialise du matériel de photométrie, de spectroradiométrie et spectrocolorimétrie destiné à l'analyse des rayonnements U.V., visible, infrarouge, à la caractérisation quantitative et qualitative de la couleur et à la caractérisation de la transmission ou réflexion de matériaux.

Par le biais du **Département Technique et du Service Après-Ventes**, INSTRUMAT s'est dotée de structures visant à instaurer des relations étroites avec ses clients et mettre à leur disposition de solides compétences. Ses prestations reposent sur une équipe d'ingénieurs et de techniciens régulièrement formés chez les constructeurs, en vue d'assurer la maintenance et la gestion de parc d'appareils, leurs contrôles et étalonnages, ainsi que leurs conformités aux spécifications.



LA MAÎTRISE DE VOS ZONES À CONTAMINATION CONTROLÉE



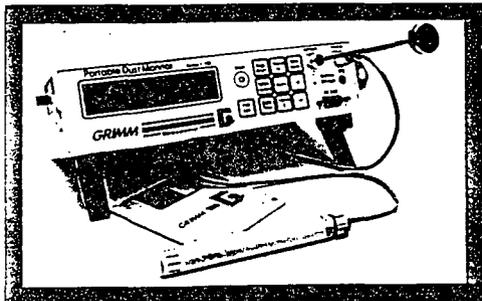
COMPTEUR DE PARTICULES CLIMET
CI500: compact, autonome et performant.

- Portable, 1 pied³ sur batterie.
- Imprimante et sonde température/humidité intégrées.
- 6 tailles de particules: 0.3, 0.5, 1, 5, 10 et 15 microns.
- Calculs selon la FS 209E.

I.C.S. vous propose également:

- Une gamme complète de compteurs aériens et liquides.
- Générateur et photomètre pour test D.O.P. (filtres HEPA).
- Collecteur de germes AIRTEST.

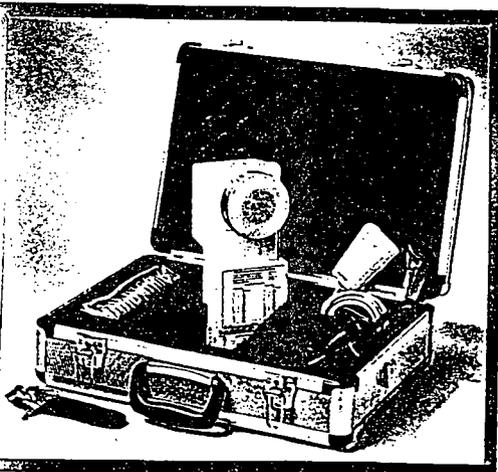
MESURE INSTANTANÉE DE LA CONCENTRATION ET DE LA GRANULOMÉTRIE DES POUSSIÈRES



Compteurs de poussières pour l'Hygiène Industrielle et l'Environnement:

- Portable ou à poste fixe.
- Poussières inhalables, thoraciques, alvéolaires et PM10.
- 8 canaux de tailles de 0,7 à 15 microns en particules par litre et en concentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$).
- Etude de poste de travail; mesures en environnement; efficacité de filtres; ventilation; cartographie de sites ...
- Exploitation des résultats sur logiciel couleur.

LA MAÎTRISE DE LA CONTAMINATION BACTÉRIOLOGIQUE DE L'AIR



Nouveau collecteur de germes AIRTEST:

- Conforme aux nouvelles réglementations européennes.
- Portable, batterie de 5 heures d'autonomie.
- Sensible, reproductible, ergonomique.

I.C.S. vous propose également:

- Compteurs de particules CLIMET.
- Générateur et photomètre ATI pour test D.O.P.
- Compteurs de poussières GRIMM (hygiène industrielle).

