



A S F E R A

ASSOCIATION FRANÇAISE d'ETUDES et de RECHERCHES sur les AEROSOLS
LPATC - UFR Sciences, Université Paris XII, 94010 Créteil Cédex
Tél : 01 45 17 13 62 Fax : 01 45 17 13 61

ACTES du 13^e CONGRES FRANÇAIS
sur les AEROSOLS CFA 97
Paris, 2 - 3 décembre 1997

13e CONGRES FRANÇAIS SUR LES AEROSOLS

2 - 3 décembre 1997

PARIS

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

Page :

- Introduction par le Pr. A. RENOUX, <i>Président de l'ASFERA.</i>	7
- Conférence plénière par le Pr. E. MESZAROS <i>Membre de l'Académie des Sciences de HONGRIE.</i>	9
- La distribution granulométrique des substances inorganiques et organiques dans l'aérosol atmosphérique.	
LES AEROSOLS DANS L'ENVIRONNEMENT	
- Etude physico-chimique de l'aérosol atmosphérique à la station cotière de Porspoder (France). O. LE BIHAN ⁽¹⁾ , J.Y. CABON ⁽¹⁾⁽²⁾ , G. TYMEN ⁽¹⁾ (1) LRAAH; Brest(2) LCA U.M.R. 6521 UBO Brest.	11
- Impact des carburants sur les polluants d'un autobus. C. LE GUERN ⁽¹⁾ , A. RENOUX ⁽¹⁾ , M. ATTOUI ⁽¹⁾ , C. PARFAIT ⁽²⁾ (1) LPATC PARIS XII.; (2) RATP, D2E/EQA PARIS.	19
- Dissolution du cesium et du strontium contenus dans des aérosols radioactifs accidentels - devenir dans l'environnement. C. CAMARASA _ CLARET ⁽¹⁾ , F. PERSIN ⁽²⁾ , J. REAL ⁽¹⁾ (1)IPSN/DPRE/LRE CE/Cadarache; (2) CNRS LMPM Montpellier.	25
- Etude par sonde nucléaire de poussières atmosphériques. H. GUEGAN CENBG Gradignan.	31
- Elaboration et validation d'un système de traitement d'air pour les espaces souterrains du métro parisien. S. MAZOUÉ ⁽¹⁾⁽²⁾ , D. GABAY ⁽¹⁾ , A. RENOUX ⁽²⁾ , M. ATTOUI ⁽²⁾ (1) RATP, LAC A67 Paris; (2) LPATC PARIS XII.	37
- Etalonnage d'un "T E O M", mesure en masse de l'aérosol du métropolitain parisien. M.B. ATTOUI ⁽¹⁾ , C. PARFAIT ⁽¹⁾⁽²⁾ , A. RENOUX ⁽¹⁾ , G. TYMEN ⁽³⁾ (1) LPATC PARIS XII; (2) RATP, D2E/EQA PARIS; (3) LRAAH; Université de Brest.	43
PHYSIQUE DES AEROSOLS ET APPLICATIONS	
- Etude et analyse des dépôts d'aérosols dans l'enceinte Piteas par sédimentation thermo et diffusiphorèse. V. SALDO ⁽¹⁾ , E. VERLOO ⁽¹⁾ , A. ZOULALIAN ⁽²⁾ (1) IPSN/DRS/SREAS/LEA Cadarache; (2) LERMAB - ENSTIB Université Nancy .	49
- Etude expérimentale de l'écoulement critique de gouttelettes d'eau générées par condensation hétérogène en cours de détente. K.JURSKI, E. GEHIN LETIEF, Université Paris XII.	59
- Dépôt des aérosols nanométriques dans une canalisation cylindrique en écoulement transitoire - turbulent. J. MALET ⁽¹⁾⁽²⁾ , N. MICHELSEN ⁽¹⁾ , D. BOULAUD ⁽¹⁾ , A. RENOUX ⁽²⁾ (1) IPSN/DPEA/SERAC CE Saclay; (2) LPATC Université Paris XII.	65
- Evolution du spectre de gouttes en écoulement turbulent homogène et isotrope. F. PIGEONNEAU, F. FEUILLEBOIS PMMH ESPCI Paris.	71
- Diffusion d'un faisceau laser par une fibre cylindrique infinie : résultats numériques. L. MESS, G. GOUESBET, G. GREHAN LESP /CORIA INSA de Rouen.	77
- La charge électrique des aérosols radioactifs. F. GENSDARMES ⁽¹⁾⁽²⁾ , D. BOULAUD ⁽¹⁾ , A. RENOUX ⁽²⁾ (1) IPSN/DPEA/SERAC CE Saclay; (2) LPATC Université Paris XII.	83
- Simulation numérique de la collecte des aérosols par un obstacle sphérique. L. DEL FABBRO ⁽¹⁾⁽²⁾ , D. DUCRET ⁽¹⁾ , N. GAUCHET ⁽¹⁾⁽²⁾ , A. RENOUX ⁽²⁾ , J. VENDEL ⁽¹⁾ (1) IPSN/DPEA/SERAC CE Saclay; (2) LPATC Université Paris XII.	91

- Interaction d'un système d'aspersion liquide de type réacteur avec l'atmosphère environnante.
W. PLUMECOCQ, V.D. LAYLY *IPSN/DRS Cadarache.* 101

- **Conférence plénière** par M. R. BOUSCAREN, *Directeur du CITEPA*
Les émissions de polluants particuliers dans l'atmosphère par les activités humaines. 107

BIOAEROSOLS ET FILTRATION

- Effets sur la santé des poussières en suspension dans l'air.
F. GRIMALDI *LTPC et APPA Marseille.* 123

- Elaboration d'une méthodologie d'évaluation d'une aérobiocontamination de surface : Survie d'un aérosol
d'*Enterococcus faecalis* et *Pseudomonas fluorescens* déposé sur une surface inerte.
E. ROBINE⁽¹⁾⁽²⁾, M. ATTOUI⁽³⁾, D. DERANGERE⁽²⁾, R. MOREAU⁽¹⁾ (1) *Microbiologie Appliquée*
Univ. Paris XII, (2) *CSTB Marne la Vallée*, (3) *LPATC Univ. Paris XII.* 129

- Le comptage particulaire Application à la protection du personnel utilisant des enceintes de sécurité microbiologique.
J.C. TEXTE⁽¹⁾, M. DESENFANT⁽¹⁾, M. MONTAMAT⁽¹⁾, M. ATTOUI⁽²⁾, A. RENOUX⁽²⁾ (1) *LNE Paris*
(2) *LPATC Université Paris XII.* 135

-Etude des transferts de contamination par voie aérienne lors d'opérations de nettoyage.
F. GIL⁽¹⁾, P. MULCEY⁽²⁾, P.GARRY⁽³⁾, J.L. VANDEUVRE⁽³⁾ (1) *DESS Science des Aérosols Université Paris XII*; (2)
SEIP/CEA Saclay; (3) *CTSCCV Maisons Alfort.* 145

- Comparaison de l'évolution de la perte de charge d'un filtre à fibres lors de la filtration de particules solides et liquides.
Modélisations.
P. PENICOT⁽¹⁾, D. THOMAS⁽¹⁾, P. CONTAL⁽¹⁾, D. LECLERC⁽¹⁾, J. VENDEL⁽¹⁾
(1) *LSCG - CNRS/Université de Nancy*; (2) *DPEI/SERAC CE Saclay.* 147

-Epuraton de l'air atmosphérique. Nouveau procédé basé sur le champ centrifuge.
P. SAGET *Ecole Centrale Paris.* 155

METROLOGIE DES AEROSOLS

-Méthode simplifiée pour l'évaluation des performances des échantillonneurs individuels de la fraction inhalable.
O. WITSCHGER⁽¹⁾, K. WILLEKE⁽²⁾, S.A. GRINSHPUN⁽²⁾, V. AINZENBERG⁽²⁾, J. SMITH⁽³⁾, P.A. BARON⁽³⁾ (1)
LPMA/IPDN/DPEI/ SERAC CE Saclay; (2) *AREAL University of Cincinnati*; (3) *U.S. Department of Health and*
Human Services Cincinnati. 171

-Etude du comportement de l'échantillonneur IOM en fonction de la vitesse et de la direction du vent extérieur.
F. ROGER⁽¹⁾⁽²⁾, G. LACHAPELLE⁽¹⁾⁽³⁾, J.F. FABRIES⁽¹⁾, P. GÖRNER⁽¹⁾, A. RENOUX⁽²⁾
(1) *INRS Nancy*; (2) *LPATC Université Paris XII*; (3) *Université McGill Québec.* 177

- Intercomparaison de méthodes de mesure de la distribution en taille des produits à vie courte du radon dans différentes
conditions ambiantes.
C. HUET⁽¹⁾, G. TYMEN⁽¹⁾, A. REINEKING⁽²⁾, J. WENDI⁽²⁾, N. MICHIELSEN⁽³⁾, (1) *LRAA UBO de Brest*;
(2) *Université Göttingen (Allemagne)*; (3) *DPEI/SERAC CE Saclay.* 185

- Méthodes de discrimination des composantes naturelles et industrielles de l'exposition au Radon-222 dans le champ
proche de dépôt de résidus d'extraction et de traitement d'uranium.
D. KEROUANTON, M.C. ROBE, Y. BELOT, P. RICHON, A. BENEITO, C. FERRY, D. HARISTOY, V. LABED
LEIRPA IPSN/DPRE/SERGD Fontenay aux Roses. 191

- Influence de la gravité dans les analyseurs de mobilité électrique. Développement d'une méthode permettant de
déterminer la densité et la masse des aérosols.
E. LE BRONEC⁽¹⁾, A. RENOUX⁽¹⁾, D. BOULAUD⁽²⁾, M. POURPRIX⁽²⁾ (1) *LPATC Université Paris XII*;
(2) *LPMA, IPSN CEA Saclay.* 193

- Mesure submicronique de corps cylindrique transparent par réflectimétrie d'arc-en-ciel.
F. CORBIN, G. GREHAN, G. GOUESBET *LESP INSA de Rouen.* 199

- Contrôle de la finesse du Charbon pulvérisé par sonde granulométrique/vélocimétrique "micro-vidéo" dans les centrales thermiques. A. KLEITZ EDF/DER/ESD Chatou.	205
- Mesure en paroi : vitesse et hauteur dans une couche limite. H. BULTYNCK ⁽¹⁾ , P. CETIER ⁽²⁾ , G. GREHAN ⁽¹⁾ , G. GOUESBET ⁽¹⁾ , D. BOULAUD ⁽²⁾ (1) LESP INSA de Rouen; (2) LPMA, IPSN CEA Saclay.	211

EXPOSANTS

■ AEROCINESIS, Parc Club Orsay Université, 29 rue Jean Rostand, 91893 ORSAY Cedex.	219
■ ECOMESURE Etudes, Contrôle, Mesure, B.P. n°13, 91640 BRIIS SOUS FORGES.	221
■ I. C. S./ I.T.S., 91 rue du Général de Gaulle, 27109 LE VAUDREUIL Cedex.	225
■ SCHAEFER TECHNIQUES SARL, 1 rue du Ruisseau Blanc, 91620 NOZAY.	227
■ ANNONCE de la 5 ^e IAC, EDINBURGH, Septembre 1998	231
-Liste alphabétique des auteurs	235
-Liste des participants	237



ASFERA

ASSOCIATION FRANÇAISE d'ETUDES et de RECHERCHES sur les AEROSOLS
LPATC - UFR Sciences, Université Paris XII, 94010 Créteil.

Tél : 01 45171362 Fax : 01 45171361

Le Président

Notre 13ème congrès annuel (CFA 97) s'est donc tenu les 2 et 3 décembre 1997 à l'INA à Paris. Comme chaque année, nous avons eu deux conférenciers pléniérs de très grande qualité : le Professeur MESZAROS, de l'Académie des Sciences de Hongrie et de l'Université de VESZPREM, et Monsieur BOUSCAREN, Directeur du CITEPA.