TEST D'EFFICACITÉ DES MASQUES RESPIRATOIRES



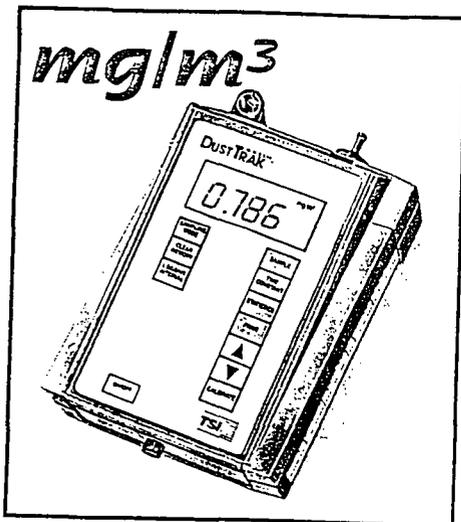
PORTACOUNT PLUS - FIT

- ⇒ Mesure de l'efficacité du masque directement sur l'opérateur : FIT Test.
- ⇒ Utilisation simple et rapide, ne nécessitant aucune génération d'aérosol en amont (l'air ambiant sert de référence)
- ⇒ Nombre et durée des exercices programmables
- ⇒ Exploitation des données sur logiciel



Inchcape Testing Services. I.C.S.

MESURE INSTANTANÉE DE LA CONCENTRATION EN POUSSIÈRES



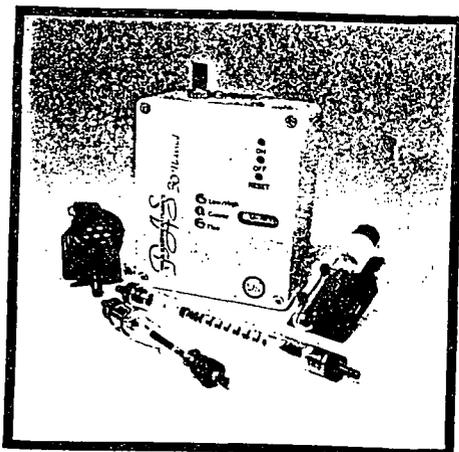
COMPTEUR DE POUSSIÈRES DUSTTRAK

- ⇒ Mesure instantanée (toutes les secondes) et en continu de la concentration en poussières
- ⇒ Cartographie rapide du site à étudier
- ⇒ Etude de poste de travail
- ⇒ Exploitation des données sur logiciel



Inchcape Testing Services. I.C.S.

PRÉLEVEURS D'AÉROSOLS ET GAZ



NOUVEAUX

- ⇒ Large gamme de préleveurs individuels ou fixes.
- ⇒ Nombreux accessoires disponibles (cyclones, filtres, ...).
- ⇒ Ambiance de travail, Environnement, ...



ITS / ICS
Pascal BERTIN
91, rue du Général de Gaulle
B.P. 1
27109 LE VAUDREUIL CEDEX
Tél. 02 32 09 36 26
Fax 02 32 09 36 22

LISTE ALPHABETIQUE DES AUTEURS

ALBIOL T.	57 - 62
ATTOUI M.	3 - 16; 23 - 28; 31 - 36; 79 - 85; 117 - 122
BLONDEL D.	87 - 94
BORRA J.P.	39 - 44
BOULAUD D.	63 - 78; 135 - 139; 161 - 166
CAMELOT D.	39 - 44
CLAIN M.P.	29 - 37
CHASSAING J.F.	95 - 102
DENIS J.	147 - 159
DERANGERE D.	117 - 122
DROAL C.	109
EHRLER S.	103 - 108
FABRIES J.F.	147 - 159
FAUVEL S.	167 - 174
FEUILLEBOIS F.	51 - 56
FITZGERALD B.	141 - 146
GABAY D.	23 - 28
GARRY P.	111 - 115
GAUCHET N.	125 - 133
GEHIN E.	79 - 85
GENSDARMES F.	111 - 115
GINESTET A.	103 - 108
GIRAZOLE T.	87 - 94; 125 - 133
GONZALEZ R.	111 - 115
GOUESBET G.	45 - 50; 63 - 71; 87 - 94; 125 - 133
GOUGEON R.	161 - 166
GÖRNER P.	147 - 159
GREHAN G.	45 - 50; 63 - 71; 87 - 94; 125 - 133
GRIVAUD L.	167 - 174
HOPKE P.K.	141 - 146
HOYAU V.	29; 37
HUET C.	135 - 139
JURSKI K.	79 - 85
LAPLANCHE S.	103 - 108
LE BRONEC E.	161 - 166
LE GUERN C.	31 - 36
MALET J.	73 - 78
MANN S.	103 - 108
MARJINISSEN J.C.	39 - 44
MASCLET P.	29; 37
MAZOUÉ S.	23 - 28
MESBAH B.	141 - 146
MICKA V.	147 - 159

MONTASSIER N.	73 - 78; 135 - 139
MOREAU R.	117 - 122
PARAT S.	103 - 108
PARFAIT C.	31 - 36
PERDRIX A.	103 - 108
PIAR G.	79 - 85
PIGEONNEAU F.	51 - 56
POLARET H.	45 - 50
POURPRIX M.	141 - 146; 161 - 166
PUGNET D.	103 - 108
REN K.F.	125 - 133
RENOUX A.	23 - 28; 31 - 36; 73 - 78; 161 - 166
ROBINE E.	117 - 122
SALAZAR J.H.	103 - 108
SCARLETT B.	39 - 44
SCURRAH K.L.	123
STENHOUSE J.I.T.	123
SUAREZ J.	29; 37
THIELEKE R.	17 - 21
TYMEN G.	135 - 139
VALFRE G.	17 - 21
VANDEUVREJ.L.	111 - 115
WROBEL R.	147 - 159
ZOULALIAN A.	57 - 62

LISTE DES PARTICIPANTS

AMMERICH M.
CEA
CE Saclay Bât. 395
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 93 89

BOULAUD D.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 26 74
fax : 01 60 19 30 61

COTTE H.
P. S. A.
18 rue des Fauvettes
92250 LA GARENNE
COLOMBES
tél : 01 47 69 22 67
fax : 01 47 69 23 18

ATTOUI M.
L P A T C
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 56
fax : 01 45 17 13 61

BULTYNCK H.
LESP
INSA de Rouen URA
CNRS 230, CORIA BP 08
76131 MONT St AIGNAN
tél : 02 35 14 64 60

COUTY B.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

BEKE
INSTRUMAT
4 avenue des Andes
91943 LES ULIS Cedex
tél : 01 69 28 27 34
fax : 01 69 28 86 02

CETIER Ph.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 60 00

DA COSTA A.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

BERTIN P.
I. C. S.
91 rue du Gal de Gaulle
27109 Le Vaudreuil
tél : 02 32 09 36 26
fax : 02 32 09 36 28

CHAMBRE
ECOMESURE B.P. 13
91640 BRIIS SOUS
FORGES
tél : 01 64 51 81 59

DAVID H.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

BILLAT
INSTRUMAT
4 avenue des Andes
91943 LES ULIS Cedex
tél : 01 69 28 27 34
fax : 01 69 28 86 02

CHNI C.
INERIS
Parc Technologique
ALATA B.P. n°2
60550 VERNEUIL EN
HALATTE
tél : 03 44 55 66 77
fax : 03 44 56 66 99

DEL FABBRO L.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

BLONDEL D.
LESP
INSA de Rouen URA
CNRS 230, CORIA BP 08
76130 MONT St AIGNAN
tél : 02 35 14 64 60

CHOUARD J.C.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 23 59

DELPONT B.
ECOMESURE
B.P. N°13
91640 BRIIS SOUS FORGES
tél : 01 64 90 55 55
fax : 01 64 90 55 66

BORRA J.P.
Particle Techn. Group
Université de DELFT
P.O. Box 5045
2600 GA DELFT
fax : 31 15 278 44 52

CORNET P.
CEA/DRN/DMT/SEMT
Laboratoire des
Transferts Thermiques
et Mécanique des
Fluides
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 60 00

DESGRAZ J.L.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

DONATI
Lab. Central de la
Préfecture de Police
39 bis rue de Dantzig
75015 PARIS
tél : 01 55 76 20 00