Pendant ces deux journées, l'assistance a été nombreuse, les discussions vives et intéressantes. Mais des progrès restent encore à faire. Je pense, en particulier, qu'il nous faudrait davantage d'Industriels, non seulement comme auditeurs, mais aussi comme conférenciers même si, cette année, nous avons vu arriver un certain nombre d'entre eux. Et je me réjouis de la participation active de Biologistes et de Pharmaciens.

Ce recueil renferme donc les textes des conférences du CFA 97. On trouvera à la fin les textes présentant les activités de nos Exposants qui donnent un plus certain à notre congrès. La présentation de ce recueil a été réalisée avec beaucoup de talent par Mme Lidia MARTIN à qui j'exprime ma plus vive reconnaissance.

Les dettes de l'ASFERA, dues, je le rappelle, à la déconfiture du GAMS, sont maintenant éteintes. Cela nous a permis de financer totalement (droits d'inscription, frais de voyage et de séjour) la participation d'un jeune Chercheur Français sur les Aérosols à l'International Aerosol Conference, IAC (le Congrès Mondial sur les Aérosols) qui aura lieu du 14 au 18 septembre 1998 à Edinbourg. Le bureau de l'ASFERA a sélectionné Florence ROGER, brillante titulaire du DESS Science des Aérosols, Génie de l'Aérocontamination, et préparant sa Thèse de doctorat chez le Dr. J.F. FABRIES à l'INERIS Nancy.

Le 17 septembre 1997 à Hambourg, au cours de l'«European Aerosol Conference» (EAC 97), j'ai été élu Président, pour 1999 et 2000, de l'European Aerosol Assembly (EAA dont Denis BOULAUD a été élu Secrétaire Général. C'est pour moi un très grand honneur, à l'issue d'une carrière qui, c'est évident, sera maintenant plus courte qu'elle n'a été. Mais cet honneur, je le dois au dynamisme des Membres de l'ASFERA qui, chaque année, participent à notre Congrès CFA.

Denis BOULAUD et moi même, toujours à Hambourg, avons participé au Bureau Directeur de l'IARA, «International Research Aerosol Assembly», où nous représentions l'ASFERA. A ce sujet, j'espère que nous serons nombreux à présenter des communications à l'IAC d'Edinbourg en septembre 1998. On en trouvera l'annonce à la fin de cet ouvrage.

Je tiens à remercier très chaleureusement deux revues qui nous apportent régulièrement leur concours. Le «Journal of Aerosol Science» (merci aux Professeurs KASPER et VINCENT) qui publie les résumés des conférences de notre CFA 96 (J. Aerosol Sci. Vol. 28, n°7, pp. 1357 - 1363, 1997) et «Pollution Atmosphérique» qui a publié l'intégralité de notre programme (Poll. Atm., n°155, pp. 55 - 56, Juillet - Septembre 1997).

Du fait du Congrès Mondial d'Edinbourg, il n'y aura pas de conférence européenne EAC 98. En revanche, toujours début décembre, le CFA 98 aura bien lieu. Donc, pensons y dès maintenant, et essayons tous de trouver de nouveaux participants.

Enfin, je voudrais remercier très chaleureusement les Membres du bureau de l'ASFERA qui m'ont aidé à mettre sur pied ce CFA 97, ainsi que Michel ATTOUI, Secrétaire Général et Lidia MARTIN, Secrétaire qui, avec dévouement et efficacité, assurent l'intendance indispensable à la bonne marche de nos activités. Merci également aux Etudiants de mon DESS «SAGA» Paris XII - INSTN qui ont fort bien accueilli nos Congressistes.

Je me réjouis toujours que nos CFA soient le tremplin de nos jeunes Chercheurs. Les doigts tremblent souvent sur le rétroprojecteur, mais on perçoit le talent et l'enthousiasme, et c'est sacrement réconfortant.

En souhaitant que 1998 comble tous vos souhaits, je COMPTE SUR VOUS pour que, à Edinbourg (en Anglais) en septembre 1998, et à Paris (en Français) en décembre 1998, l'ASFERA continue à montrer le dynamisme de la France dans le domaine de la Science des Aérosols.

André RENOUX

LA DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE DES SUBSTANCES INORGANIQUES ET ORGANIQUES DANS L'AEROSOL ATMOSPHERIQUE

E. Mészáros Université de Veszprém
Membre de l'Académie des Sciences de Hongrie
Département des Sciences de la Terre et de l'Environnement
H - 8201 Veszprém, B.P. 158, Hongrie

Abstract. With a Berner type cascade impactor, atmospheric aerosol samples were taken, at a moderately polluted site in Veszprem, Hungary, in different size intervals. The samples were analyzed by capillary electrophoresis, liquid and gas chromatography, atomic absorption spectrometry, to determine the size distribution of water soluble organic and inorganic ions, n - alkanes, polycyclic aromatic hydrocarbons, metallic elements. We observe that the mass of the most important ions, sulfate and ammonium, are in the accumulation mode (0,12 - 1,0 μm in diameter). In summer, we observe a different size distribution of nitrate, with a maximum in the coarse particles mode ($d_p > 1\mu\text{m}$). Metallic elements like nickel and chromium have an important maximum in the size range 0,06 - 0,12 μm . The major mass of polycyclic aromatic hydrocarbons is found in the accumulation mode, with larger sizes in winter. The size distribution of n - alkanes is not comparable to the distribution of other species measured : they have a important mass maximum below 0,12 μm .

Résumé - Les particules de l'aérosol atmosphérique ont été échantillonnées dans des intervalles de grandeur différents à l'aide d'un capteur à plusieurs jets de type Berner. Les échantillons ont été analysés chimiquement en utilisant la méthode d'électrophorèse capillaire, la spectroscopie d'absorption atomique et aussi la chromatographie en phase gazeuse et liquide, afin de déterminer la granulométrie des ions inorganiques et organiques solubles dans l'eau, e. Elle dépend du processus nitrates est similaire à celle des sulfates, mais en été la distribution dimensionnelle des ions nitrates passe par un maximum situé dans le mode des grosses particules ($d > 1,0 \mu\text{m}$). Le spectre granulométrique des acides carboxyliques et dicarboxyliques ressemble aussi à celui des ions sulfates et ammonium. Par contre, la masse de quelques ions comme calcium et carbonate, est concentrée dans le mode

des grosses particules. La granulométrie des éléments métalliques est très variable. Elle dépend du processus nitrates est similaire à celle des sulfates, mais en été la distribution dimensionnelle des ions nitrates passe par un maximum situé dans le mode des grosses particules ($d > 1,0 \mu\text{m}$). Le spectre granulométrique des acides carboxyliques et dicarboxyliques ressemble aussi à celui des ions sulfates et ammonium. Par contre, la masse de quelques ions comme calcium et carbonate, est concentrée dans le mode des grosses particules. La granulométrie des éléments métalliques est très variable. Elle dépend du processus de formation (utilisation de combustibles fossiles, production industrielle ou érosion à la surface de la Terre) et de phénomènes dynamiques comme la coagulation. Ainsi, les spectres de quelques métaux comme Cr et Ni ont un maximum dans le domaine de $0,0625 - 0,125 \mu\text{m}$, tandis que le mode du spectre des autres métaux (par exemple Al et Fe) correspond à celui des grosses particules. Une grande partie de la masse des hydrocarbures polycycliques aromatiques est détectée dans le mode accumulation avec des diamètres plus grands en hiver. Finalement, la distribution granulométrique des n-alcanes présente deux maximas. L'un dans le domaine des fines particules avec un diamètre inférieur à $0,125 \mu\text{m}$, tandis que l'autre se trouve dans le mode - des grosses particules. Ce résultat semble montrer que ces hydrocarbures ont au moins deux sources différentes.

N. D. L. R. On trouvera le texte intégral (en Anglais) de cette conférence dans J. of Aerosol Sc. Vol. 28, n°8, déc. 1997, pp. 1163-1177.

**ETUDE PHYSICO-CHIMIQUE
DE L'AEROSOL ATMOSPHERIQUE
A LA STATION COTIERE DE PORSPODER (FRANCE).**

O.LE BIHAN*, J.Y.CABON, G.TYMEN*.**

*Laboratoire de Recherches Appliquées Atmosphère-Hydrosphère,

**Laboratoire de Chimie Analytique U.M.R. 6521,

Université de Bretagne Occidentale (UBO),

6 avenue Le Gorgeu, BP 809, 29285 Brest, France.

olebihan@univ-brest.fr

RESUME

Une étude physico-chimique de l'aérosol atmosphérique marin a été réalisée à la station côtière de Porspoder (France) dans le cadre de campagnes intensives de plusieurs semaines, entre Novembre 1993 et Juillet 1996.

Celle-ci comprend, d'une part, la caractérisation de la concentration totale des particules, ainsi que leur distribution en taille. D'autre part, une étude des espèces majeures de l'aérosol a été effectuée à l'aide d'un impacteur basse pression, les éléments collectés étant analysés par chromatographie ionique.

La prise en compte des conditions météorologiques (rétrotrajectoires, paramètres locaux, bulletins et prévisions météorologiques), permettent de caractériser les échantillons en fonction de l'origine des masses d'air.

Par ailleurs, les distributions en taille sont obtenues en appliquant le programme d'inversion de données EVE sur les données brutes.

Ce document présente et discute nos principaux résultats à savoir les caractéristiques les plus marquantes de l'aérosol en fonction des quatre influences majeures (hiver, été, continentale, marine). Nous traitons notamment de la dynamique des particules ultrafines, et du comportement des composés chimiques du cycle du soufre et du cycle de l'azote.

ABSTRACT

PHYSICO-CHEMICAL STUDY OF ATMOSPHERIC AEROSOL AT PORSPODER COASTAL STATION (France)

The physico-chemical characteristics of marine atmospheric aerosol were studied at the coastal station of Porspoder (France) between November 1993 and July 1996 within the scope of intensive field campaign. Time-series measurements were conducted and focused on the total concentration and size-distribution of condensation particles. In addition, the major species constituting this aerosol were collected using a low-pressure impactor and analysed by ionic chromatography. Size distributions were calculated with the EVE inversion data method.

From the analysis of meteorological data, i.e. local parameters, weather bulletins..., and of 2 to 4 3-D back-trajectories the various air masses arriving at the station every 6 hours were classified into several classes with respect to seasons and air mass origin.

Finally, the most important characteristics of this aerosol were related to the four major influences observed, i.e. Winter, Summer, continental and marine origin. This paper also reports and discusses ultrafine particles dynamics as well as behaviour of the chemical compounds resulting from sulphur and nitrogen cycles.

I INTRODUCTION :

Notre but a été de réaliser une étude aussi approfondie que possible de la physico-chimie de l'aérosol en milieu côtier, en collaboration avec diverses stations ouest-européennes. Nous avons cherché à constituer une base de données conséquente, afin de permettre une approche statistique et représentative des variations annuelles. Cela a donné lieu à un ensemble très riche, dont l'intérêt est renforcé par l'existence de diverses bases de données simultanées portant sur des paramètres complémentaires, telles des espèces gazeuses comme les NOx, l'ozone, le PAN, mais aussi les constituants azotés de l'eau de mer, les espèces majeures et les métaux dans l'eau de pluie.

II CONTEXTE DE L'ETUDE, METROLOGIE :

Le programme européen **BMCAPE** "Background Maritime Contribution to Atmospheric Pollution in Europe" a été élaboré dans la perspective d'étudier un certain nombre de propriétés chimiques et microphysiques des constituants des masses d'air à dominante maritime lors de leur passage de l'Océan Atlantique au continent européen, grâce à un réseau de 6 stations côtières.

A la suite de ce programme, nous avons procédé à une campagne complémentaire (de décembre 1995 à juillet 1996), afin de renforcer certains points et d'amorcer certaines pistes. De plus, nous avons décidé de changer notre mode de fonctionnement en mettant en place un système de veille météorologique, débouchant sur des mesures de 24 à 48h de durée, afin de cadrer nos mesures sur un type de régime météorologique. Pour assurer un ciblage parfait, nous avons travaillé avec les prévisionnistes de Météo-France afin de définir des périodes de « veille » correspondant à l'attente de fenêtres météorologiques intéressantes, la station étant prête à fonctionner.