FEUILLEBOIS F.
URA CNRS 857
Laboratoire PMMH
10 rue Vauquelin
75231 PARIS CEDEX 05
tél : 02 40 79 45 53

GINESTET A.
CETIAT
27/29 Boulevard du 11
Novembre 1918
69100 VILLEURBANNE
tél : 04 72 44 49 84

DROAL C.
FRANCE AIR B.P. 406
rue des Baronnières
01704 BEYNOST
tél : 04 72 01 31 79
fax : 04 78 55 58 55

FONTAINE Ch.
GRANDE PAROISSE SA
Rue de l'Industrie
BP 204
76121 LE GRAND
QUEVILLY Cedex
tél : 02 35 67 40 99

GÖRNER P.
INSTITUT NATIONAL DE
RECHERCHE ET DE
SECURITE B.P.27
Av. de Bourgogne
54501 VANDOEUVRE
tél : 03 83 50 20 00

DUCRET D.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 60 00

GABAY
RATP LAC 67
54 Quai de la Rapée
75599 PARIS
tél : 01 44 68 32 07

GOUGEON R.
AEROCINESIS
29 rue Jean Rostand
91893 ORSAY Cedex
tél : 01 69 33 24 70
fax : 01 69 33 24 72

FABRIES J.F.
INSTITUT NATIONAL DE
RECHERCHE ET DE
SECURITE B.P.27
Av. de Bourgogne
54501 VANDOEUVRE
tél : 03 83 50 20 29

GARIVAIT S.
ANALUSIS
28 rue Saint Dominique
75007 PARIS
tél : 01 45 55 97 32
fax : 01 45 55 98 65

GRASSIN D.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 60 00

FALC'HUN A.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

GAUCHET N.
LESP
INSA de ROUEN URA
CNRS 230, CORIA BP 08
76131 MONT St AIGNAN
tél : 02 35 14 64 60

GREHAN G.
LESP
INSA de ROUEN URA
CNRS 230, CORIA BP 08
76131 MONT St AIGNAN
tél : 02 35 52 83 87

FAURE C.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

GEHIN
IUT LETIEF
Av. du Gal de Gaulle
94010 CRETEIL Cedex
tél : 01 45 17 10 63

GRIVAUD L.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 60 00

FAUVEL S.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 60 00

GENSDARMES F.
L P A T C
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 56
fax : 01 45 17 13 61

HERVY F.
URA CNRS 857
Laboratoire PMMH
10 rue Vauquelin
75231 PARIS CEDEX 05
tél : 02 40 79 45 53

HOYAU V.
LESAM
ESIGEC Université de
Savoie
73376 Le Bourget du Lac

HUET C.
L A R A H
U.B.O. de Bretagne
Occidentale B.P.809
6, Av. V. Le Gorgeu
29285 BREST CEDEX
tél : 02 98 01 67 23
fax : 02 98 01 67 23

JAILLER M.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

JURSKI K.
LETIEF URA 508 IUT
UNIVERSITE PARIS XII
Av. du Gal de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 10 63

KEROUANTON D.
L A R A H
U.B.O. de Bretagne
Occidentale B.P.809
6, Av. V. Le Gorgeu
29285 BREST CEDEX
tél : 02 98 01 67 23

LABORDE J.C.
CEA/IPSN/DPEI/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 60 00

LADRECH F.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

LE BIHAN O.
L A R A H
U.B.O. de Bretagne
Occidentale B.P.809
6, Av. V. Le Gorgeu
29285 BREST CEDEX
tél : 02 98 01 67 23

LE BRONEC E.
L P A T C
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 60
fax : 01 45 17 13 61

LE GUERN C.
RATP
/SEC/DZE/EQA
13 rue Jules Vallès
75011 PARIS
tél : 01 48 04 18 55
fax : 01 48 04 16 26

LEMAITRE N.
VALEOB.P. 13
8 rue Louis Lormand
78321 LA VERRIERE
tél : 01 34 61 57 00
fax : 01 30 50 28 98