Le suivi des conditions météorologiques a alors permis de déclencher des mesures, mais aussi de les arrêter, au moment opportun.

La station de Porspoder (48°30'16''N, 04°46'26''W, altitude 22 m) est localisée sur la côte Ouest de la Bretagne. Le container-laboratoire renfermant l'instrumentation bénéficie d'une ouverture marine d'environ 110° (entre 220° et 340°). Afin de traiter nos résultats, il était nécessaire de les classer en première approximation selon leur régime météorologique, classification des masses d'air décidée dans le cadre du programme BMCAPE (tableau 1) et réalisée à l'aide de rétrotrajectoires.

Celles-ci sont définies de la manière suivante : sur la base des observations météorologiques, notamment par satellite, et en mettant en place un maillage 3D de la troposphère, il est possible de reconstituer le vécu d'une masse d'air durant une période de quelques jours avant son arrivée à un endroit précis, à une heure précise.

régime météorologique :	abréviation :	description :
Marin atlantique	M	origine plein Ouest
tropical Marin	tM	air marin d'origine tropicale
polaire Marin	pM	masses d'air marines pures d'origine polaire
Continental « pur »	C	masses d'air venant de l'Est et du Sud-Est.
polaire Continental	pC	trajectoires polaires transitant par l'Europe du Nord
tropical Continental	tC	intrusions d'air tropical passant par l'Espagne ou les pays méditerranéens
éléments « modifiés »	mM, mC, etc...	régime issu de l'ensemble des régimes décrits ci-dessus, MAIS PERTURBE par un changement de direction

TABEAU 1 : CLASSIFICATION DES RETROTRAJECTOIRES.

En terme de concentration en nombre, les particules submicroniques sont mesurées à l'aide d'une batterie de diffusion TSI 3040 en série avec un compteur de particules de condensation (CPC) TSI 3022A. Les particules supérieures à 0,1 µm sont mesurées à l'aide d'un compteur optique ROYCO 5200, qui permet de classer les particules en 6 classes de tailles entre 100 nm et 2000 nm. Lors de la campagne 95/96, nous avons utilisé un compteur Palas, basé sur un système très original de définition optique du volume de mesure, dont la gamme de mesure s'étend de 0,237 µm à 42,2 µm, la définition des classes étant au choix de l'utilisateur.

Le prélèvement des particules s'effectue à l'aide d'un impacteur à basse pression de type BERNER LPI/30/0.06/2 à 9 étages, muni de supports de collection en polyéthylène. Il opère dans le domaine de dimension 0,06-16 µm. Les analyses des espèces majeures ont été effectuées au Laboratoire de Chimie Analytique, URA CNRS 322 de l'Université de Bretagne Occidentale, par chromatographie ionique (Dionex DX 100).

Une intercalibration a été réalisée à Mace Head (Irlande) en septembre 1993, réunissant l'ensemble des équipes du programme BMCAPE, permettant la validation de nos lignes de comptages en nombre. Par ailleurs, une intercalibration a été effectuée au niveau de l'analyse chimique. Des échantillons comparables ont été

envoyés à l'ensemble des partenaires. Leur analyse a permis de montrer une excellente convergence des résultats.

Les méthodes de restitution numérique des distributions en taille permettent de prendre en compte l'ensemble des phénomènes de perte de particules au niveau de la métrologie (diffusion, courbes d'efficacité des étages, ...), grâce à leur modélisation. Une adaptation des méthodes de restitution des spectres dimensionnels a été effectuée au laboratoire pour la ligne de mesure des particules submicroniques, et pour l'impacteur Berner (DRO95).

III RESULTATS

Notre approche statistique, rendue possible du fait d'une base de données conséquente, nous a permis d'établir de manière solide des propriétés déjà décrites pour partie, mais bien souvent dans le cadre de mesures sur des périodes limitées dans le temps, ce qui constitue un point fort de ce travail. Il a été possible de caractériser l'aérosol au niveau de 4 types d'influences : influence marine hivernale, marine estivale, continentale hivernale et continentale estivale.

Nous avons complété cette approche globale du comportement de l'aérosol, par des études de cas, permettant l'observation de phénomènes particuliers et soulignant un certain nombre de propriétés complémentaires (influence de la vitesse du vent, des radiations lumineuses, des marées, ...).

PHYSICO-CHIMIE DE L'AEROSOL

La caractérisation à la fois physique et chimique de l'aérosol atmosphérique sur le site de Porspoder permet d'effectuer une synthèse concernant chaque catégorie d'influence atmosphérique.

Ainsi, le phénomène de conversion gaz-particules est corrélé avec de fortes concentrations en nombre de particules dans la gamme fine et ultrafine, ainsi que des niveaux importants en sulfate et en ammonium.

Le recours à ces deux techniques de mesure est complémentaire : ainsi, la caractérisation en nombre, par le biais d'un pas de temps d'échantillonnage très court, met en évidence immédiatement un apport continental. Ceci n'est pas systématique en ce qui concerne la mesure des espèces majeures, notamment pour des pas de temps importants.

A l'inverse, l'analyse chimique a pour avantage de fournir des traceurs, tel le sodium, ou le MSA qui permettent de caractériser certaines sources, ce que l'analyse en nombre ne permet pas.

La catégorie marine hivernale est caractérisée par la prédominance de la source mécanique marine. Elle est associée à la concentration totale en nombre la plus basse ($\leq 1000 \text{ cm}^{-3}$, selon le régime météorologique), par de fortes concentrations totales en espèces majeures liées aux composés marin-minéraux comme le chlore, le sodium et le magnésium. Nous relevons la présence limitée de particules ultrafines, dont le mode peut être considéré comme inexistant (figure 1). Si le mode fin de diamètre se situant à 30-40 nm prédomine en terme de concentration en nombre, ce sont le mode grosses (# 2-3 μm) et le mode très grosses particules ($> 10 \mu\text{m}$) qui dominent la distribution en taille (concentration en masse).

La catégorie marine estivale se caractérise par une diminution de l'influence de la source mécanique-marine, en raison de la baisse de la vitesse moyenne du vent. Par contre, en cette période de l'année, nous observons l'implication très nette des rejets dus à l'activation du cycle planctonique, au niveau des espèces soufrées, mais aussi probablement de l'ammonium par le biais de l'ammoniac. Les radiations solaires jouent un rôle majeur dans ces relations de conversion gaz-particules, puisque celles-ci sont essentiellement diurnes. Leur activation a pour effet de provoquer une hausse de la concentration totale en nombre, liée à un mode ultrafin très actif et à une augmentation des concentrations en espèces majeures dans le mode accumulation.

Les catégories continentales hivernale et estivale montrent une grande similitude, à savoir une prédominance du mode fin et ultrafin (figure 2), ainsi que des espèces majeures submicroniques. Les niveaux en ammonium et sulfate non marin-minéral sont nettement au dessus des valeurs marines, de même que les concentrations en nitrate.

Nous observons un faible niveau de concentration pour les espèces marines, avec de surcroît un phénomène de déplétion du chlore, du fait d'un relargage probable sous forme d'acide chlorhydrique (action du sulfate et du nitrate).

Nous relevons la présence de MSA, en relation avec le cycle des espèces soufrées, et en corrélation avec les résultats d'autres auteurs. Nous avons pu obtenir à partir d'exemples, une détermination de son spectre de dimension dans la gamme de mesure de l'impacteur (0.06-16 μm), indiquant l'existence d'un mode accumulation (40-60 nm) et d'un mode grosses particules (2-4 μm).

Le cycle de l'azote montre des particularités locales, au niveau des sources continentales, mais également de la source marine. Sur la base de prélèvements effectués localement dans l'eau de mer, il apparaît que la source marine-mécanique est négligeable pour l'ammonium, et s'avère importante en hiver et réduite en été pour le nitrate. Si la distribution en taille de l'ammonium présente un lien étroit avec celle du sulfate non-marin-minéral, le spectre du nitrate présente peu de similitudes avec celui d'autres composés et est probablement étroitement lié à des processus de conversion gaz-particules.

Au niveau de l'atmosphère marine, les cycles de l'azote du soufre s'avèrent très dépendants du cycle planctonique ; la compréhension des processus liés à l'aérosol marin passe par celle des transferts de matière au niveau des interfaces.

Un exemple d'échantillon marin estival est caractérisé par les figures 3 à 6.

TRACEURS ATMOSPHERIQUES

Dans le cadre du programme européen BOA consacré à l'étude de l'ozone troposphérique, nous avons conçu un dispositif de mesure en continu du radon atmosphérique basé sur l'électroprécipitation du $^{218}\text{Po}^+$ sur un détecteur alpha à barrière de surface (PIPS). La constitution d'une base de données horaires sur le site de la station de mesure de Porspoder pour l'année 1995, a permis de réaliser une étude comparative avec des mesures de PAN (Peracétylnitrate) réalisées par le Laboratoire Interuniversitaire des Sciences de l'Atmosphère (LISA) de l'Université Paris XII, et des rétrotrajectoires calculées pour le site (TYM96).

Nous avons ainsi confirmé l'intérêt que constitue l'observation de ces composés en tant que traceurs continentaux, et plus spécifiquement traceur « continental-géologique » (radon) ou traceur « continental-anthropique » (PAN). La caractérisation marine/continentale des masses d'air à partir de ces indicateurs, est convergente dans 80% des cas observés.

IV CONCLUSION

Cette étude nous a permis de constituer une base de données significative permettant d'appréhender le comportement des particules atmosphériques sur le plan de l'évolution en nombre et en taille, ainsi que des espèces majeures constituant ces mêmes particules, le tout en fonction du cycle saisonnier, et des influences marines et continentales.

D'autres développements peuvent être attendus en exploitant nos résultats par rapport à des données que nous n'avons pas encore considérées.

- DRO95 « Aérosols et micro-organismes
Techniques de prélèvements et d'analyses des spectres dimensionnels
Applications au milieu de l'élevage porcin. »
Thèse de Doctorat, Université de Bretagne Occidentale, 1995.
- JEN95 Jennings S.G.
« Environmental Programme 1990-1994 - Background maritime contribution to atmospheric pollution in Europe - Final Report. »
fébruary 1995.
- LEB95 Le Bihan O., Calvez B., et Tymen G.
« Distribution en taille des composés majeurs de l'aérosol atmosphérique à la station côtière de Porspoder. »
12^{ième} Journées d'études sur les aérosols, Paris, déc.95, Actes ASFERA, pp.32-37, 1995.
- LEB 97 Le Bihan O.
« Etude physico-chimique de l'aérosol atmosphérique en site littoral atlantique »
Thèse de Doctorat de l'Université de Bretagne Occidentale, 1997.
- LEB Le Bihan O., Tymen G. and Cabon J.Y.
« Major species size distribution at the French western coast ».
Atmospheric Environment. Accepté, en cours de correction.
- TYM95 Tymen G., Le Bihan O., and Droal C.
Dynamics of fine particles size distributions during gas-to-particle processes at the Porspoder coastal station ».

Congrès EGS (European Geophysical Society), Hamburg, 1995.

TYM96

Tymen G., Le Bihan O., Perros P.E., Colin P., and Etienne A.
« Identification of air masses at a coastal site by the use of two gaseous tracers : ^{222}Rn and PAN. »
Proceedings of EUROTRAC symposium '96, pp961-965, 1996.

TYM

Tymen G., Le Bihan O., and Droal C.
« Ultrafine and ambient aerosol size distribution in the 8 - 500 nm range at Porspoder coastal station ».
Atmospheric Environment. Accepté, en cours de correction.

Figure 1 : exemple marin de distribution en taille - période du 8 au 15 décembre 1993

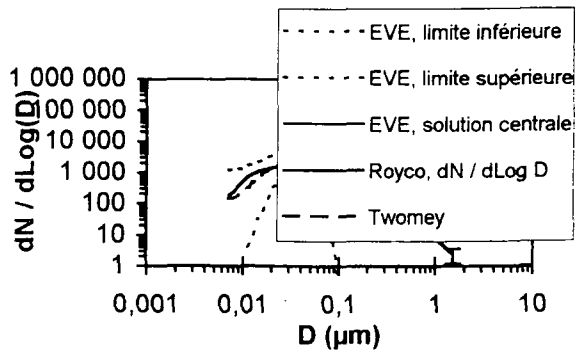


Figure 2 : exemple continental de distribution en taille - période du 8 au 15 décembre

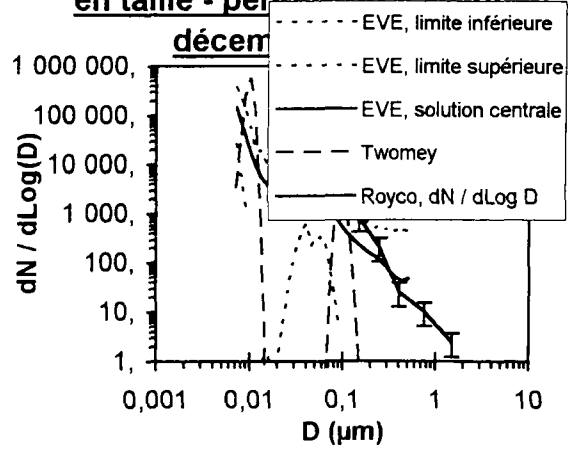


Figure 3 : 01/07/96 - Distribution en taille du sodium

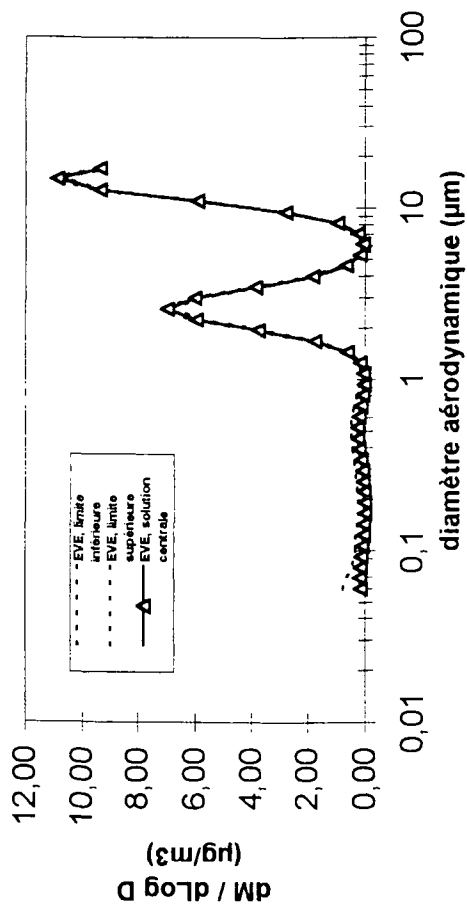


Figure 4 : 01/07/96 - Distribution en taille du chlore

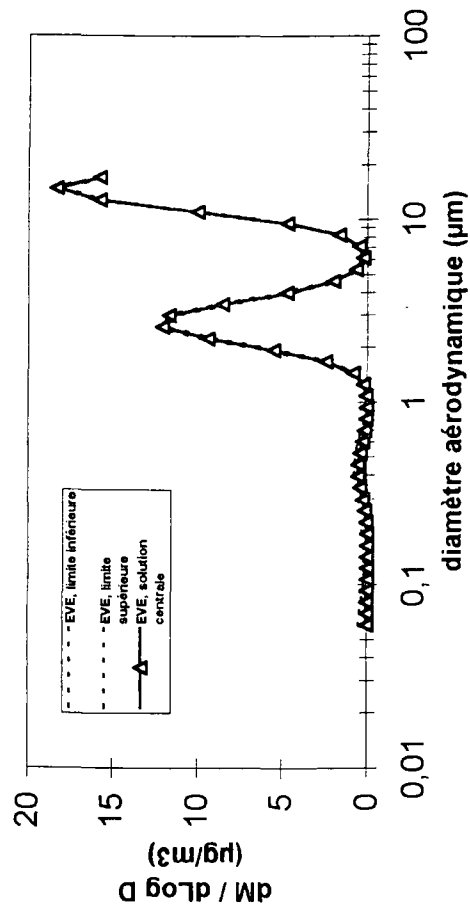


Figure 5 : 01/07/96 - Distribution en taille du potassium

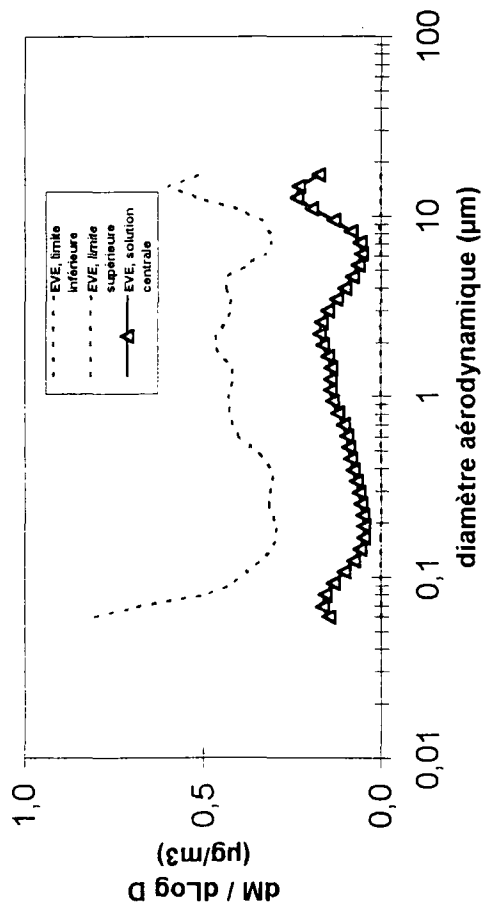
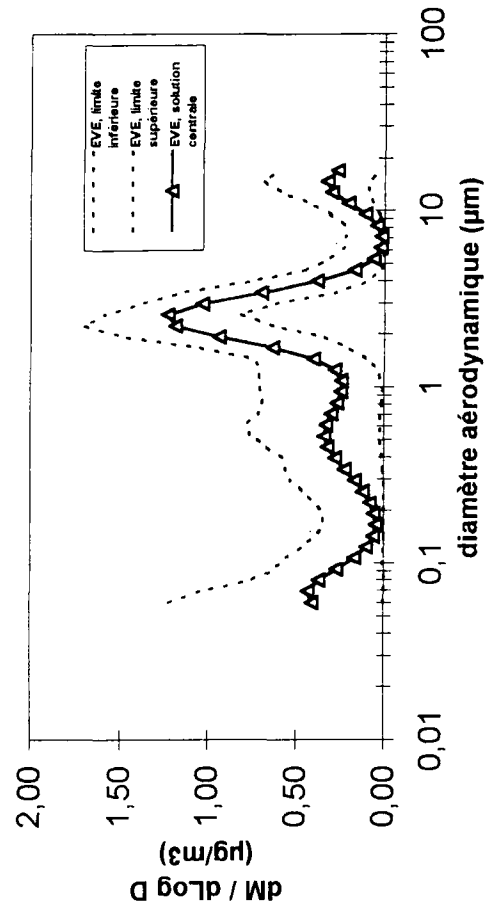


Figure 6 : 01/07/96 - Distribution en taille du nitrate



IMPACT DES CARBURANTS SUR LES POLLUANTS D'UN AUTOBUS R312

INFLUENCE OF FUEL TYPE ON R312 BUS POLLUTION

C. LE GUERN ⁽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 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.

ABSTRACT

Few years ago, the diesel engine was still considered as a relatively clean one. The gaseous pollutants emissions were lower than with petrol engine. Today, the use of catalytic exhaust for petrol motorization contributes to decrease the level of pollutants they generate. The current diesel concern is the gaseous and particulate reduction. This study consists in characterising the pollutants produced on a laboratory bus equipped with constant volume sampler and in showing the influence of the use of alternative fuels. The tested fuels are commercial diesel oil (0,05% sulphur), a 15% water added diesel oil and a diesel oil including 0,01% sulphur. The results show that using substitution gazolines could be a way to reduce regulated pollutants. Nevertheless estimating the effects of those fuels on the unregulated pollutants emissions must be considered.

RESUME

Il y a quelques années encore, le moteur Diesel était considéré comme relativement propre. Les émissions de polluants gazeux étaient inférieures à celles des moteurs à essence. Aujourd'hui la mise en service des pots catalytiques sur les motorisations à essence contribue à baisser les niveaux d'émissions de polluants qu'elles génèrent. La préoccupation actuelle des Diésélistes est donc la réduction des émissions gazeuses et particulaires. Cette étude consiste donc à caractériser les polluants réglementés émis par un autobus laboratoire équipé d'un système de prélèvement à volume constant (C.V.S) et de montrer l'influence de l'utilisation de quelques carburants. Les carburants testés sont le gazole commercial (0.05% de soufre), un gazole additivé de 15% d'eau et un gazole contenant 0.01% de soufre. Les résultats nous montrent que l'emploi de carburants de substitution semble être une voie pour réduire les polluants réglementés. Néanmoins, il est nécessaire d'évaluer les effets de ces carburants sur les émissions de polluants non réglementés avant de conclure.

INTRODUCTION

La préoccupation actuelle des Diésélistes est la réduction des émissions gazeuses et particulaires. Des réglementations tendent en ce sens en limitant les émissions de polluants (directive 91/542/CEE parue en Oct.91).

Ces réglementations, de plus en plus sévères, nous amènent à la question suivante : Quelles actions entreprendront pour réduire cette pollution ?

Pour répondre à ce problème, nous étudierons l'impact de quelques carburants sur les quantités de polluants émises par un autobus.

1- METHODOLOGIE

Notre expérimentation consiste à mesurer les émissions de polluants d'un autobus, alimenté par divers carburants. Les caractéristiques techniques de cet autobus sont résumées dans le tableau 1 :

Tableau 1 : Quelques informations sur cet autobus.

Moteur R312	Renault MIDS 06 20 45 D Suralimentation : Turbo compresseur AIRESEARCH T04B VI 1.32 F 6 cylindrée totale 9834 cm ³ Puissance max ISO : 129 kW (175 ch à 1900 Tr / min.) Couple max : 81.1 m.daN à 1200 Tr / min. Régimes : Ralenti 550 Tr/min Maxi 1900 Tr/min Coupure 2120 Tr/min
Injection	Pompe BOSCH avec régulateur
Boîte de vitesses	Automatique avec convertisseur de couple hydrocinétique

Ce véhicule circule sur un circuit routier selon un mode de conduite bien défini et surtout reproductible. Notre étude est réalisée à partir d'un cycle tenant compte des régimes transitoires. Nous répétons 6 fois ce cycle et nous mesurons les quantités de polluants émises par notre véhicule pour chaque carburant. Les caractéristiques de ce cycle dynamique sont représentées dans le tableau 2 :

Tableau 2 : Caractéristiques du cycle de conduite RATP

Vitesse moyenne	Distance parcourue	Durée du cycle	Temps des arrêts	Temps entre 2 arrêts
19 km / h	11.2 km	35 min.	5s tous les 200 m	45 secondes

La vitesse et le régime maximum atteints, pour parcourir les 200 mètres entre chaque arrêt, sont respectivement de 33 km/h et 1600 T/min lors de ce cycle.

Nous effectuons les prélèvements des différents polluants dans cet autobus laboratoire, 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 m³ / min.

Les rapports de division (R_{div}) et de dilution (R_{dil}) d'échappement sont connus en fonction du régime moteur. Ces rapports sont donnés par les relations :

$$R_{div} = -8.5 \cdot 10^{-5} \cdot (\text{Régime}) + 0.41$$

$$R_{dil} = -4.6 \cdot 10^{-3} \cdot (\text{Régime}) + 13.22$$

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, de sorte que :

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

La dispersion de chaque polluant est déterminée par la concentration moyenne et l'écart type sur plusieurs cycles reproductibles.