LOYER H.
MSIS
1 route de la Noue
91196 GIF SUR YVETTE
tél : 01 69 18 42 38
fax : 01 69 18 43 15

MAHE F.
CNRS
1 C ave de la Recherche
Scientifique
45071 ORLEAN cedex 2
tél : 02 38 51 54 62
fax : 02 38 69 60 04

MALET J.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 44 81
fax : 01 69 08 56 50

MARTIN S.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

MATHE F.
Ecole des Mines de
Douai
941 rue Bourseul B.P.
838
59508 DOUAI
tél : 03 27 93 22 81
fax : 03 27 93 23 31

MAZOUÉ S.
RATP LAC 67
54 Quai de la Rapée
75599 PARIS
tél : 01 44 68 24 43
fax : 01 44 68 45 26

MESBAH B.
Clarkson University
POTSDAM NY 13699
5810 US

MICHELI F.
ONERA
29 Av. de la Division
Leclerc BP 27
92322 CHATILLON
tél : 01 46 73 40 40

MICHELSSEN N.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 62 37

MOCHO V.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 60 00

MOREAU R.
UNIVERSITE PARIS XII
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 70 56

PAILLERE J.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 60 00

PARFAIT C.
RATP/DZE/EQA/SEC
13 rue Jules Vallès
75011 PARIS
tél : 01 48 04 18 55

PELLETIER S.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

PICARD H.
RATP LAC 67
54 Quai de la Rapée
75599 PARIS
tél : 01 44 68 32 07

PIGEONNEAU F.
LPMH
URA CNRS 857
10 rue Vauquelin
75231 Paris cedex 05
tél : 02 40 79 45 53

PILOT G.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 60 00

POLARET H.
LESP
INSA de ROUEN URA
CNRS 230, CORIA BP 08
76131 MONT St AIGNAN
tél : 02 35 52 83 87

POURPRIX M.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 60 00

PREVOST C.
CEA/IPSN/DPEI/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
69 08 60 00

RABU B.
CEA Grenoble DTP/SECC
17 rue des Martyrs
38054 GRENOBLE
tél : 04 76 88 37 22
fax : 04 76 88 51 51

RAMZEYER P.
CULTRONICS FRANCE
29 avenue G. Pompidou
95580 MARGENCY
tél : 01 34 27 20 38
fax : 01 39 59 81 88

RENOUX A.
L. P. A. T. C.
U. P. XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL Cedex
tél : 01 45 17 13 62
fax : 01 45 17 13 61

ROBINE E.
CSTB
84 ave J. Jaurès B.P. 02
77421 MARNE LA
VALLÉE
tél : 01 64 68 85 04
fax : 01 64 68 84 73

ROGER F.
L P A T C
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 56
fax : 01 45 17 13 61

SENECHAL H.
INSERM
28 rue du Dr. Roux
75724 PARIS Cedex 15
tél : 01 45 68 82 44
fax : 01 40 61 33 83

SIEGLER I.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

SUAREZ J.
Université de Savoie
ESIGEC
73376 Le Bourget du Lac
tél : 04 79 75 88 58
fax : 04 79 75 88 90

TARLAY V.
St. MAURICE AUBERT
8 rue Jean Leblond
95130 FRANCONVILLE
tél : 01 30 65 36 55
fax : 01 39 79 14 93

TEXTE J.C.
LABORATOIRE NAT.
D'ESSAIS
1 rue G. Boissier
75724 PARIS CEDEX 15
tél : 01 40 43 37 00

THOUVENIN P.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

TIHAY O.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

TIRET C.
CENTRE D'ETUDE DU
BOUCHET Sce PHD
B.P. N° 3
91710 VERT LE PETIT
tél : 01 69 90 83 45

THIELEKE R.
AIRFOBEP
Route de la Vierge
13500 MARTIGUES
tél : 04 42 13 01 20

TYMEN G.
L A R A H
U.B.O. de Bretagne
Occidentale B.P.809
6, Av. V. Le Gorgeu
29285 BREST CEDEX
tél : 02 98 01 67 23
fax : 02 98 01 67 23