La dispersion est définie :
$$d = \frac{t}{\sqrt{n}} \times \frac{s}{\bar{C}} \times 100$$

avec n : nombre d'essais, t : Probabilité de Student avec un intervalle de confiance à 95%,

\bar{C} : Concentration moyenne du polluant et s : écart type géométrique

$$s = \sqrt{\sum_{i=1}^n \frac{(C_i - \bar{C})^2}{n - 1}}$$

La dispersion retenue pour chaque polluant est la dispersion maximale calculée sur l'ensemble des carburants testés.

On réalise l'échantillonnage dans le tunnel de dilution à une température inférieure à 50°C afin de respecter la norme de prélèvement des particules. L'analyse porte sur les polluants suivant : le monoxyde de carbone (CO), les oxydes d'azote (NOx), les hydrocarbures non méthaniques (HCNM) et les particules (PS). Les techniques d'analyses utilisées sont définies dans le tableau 3.

Tableau 3 : Métrologie des polluants

COMPOSÉS	TECHNIQUES
CO	Détection par infra rouge - Mesure en continu
NOx	Détection par chimiluminescence - Mesure en continu
HCNM	Détection par ionisation de flamme (FID) - Mesure en continu
PS	Gravimétrie : méthode par pesée

L'expérimentation consiste à évaluer les émissions de trois carburants :

- Gazole commercial à 0.05 % de soufre (G-0.05)
- Gazole Finlandais contenant 0.01% de soufre (G-0.01)
- Gazole commercial à 0.05 % de soufre additivé de 15% d'eau (G-0.05+eau)

Tableau 4 : Quelques caractéristiques physico-chimiques des carburants testés

Carburants	G-0.05	G-0.05+eau	G-0.01
Masse volumique à 20°C (kg/m ³)	834.5	855.1	828
Indice de cétane	56.1	55.7	57.6
Pouvoir calorifique sup. MJ/Kg	45.79	36.26	46.30
Teneur en soufre ppm	340	460	100

L'évaluation de ces carburants s'est déroulée lors de deux campagnes de mesures (une en période estivale et l'autre en période hivernale).

2- RESULTATS

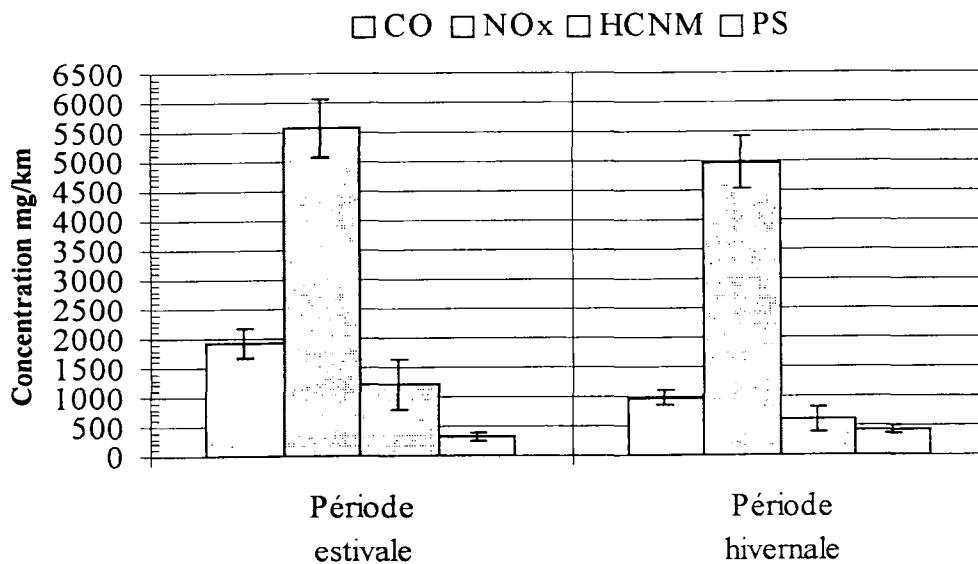
Nos résultats concernent, dans un premier temps, la concentration et l'écart type de chaque polluant pour le gazole commercial; puis nous verrons l'impact des carburants sur les émissions de polluants réglementés.

A/ Les niveaux de polluants réglementés du gazole commercial (0.05% S)

Tableau 5 : Concentration des polluants émis par l'autobus lors du cycle RATP

Polluants en g /km	CO	NO _x	HCNM	PS
Période estivale	1,92 ± 0,23	5,57 ± 0,50	1,21 ± 0,30	0,33 ± 0,07
Période hivernale	0,98 ± 0,13	4,98 ± 0,45	0,61 ± 0,24	0,43 ± 0,09

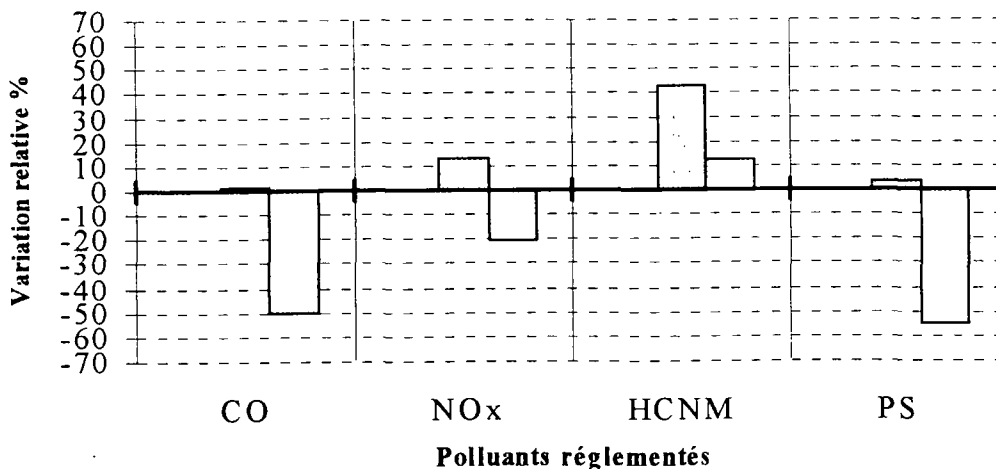
Fig. 1 : Représentation de la concentration et de la dispersion de chaque polluant lors du cycle RATP au cours des 2 campagnes de mesures.



B/ Impact des carburants sur les émissions de polluants par rapport au gazole commercial (0.05% S).

Fig. 2 : Représentation de la variation relative pour chaque polluant réglementé

■ G-0.05 □ G-0.01 (période hivernale) □ G-0.05+eau (période estivale)



3- CONCLUSIONS

Cette étude illustre la complexité à déterminer des niveaux de polluants d'un autobus en circulation. En effet, les quantités de polluants émises à l'échappement varient selon les conditions de fonctionnement du moteur. Néanmoins, notre expérimentation montre l'effet indiscutable des carburants sur les polluants émis par le véhicule.

Finalement, notre étude de l'impact des carburants de substitution sur les émissions de polluants réglementés par rapport au gazole commercial contenant 0.05% de soufre montre que :

- L'utilisation du gazole additivé de 15% d'eau tend à diminuer fortement les émissions de CO et des particules et plus légèrement les émissions de NOx. Toutefois cette baisse des niveaux de polluants s'accompagne d'une perte de puissance du véhicule de l'ordre de 20%.
- L'utilisation du gazole contenant 0.01% de soufre a peu d'incidence sur les émissions de polluants mesurés.

En conclusion, l'emploi de carburants de substitution semble être une voie pour réduire les polluants Diesel. Il est toutefois nécessaire, avant de donner toutes conclusions définitives, d'évaluer les effets de ces carburants sur les émissions de polluants non réglementés.

Remerciements

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

Dissolution du césium et du strontium contenus dans des aérosols radioactifs accidentels - Devenir dans l'environnement -

C. Camarasa-Claret¹, F. Persin² et J. Real¹

¹ IPSN/DPRE/SERE/LRE CE/Cadarache bât. 180 13108 SAINT-PAUL-LEZ-DURANCE cedex

² CNRS LMPM BP 5051 route de Mende 34033 MONTPELLIER cedex 5

Abstract : The dissolution's behaviour of Cs and Sr, which accidental radioactive aerosols contains and which is deposited by a dry process on old urban materials (clays tiles, concrete), is the subject of this work. In rainwater, the dissolution of radionuclides is neither immediate, nor complete. It's improved by the use of concentrated ammoniacal solutions, due to their acid or complex formation character. During tests in batch when the aerosols are deposited on urban materials, the setting into solution is lower with rainwater and washing solutions. The dissolved radionuclides are sorbed to urban materials. During the run-off of rainwater or washing solution, the setting into solution of Cs and Sr is more lower.

1 - INTRODUCTION

Le devenir des aérosols qui seraient émis lors d'un accident grave sur un réacteur à eau sous pression (REP) préoccupe les intervenants français du nucléaire. En effet ces aérosols contiendraient un certain nombre de radionucléides présentant pour les populations des dangers d'irradiation externe de part leur présence en milieu urbain, comme le Cs, ou des risques en cas d'ingestion des eaux ayant ruisselé sur les surfaces urbaines, comme le Sr.

Suite à l'accident de Tchernobyl, de nombreuses études ont porté sur la détermination de la décontamination naturelle des matériaux urbains en Cs (essentiellement lors des précipitations) [1-3]. D'autres ont eu pour thème la recherche de procédés de décontamination forcée des matériaux urbains en Cs, notamment par aspersion de solutions ammoniacales concentrées [4-6], ou de jets d'eau à haute pression [5, 7, 8]. Mais aucune ne s'est réellement intéressée aux processus physico-chimiques pouvant intervenir lors de ces traitements.

L'objectif de ce travail est d'étudier les possibilités de mise en solution du Cs et du Sr contenus dans des aérosols émis accidentellement, notamment en présence de matériaux urbains usagés (tuiles en argile et béton).

2 - MATERIEL ET METHODE

2.1 - Les aérosols POLYR

Un dispositif expérimental de laboratoire, le dispositif POLYR, permet de reproduire à échelle réduite les conditions qui régneraient dans l'enceinte de confinement d'un REP de 900MWe en cas de fusion partielle du cœur [9, 10]. Les aérosols formés à partir d'un mélange de 14 éléments (tableau 1) et à l'aide de ce dispositif sont représentatifs de ceux qui seraient émis dans l'atmosphère, suite à un tel accident.

Leur granulométrie, déterminée lors d'un examen au MEB, est inférieure à 2 μm , mais avec une majorité de particules inférieures à 0,5 μm .

Des analyses par ICP/MS ont montré que, par rapport aux éléments utilisés pour leur production, les aérosols sont constitués à 92-93% en masse des éléments représentatifs des matériaux de structure et à 7-8% de ceux des produits de fission (tableau 1). Selon des observations au MEB et des micro-analyses élémentaires par sonde électronique, les particules

Tableau 1 Composition du mélange servant à la production et composition des aérosols formés

Eléments	Masse du mélange mg	Composition des aérosols %
I	15	0,6 - 2,4
Cs	15	1,3 - 2,0
Te	10	~ 1,2
Sr	31	2,8 - 3,0
Ru	19	-
Ce	50	~ 0,1
Zr	1 833	0,2 - 1,7
Sn	20	0,5 - 0,6
Ag	190	9,7 - 11,8
In	36	5,6 - 6,0
Cd	12	1,4 - 2,0
Fe	2 060	71,0 - 72,9
Cr	620	0,6 - 0,8
Ni	410	0,3 - 0,4

crystallisées sont constituées le plus souvent de plusieurs métaux oxydés ou non (principalement Ag- et/ou Fe- et /ou In- et/ou Cr-). Si le Sr se retrouve dans ces associations métalliques, le Cs a été détecté dans des sphères de Cs-Cd-I. Cependant une partie de ces éléments doit se trouver sous forme amorphe.

Le dispositif POLYR a servi à contaminer divers supports (bacs remplis de solution aqueuse, filtres, matériaux urbains) par dépôt sec d'aérosols radioactifs ($^{134}\text{Cs} + \text{Cs stable } 150\text{-}350 \mu\text{g.m}^{-2}$, $^{85}\text{Sr} + \text{Sr stable } 200\text{-}500 \mu\text{g.m}^{-2}$).

2.2 - Les matériaux urbains

Les matériaux urbains ont été prélevés à Marseille, les tuiles d'une toiture construite vers 1910 et le béton d'un trottoir datant des années 1970.

Des analyses par spectrométrie de fluorescence X et par diffraction de rayons X ont montré que les tuiles sont principalement constituées d'aluminosilicates (diopside, anorthite) et de silicates (wollastonite, quartz), et le béton de calcite avec des traces de silicates et d'aluminates. Le diamètre moyen des pores des tuiles ($1,05 \mu\text{m}$), déterminé par porosimétrie au mercure, est plus élevé que celui du béton ($0,16 \mu\text{m}$).

Les essais en flacon ont été réalisés avec des disques de tuiles et de béton ($\phi \sim 9,4 \text{ cm}$, $S_{\text{tuile}} \sim 75 \text{ cm}^2$ - $S_{\text{béton}} \sim 69 \text{ cm}^2$). Pour les essais de ruissellement, des tuiles et des grandes plaques de béton ont été disposées dans des bacs de $1 \times 0,5 \text{ m}$ ($S \sim 0,5 \text{ m}^2$).

2.3 - Protocoles expérimentaux

Les bacs contenant 500 ml d'eau de Mont Roucous (de caractéristiques chimiques voisines de celle de la moyenne des eaux de pluie), dans lesquels les aérosols ont été déposés directement lors de la contamination ($2,5\text{-}5 \mu\text{g.l}^{-1}$ en Cs et en Sr), ont été récupérés 24 h après le début du dépôt. La moitié des solutions était destinée aux diverses analyses. L'autre moitié des solutions était placée à 15°C dans des flacons en polypropylène, sous agitation orbitale permanente, pendant 7 j.

Les cinétiques de dissolution des aérosols ont été déterminées. Au temps t_0 , des filtres sur lesquels un dépôt d'aérosols a été réalisé étaient introduits dans des flacons contenant 500 ml d'eau de Mont Roucous de deux salinités différentes ($0,17 \cdot 10^{-3} \text{ M}$ en Na^+ et $0,6 \cdot 10^{-6} \text{ M}$ en NH_4^+) et ($1,7 \cdot 10^{-3} \text{ M}$ en Na^+ ou $0,44 \cdot 10^{-3} \text{ M}$ en NH_4^+) ou des solutions de lavage ($\text{NH}_4\text{Cl } 0,1$ et 1 M ou $(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4$ $0,05$ et $0,1 \text{ M}$). La concentration de $2,5\text{-}5 \mu\text{g.l}^{-1}$ en Cs et en Sr a été respectée. Les flacons étaient placés à 15°C sous agitation orbitale permanente pendant 7 j. Des aliquotes de 10 ml étaient prélevés au cours du temps.

La mise en solution des aérosols en présence de matériaux urbains a ensuite été étudiée en flacon et lors d'essais en ruissellement. Au temps t_0 , 500 ml d'eaux de Mont Roucous légèrement salines ou non, ou des solutions de lavage étaient ajoutés à des flacons contenant les disques de matériaux urbains contaminés ($V/S_{\text{tuile}} \sim 6,7 \text{ ml.cm}^{-2}$, $V/S_{\text{béton}} \sim 7,2 \text{ ml.cm}^{-2}$, et $2,5\text{-}5 \mu\text{g.l}^{-1}$ en Cs et en Sr). Les flacons étaient conditionnés comme précédemment pendant 21 j, et des aliquotes de 10 ml étaient également prélevés. Pour les essais en ruissellement, les surfaces contaminées étaient placées dans un simulateur de pluie à gicleur, avec une pente de 5° pour le béton et 30° pour les tuiles. Trois pluies de 1 h ont été réalisées aux intensités de 5 et 10 mm.h^{-1} avec de l'eau de Mont Roucous, en trois jours successifs. Suite aux pluies, deux aspersion de 30 min puis une de 1 h ont été réalisées au débit de 5 l.h^{-1} par m^2 avec les solutions de lavage. D'autre part, directement après la contamination, trois aspersion de 30 min puis une de 1 h ont été réalisées au débit de 5 l.h^{-1} par m^2 avec la solution $\text{NH}_4\text{Cl } 0,1 \text{ M}$. L'eau ruisselant sur les matériaux urbains était collectée dans le temps en fonction du volume recueilli.

Les diverses aliquotes et solutions recueillies étaient filtrées à $0,45 \mu\text{m}$. Tous les échantillons (solutions, filtres et disques de matériau à 21 j) étaient analysés en spectrométrie γ germanium.

3 - RESULTATS ET DISCUSSION

3.1 - Dissolution des aérosols POLYR

3.1.1 - Influence de la maturité des aérosols

La dissolution des aérosols récupérés dans l'eau de Mont Roucous après leur émission est plus importante que celle des aérosols préalablement déposés sur des filtres, qui sont plus matures

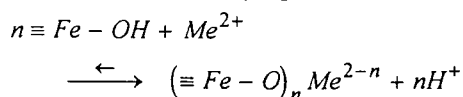
(davantage déshydratés). A 7 j, les fractions dissoutes en Cs sont proches de 100% pour le dépôt direct et de 86% pour le dépôt sur filtres ; pour le Sr, ces valeurs sont respectivement de 89% et de 70%.

Les conditions de transport des aérosols (diffusion atmosphérique) et de dépôts au sol impliquent que les aérosols retrouvés dans l'environnement sont généralement des aérosols matures. Seuls les aérosols déposés sur filtres ont été utilisés dans la suite du travail.

3.1.2 - Cinétiques de dissolution

Deux étapes sont mises en évidence dans les cinétiques de dissolution du Cs et du Sr inclus dans les aérosols POLYR (figure 1). Entre 0 et 2 h de contact, le processus est rapide ; la vitesse serait limitée par le transport des produits. Entre 5 h et 8 j, le système tend plus lentement vers l'équilibre ; la vitesse semble limitée par la réaction de surface, la concentration en solution pouvant être considérée comme une fonction linéaire du temps de contact [11].

La dissolution des espèces n'est donc ni instantanée, ni totale. Grâce aux caractérisations des aérosols réalisées, deux hypothèses peuvent être émises : soit une partie du Cs et du Sr serait incluse dans des composés multiélémentaires insolubles, soit elle serait fixée sur des oxydes présents dans les aérosols comme les oxydes de fer. La seconde possibilité semble la plus probable car les oxydes de fer ont été mis en évidence en grande proportion dans la matrice des aérosols. En effet, les cations tels le Cs et le Sr sont susceptibles d'être échangés avec les protons présents selon [11] :



3.1.3 - Effet de la composition des solutions

La cinétique de dissolution du Cs et du Sr inclus aux aérosols POLYR est peu modifiée par une légère augmentation de la salinité de la solution. A 7 j, les fractions dissoutes en Cs sont de 84-95%, celles en Sr de 62-78%.

La dissolution du Cs et du Sr dans les solutions ammoniacales de lavage est plus rapide (figure 2). Les fractions dissoutes obtenues à 7 j sont également plus élevées : 93-96% en Cs et 75-83% en Sr.

L'acidité des solutions concentrées en chlorure d'ammonium provoque la protonation de la surface des aérosols - (hydr)oxydes de Fe(III), et accélère ainsi le détachement des ions Fe^{III} et des éléments qui leur sont liés. Les équations de ces réactions sont [11] :

- protonation rapide des groupes -OH et -O de la surface conduisant à une polarisation du réseau cristallin à proximité des centres métalliques de surface :

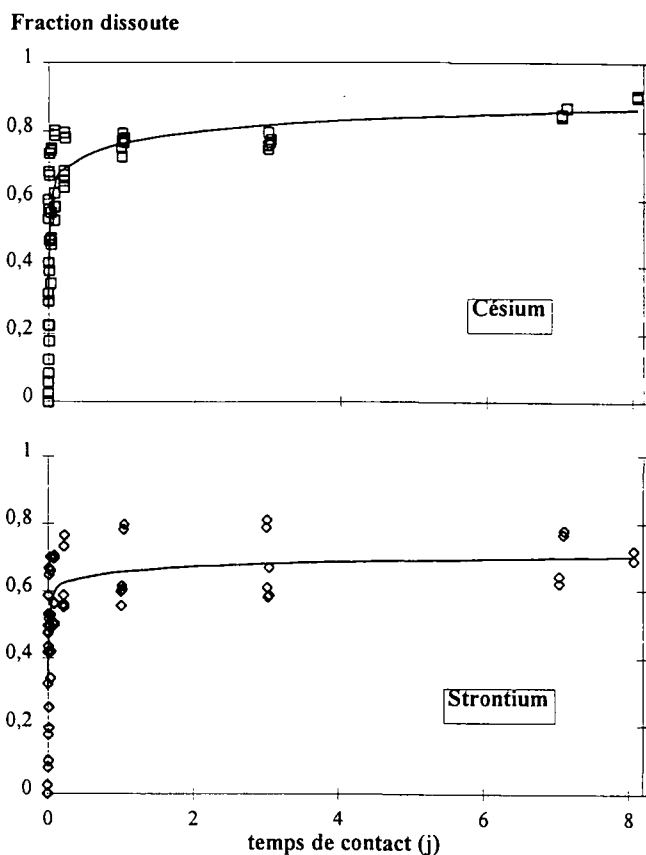


Figure 1 Cinétique de dissolution du Cs et du Sr dans de l'eau de Mont Roucous

vis de ces éléments est beaucoup plus importante que celle du Sr [11, 12].

En présence de béton, une coprécipitation du Cs avec les espèces silicatées présentes en traces dans le gel C-S-H du béton [13] et une coprécipitation du Sr sous forme de SrCO_3 semblent être à l'origine de la diminution de la mise en solution de ces cations.

Dans les solutions de lavage, plus agressives, la mise en solution des éléments est plus importante (figure 3) : pour le Cs 79-81% avec les tuiles et 81-98% avec le béton, pour le Sr 29-65% avec les tuiles et 3-56% avec le béton, à 7j. Toutefois par rapport à la dissolution des aérosols, le passage en solution des éléments est toujours plus faible, sauf pour le Cs en présence de béton dans $(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4$ 0,1 M.

En présence de béton, le caractère acide des solutions NH_4Cl provoque une attaque de la matrice du matériau (accroissement en solution des concentrations en ions majeurs), simultanément à la solubilisation d'une partie des aérosols POLYR. Les deux réactions de dissolution entrent en compétition. Toutefois, les processus de coprécipitation sur le matériau ne doivent pas être exclus, principalement avec le Sr en raison de la quantité élevée d'ions HCO_3^- présents en solution. Avec la solution $(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4$ 0,1 M, le milieu conserve ses propriétés dissolvantes vis-à-vis des aérosols malgré l'attaque simultanée de la matrice du béton. De plus, il y a formation d'une couche de précipité de CaC_2O_4 empêchant le Cs de se refixer, sa fraction dissoute restant inchangée. Par contre, la coprécipitation du Sr sous forme de SrCO_3 est encore plus importante.

En présence de tuiles, les ions NH_4^+ contenus dans les solutions de lavage entrent en compétition avec les ions Cs^+ et Sr^{2+} vis-à-vis des sites d'échange des minéraux argileux. Les ions divalents ayant généralement plus d'affinité que les ions monovalents vis-à-vis des sites facilement accessibles, la mise en solution du Sr est plus faible que celle du Cs. La mise en solution de ces cations en présence de tuiles semble moins liée aux propriétés corrosives des solutions de lavage, comme il a été observé en présence de béton.

3.3 - Mise en solution des aérosols en présence de matériaux urbains par ruissellement

Lors des essais de ruissellement d'eau de Mont Roucouis ou de solutions de lavage, la mise en solution du Cs et du Sr s'effectue essentiellement en début d'aspersion, puis un palier de mise en solution des éléments est rapidement atteint (figure 4). Les fractions dissoutes obtenues sont beaucoup plus faibles que lors des essais en flacon, même avec les solutions agressives.