VENDEUVRE J.L.
CTSCCV
7 ave du Gal de Gaulle
94700 MAISONS ALFORT
tél : 01 43 68 57 85
fax : 01 43 76 07 20

WITSCHGER O.
L P A T C
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 56
fax : 01 45 17 13 61

ZOULALIAN A.
ESSTIB LERMAB
Université de Nancy
B. P. N° 239
54506 Vandoeuvre Les
Nancy
tél : 03 83 91 20 57
fax : 03 83 91 21 02

European Aerosol Assembly (EAA)
Gesellschaft für Aerosolforschung (GAeF)
(Association for Aerosol Research)

EAC '97



European Aerosol Conference
15. – 19. September 1997

Secretariat and conference address

European Aerosol Conference 1997
Prof. Dr. W. Dannecker
Institut für Anorganische und Angewandte Chemie
Universität Hamburg
Martin-Luther-King-Platz 6
D-20146 Hamburg
Germany
Tel.: +49-40-4123 3123
Fax: +49-40-4123 2893
email: eac97@chemie.uni-hamburg.de

Registration and fees

Please register by returning the attached coupon.

Fee before July 1st 1997:

EAA members	400 DM
non-member	500 DM
students	200 DM

Fee after July 1st

EAA members	500 DM
non-member	600 DM
students	250 DM

Conference dinner 30,- DM* per person
*no charge for students

Payments can be made by creditcards, check,
or by remittance to the following account: GAeF
Account: 04000840
Bank: Bespa Graben-Neudorf
BLZ: 66051326

Announcement,
Call for Papers, and
Registration Form



Universität Hamburg
Germany

Call for Papers

You are invited to present your work in one of the scientific topics of the conference.

Submit a camera ready *two page* abstract to the scientific program chair

Prof. Dr. Andreas Schmidt-Ott
University of Duisburg
Inst. of Combustion and Gas Dynamics
D - 47048 Duisburg
Germany

to arrive before 15 March, 1997

Indicate your preference for an oral or poster presentation in an accompanying letter

The abstracts will be reviewed according to scientific contents, suitability for the conference proceedings and form.

Please bring your camera ready 2-page abstract into an acceptable form for publication in the Journal of Aerosol Science conference proceedings right away. See the sample abstract included.

Changes or corrections will not be possible after March 15th!

The proceedings will be available at the conference. In order to enable review and printing until the conference date:

Abstracts arriving after 15 March or 1-page abstracts can not be accepted!

Dates and Deadlines

2-page extended abstract final form March 15th 1997
Notification of authors Begin of June 1997
Early registration ends July 1st 1997
Conference 15th - 19th Sept. 1997

Conference Language

The conference language will be English.

Location

The conference will be held in the buildings of the Department of Geowissenschaften and the Department of Chemistry, of the University of Hamburg both located close to the centre of Hamburg.

Topics

Fundamental aerosol physics
Aerosol characterisation
Chemical properties and analysis
Instrumentation
Industrial applications
Aerosol emissions
Health aspects of aerosols
Gas-particle interaction
Aerosol modelling
Particle production
Atmospheric aerosols
Nanoparticles

Accommodation

Accommodation will be organised by the local tourist information bureau. See the card enclosed and mail it as soon as possible and before July 1st 1997, to profit from this service.

Organising committee

General conference Co-Chairs:

Prof. Dr. Walter Dannecker, IAAC, Univ. Hamburg

Prof. Dr. Hartmut Graßl, WMO-WCRP, Geneva

Scientific Committee Chair

Prof. Dr. Andreas Schmidt-Ott, IVG, Univ. Duisburg

Organising Committee

Dr. Gunthard Metzigg, FZK, Karlsruhe

Dr. Michael Schulz, IAAC, Univ. Hamburg

Dr. Michael Steiger, IAAC, Univ. Hamburg

Katrin Brüggemann, IAAC, Univ. Hamburg