Figure 4 Mise en solution lors du ruissellement sur les matériaux urbains :

pluie* + lavage** : —■— Cs —●— Sr
lavage*** : —○— Cs —△— Sr

*3h 5mm.h⁻¹ - **1h45 NH_4Cl 0,1M 5l.h⁻¹ par m²

***2h30 NH_4Cl 0,1M 5l.h⁻¹ par m²

Fraction dissoute à 7 j

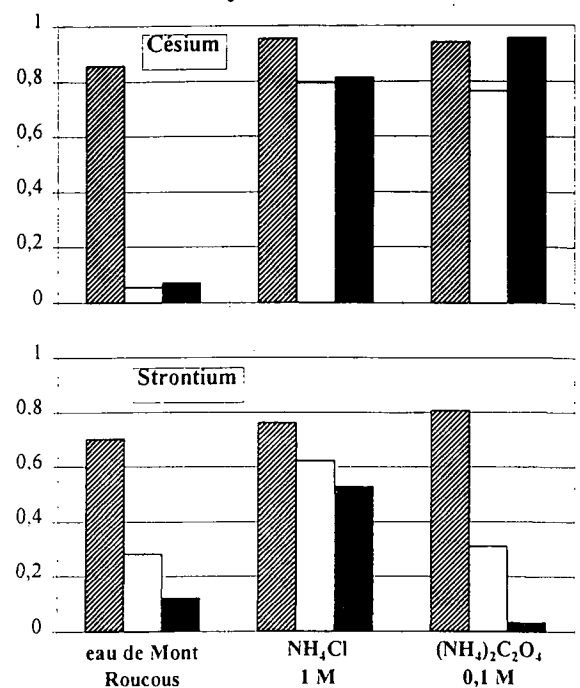
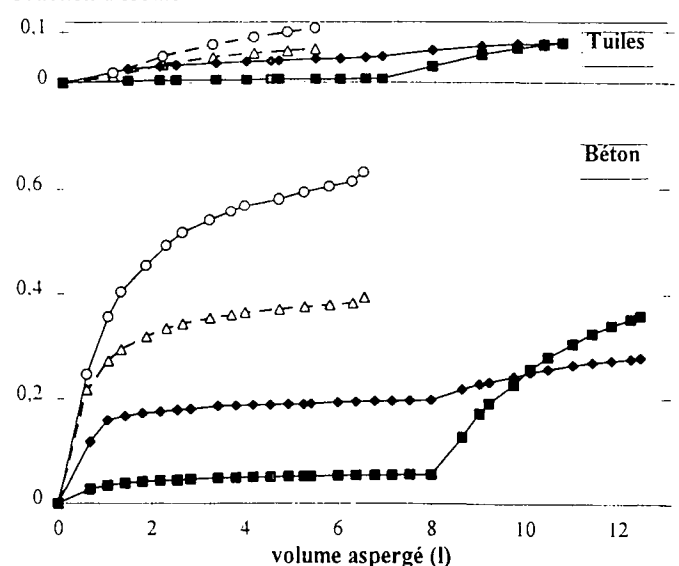


Figure 3 Mise en solution en flacon du Cs et du Sr en présence de matériaux urbains :
■ sans matériau - □ tuiles - ■ béton

Fraction dissoute



Après 3 h de pluie à l'intensité de 5 mm.h^{-1} , ces pourcentages sont pour le Cs de 0,8-1,3% sur les tuiles et de 5-6 % sur le béton, pour le Sr de 5-8 % sur les tuiles et de ~20 % sur le béton. Ils sont encore plus faibles lorsque l'intensité de la pluie est double [14]. Un lavage avec la solution NH_4Cl 0,1 M pendant 2h30 au débit de 5 l.h^{-1} par m^2 , appliqué directement après la contamination, a permis d'obtenir les meilleurs résultats de mise en solution : pour le Cs 11% sur les tuiles et 63% sur le béton, pour le Sr 7% sur les tuiles et 40% sur le béton. L'augmentation du caractère agressif de la solution NH_4Cl (1 M à la place de 0,1 M) et l'effet complexant des ions $\text{C}_2\text{O}_4^{2-}$ n'améliorent pas significativement la mise en solution lors du ruissellement [14].

Deux hypothèses peuvent être avancées pour expliquer cette diminution de la mise en solution du Cs et du Sr par rapport aux résultats obtenus lors des essais en flacon. Tout d'abord, le temps de contact est beaucoup plus court lors du ruissellement, limitant ainsi le développement des processus de mise en solution qui ne sont pas instantanés. Ensuite du fait d'une pression cinétique due à l'impact de la solution aspergée, la pénétration mécanique des aérosols dans les matériaux s'effectue plus en profondeur que lors des essais en flacon. En raison de cette pression, exercée durant toute l'aspersion, la diffusion des éléments dissous dans la solution interstitielle vers la solution ruisselante est rendue difficile, empêchant ainsi la mise en solution des radionucléides. Ce dernier processus est plus important en présence de tuiles que de béton, en raison des diamètres de pores des matériaux : les aérosols pénètrent davantage dans les tuiles que dans le béton.

4 - CONCLUSION

En conclusion, la dissolution du Cs et du Sr inclus dans des aérosols idoine à ceux qui seraient émis en cas d'accident nucléaire grave est fortement liée à la présence des oxydes métalliques dans les aérosols.

En présence de matériaux urbains, la mise en solution en flacon des espèces est généralement plus faible, les radionucléides se fixant sur les matériaux. Seules les solutions de lavage permettent l'obtention de pourcentages de dissolution élevés, en raison soit de leur caractère agressif soit de leur comportement complexant. Lors du ruissellement de ces solutions, les fractions dissoutes obtenues sont encore plus faibles.

Références

1. Nicholson, K.W. and J.B. Hedgecock, *Journal of Environmental Radioactivity*, **14** (1991) 225-231.
2. Roed, J. and J. Sandalls, "The concentration levels of Chernobyl fallout on different surfaces in Gävle in Sweden", Proceedings of the XVth regional congress of IRPA, Visby, sept.1989, p. 367-371.
3. Roed, J. and P. Jacob, "Deposition on urban surfaces and subsequent weathering", Seminar on methods and codes for assessing the off-site consequences of nuclear accident, Athens, 7-11 may 1990, p. 335-356.
4. de Witt, H., *et al.*, "Decontamination strategies in urban areas after nuclear accidents", Seminar on methods and codes for assessing the off-site consequences of nuclear accident, Athens, 7-11 may 1990, p. 615-632.
5. Roed, J. and A. K.G., *Journal of Environmental Radioactivity*, **33** (1996) 107-116.
6. Sandalls, F.J., S.P. Stewart, and B.T. Wilkins, "Natural and forced decontamination of urban surfaces contaminated with radiocaesium", Proceedings in the workshop on methods for assessing the off-site radiological consequences of nuclear accidents, Luxembourg, 15-19 april 1985, p. 511-532.
7. Gjørup, H.L., *et al.*, "Deposition, retention, and decontamination of radioactive material on urban surfaces - The danish program", Methods for assessing the off-site radiological consequences of nuclear accidents, Luxembourg, 15-19 april 1985, p. 463-491.
8. Roed, J., "Deposition and removal of radioactive substances in an urban area", (1990).
9. Maubert, H. and P. Drouet, "Chemical speciation of radionuclides" in *Evaluation of data on the transfer of radionuclides in the food chain*, G. Desmet & J. Sinnaeve ed, (1992) p. 3-48.
10. Pioch, M., *et al.*, "Solubilité des aérosols émis en cas d'accident nucléaire - Conséquences sur les contre-mesures", Intervention levels and countermeasures for nuclear accidents, Cadarache, 7-11 octobre 1991.
11. Stumm, W., "Chemistry of the solid-water interface" John Wiley & Sons Inc. ed, (1992) p. 428.
12. Skoog, D.A., D.M. West, and F.J. Holler, "Chimie analytique" De Boeck University publisher, (1996).
13. Shrivastava, O.P., T. Verma, and P.K. Wattal, *Advanced Cement Based Materials*, **2** (1995) 80-83.
14. Camarasa-Claret, C., *et al.*, "Décontamination de surfaces urbaines exposées à une pollution radioactive accidentelle simulée. Elimination du césium et du strontium", Congrès National de Radioprotection, Avignon, 18-20 juin 1997, à paraître

Etude par sonde PIXE de poussières atmosphériques.

Hervé GUEGAN

CENBG ARCANE - Le Haut Vigneau 33175 Gradignan

Tél: 05 56 75 26 62

Fax: 05 56 75 11 80

e-mail: arcane@cenbg.in2p3.fr

Abstract:

ARCANE is the technology transfer unit of the CENBG (mixed research laboratory In2p3/University of Bordeaux I). Our job is to make analysis for manufacturers or research laboratories with our nuclear analysis techniques.

For two years we are trying to improve the P.I.X.E (Proton Induced X-ray Emission) as a new method for environmental monitoring and especially for the characterisation of aerosol filters.

Some significant advantages of PIXE are its multi-element analysis nature (from Sodium through Uranium), low limits of detection (some ng/cm² for various elements), flexibility, speed of analysis, non-destructive nature, and cost effectiveness.

- A - Motivations.

Constatations.

Dans le cadre de la structure de transfert de technologie ARCANE (cellule de l'ADER Aquitaine) du C.E.N.B.G (Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux Gradignan: unité mixte de recherche IN2P3/Université de Bordeaux I), nous avons pour mission de faire évoluer les techniques d'analyses nucléaires propres du laboratoire et de leur trouver de nouvelles possibilités d'utilisation. A ce titre nous effectuons une veille technologique constante sur l'usage de ces techniques à travers le monde, et avons constaté qu'elles sont utilisées dans de nombreux pays comme outil de contrôle et d'analyse des poussières atmosphériques collectées sur filtres.

Ainsi plusieurs études sont en cours ou ont été menées dans différents pays (Japon, Etats-Unis, Mexique, Hongrie), et concernent principalement l'analyse de la pollution en milieu urbain. De même il existe aux Etats-Unis des réseaux de contrôle des filtres par ces méthodes, soutenus par l'Environmental Protection Agency. La méthode PIXE en particulier faisant l'objet d'une norme pour le dosage de métaux contenus dans les poussières. Une rapide bibliographie sur le sujet est donnée dans dernière partie de ce document.

Dans ce domaine des poussières, les mesures effectuées dans le cadre légal en France ne concernent à l'heure actuelle que le contrôle de la quantité totale de matière en suspension (par jauge β , réflectométrie ou TEOM) et le dosage du plomb.

Dans le même temps il apparaît que la nouvelle directive européenne (96/62/CE du 27/09/96) va imposer à court terme la surveillance d'autres éléments (cadmium, arsenic, nickel, mercure) ainsi que l'étude des particules fines sur lesquelles peu de travaux ont été menés jusqu'ici à notre connaissance.

Objectifs.

La méthode PIXE que nous proposons comme moyen d'étude des poussières permet par une analyse directe, rapide et non destructive du filtre collecteur, de doser simultanément tous les éléments présents de masse comprise entre le sodium et l'uranium.

Ainsi les deux possibilités d'utilisation privilégiées de notre méthode sont:

i) Dans un cadre réglementaire:

Disposer d'un moyen de suivi de certains métaux lourds visés par la nouvelle directive européenne par une technique unique et plus rapide (donc moins onéreuse) que celles pouvant exister à l'heure actuelle.

ii) Dans le cadre de programmes de recherches:

* Par une analyse de filtres ayant recueilli des poussières de diamètres différents (et plus particulièrement celles appartenant aux classes PM10 et PM2.5) aboutir à une meilleure connaissance de la composition élémentaire des aérosols en fonction de leur classe granulométrique.

* L'aspect le plus intéressant restant sans doute l'utilisation de la méthode dans le cadre d'études sources/récepteurs en utilisant la théorie du "fingerprint":

On part de l'hypothèse que chaque source est caractérisée par une composition multi-élémentaire bien spécifique. L'objectif recherché est alors de pouvoir, à partir d'un prélèvement, remonter à la contribution relative de chacune des sources.

Le travail préalable et de longue haleine à réaliser étant avant tout d'établir une bibliothèque "d'empreintes" multi-élémentaires des sources connues existantes.

- B - Aspects techniques.

Méthode employée - Principe.

La méthode PIXE (Particle Induced X-ray Emission) repose sur l'étude du rayonnement X émis par l'échantillon, sous l'effet du bombardement de celui-ci par un faisceau d'ions de haute énergie.

Ce faisceau d'ions (atomes d'hydrogène d'énergie égale à 2.5 MeV), est produit par un accélérateur électrostatique de type Van De Graaff.

Les ions incidents créent des lacunes dans les couches électroniques profondes des atomes cibles. Ceux-ci peuvent revenir à leur état fondamental en émettant un rayonnement X d'énergie caractéristique de l'atome excité.

Un détecteur placé devant la cible compte et mesure l'énergie des X émis, ce qui permet d'identifier et de quantifier les constituants présents.

La production, l'accélération et le guidage des ions incidents, ainsi que l'analyse des échantillons est réalisée sous vide.

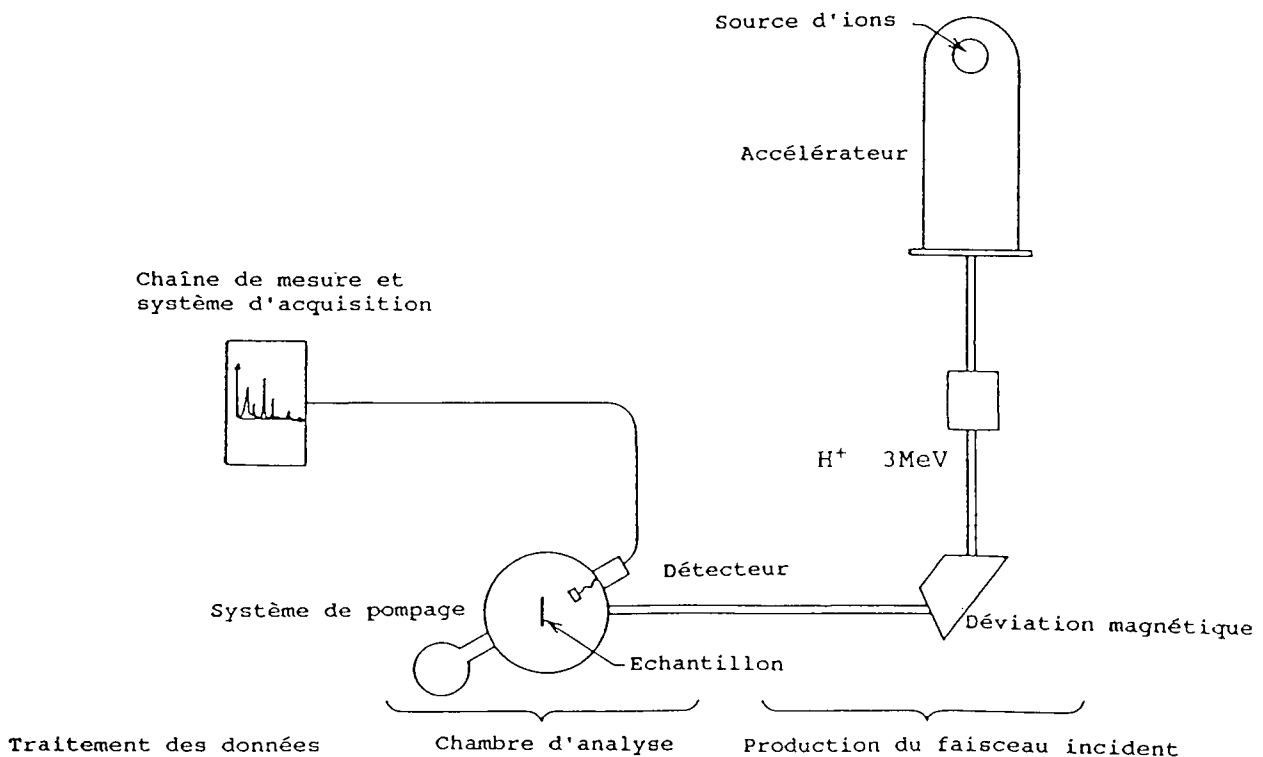
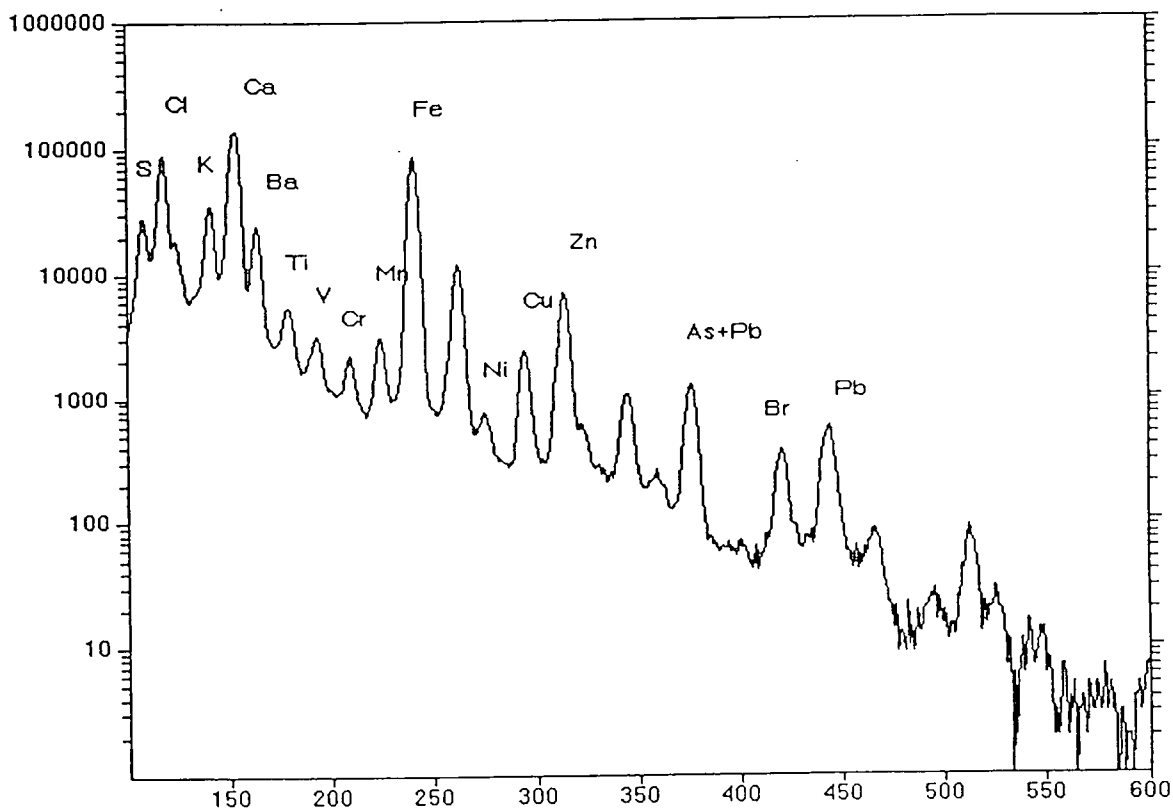


Schéma de principe d'une analyse PIXE

Compte tenu des moyens mis en oeuvre, la méthode proposée n'est pas un outil de contrôle "in situ". Néanmoins les échantillons à étudier peuvent provenir de stations de collection automatique et les délais d'analyses être relativement courts, la durée d'une mesure en elle-même étant de l'ordre de quelques dizaines de minutes.

Le résultat obtenu à la suite de cette mesure se présente sous la forme d'un spectre ayant pour abscisse l'énergie des X émis par la cible, ce qui permet d'identifier tous les constituants de celle-ci (de masse comprise entre le sodium et l'uranium), et pour ordonnée leur nombre vu par le détecteur, ce qui permet la quantification.

Ci-dessous nous donnons pour exemple un spectre obtenu en quelques minutes sur un prélèvement d'une durée de 24 heures effectué dans une grande agglomération française. Les éléments principaux détectés sont donnés sur le spectre, et le tableau de résultats des éléments effectivement mesurés (exprimés en ng/m³ d'air échantillonné) est reporté au dessous.



Spectre PIXE obtenu sur un filtre ayant prélevé 20m³ d'air en milieu urbain

Elt	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	As	Br	Mo	Cd	Ba	Hg	Pb
Conc	20	10	10	8	600	5	6	40	100	6	20	5	<10	25	<4	75

Concentrations élémentaires exprimées en ng/m³ d'air échantillonné

Etude comparative de la méthode.

* Par rapport aux méthodes chimiques classiques de dosage des métaux (Absorption Atomique, Ion Coupled Plasma):

La méthode PIXE ne nécessite pas de mise en solution du filtre et du dépôt collecté, ni la réalisation de standards pour chaque élément mesuré. De même elle permet une analyse simultanée de tous les éléments détectés, et est donc malgré le matériel employé bien plus simple et rapide à mettre en oeuvre. Malgré tout sa sensibilité de détection peut être moins bonne sur certains éléments.

* Par rapport à d'autres méthodes multi-élémentaires comme la fluorescence X (XRF), ou des analyseurs en énergie (EDS) montés sur des microscopes électroniques à balayage:

On est en présence dans les trois situations du même phénomène physique, à savoir l'analyse du rayonnement X émis après ionisation des couches électroniques profondes d'un atome.

La différence provenant de la source d'excitation qui est dans notre cas un faisceau de protons de quelques MeV, au lieu d'être un faisceau d'électrons (MEB+EDS), ou de rayonnement X (XRF) de quelques dizaines de KeV .

Ceci va avoir plusieurs conséquences:

→ La profondeur de pénétration d'un faisceau de particules de haute énergie est bien plus élevée que celle d'un faisceau d'X ou d'électrons. Nous allons ainsi traverser toute la cible quelque soit la quantité de matière déposée (jusqu'à quelques dizaines de microns) et n'aurons donc pas à prendre en compte dans les calculs les phénomènes d'atténuation du faisceau incident. Ceci va participer grandement à une meilleure précision de la mesure par rapport aux précédentes.

→ Le bruit de fond généré par le ralentissement des ions incidents dans le matériau (par rayonnement de freinage ou bremsstrahlung) est bien plus faible que celui créé par les X ou les électrons qui sont très vite arrêtés. Ceci va se traduire sur le spectre par une amélioration très sensible du rapport pic/bruit de fond, et donc une amélioration de la sensibilité de l'analyse par cette technique.

* Pour résumer le potentiel analytique de la méthode, nous avons reporté ci-dessous un extrait de la norme éditée par l'US EPA et qui donne les limites de détections attendues pour l'ensemble des éléments détectables par la technique PIXE. On remarquera que ces valeurs sont variables en fonction du type de filtre utilisé, qui lui même génère un bruit de fond plus ou moins important.

Element	Teflon	Cellulose	PCTE	Element	Teflon	Cellulose	PCTE	Element	Teflon	Cellulose	PCTE
Na	94	79	75	Zn	12	2	1	In	761	100	92
Mg	62	46	42	Ga	12	2	1	Sn	906	127	112
Al	54	43	36	Ge	14	2	2	Sb	1250	142	149
Si	47	38	30	As	18	3	2	Te	103	120	55
P	48	35	26	Se	21	3	2	I	97	94	50
S	43	31	22	Br	41	6	5	Cs	84	75	46
Cl	41	30	21	Rb	59	9	8	Ba	75	61	36
K	33	26	15	Sr	77	11	9	La	69	48	25
Ca	27	25	14	Y	95	13	11	Ce	60	39	20
Sr	26	27	15	Zr	117	15	14	Pr	53	31	16
Ti	22	18	11	Nb	148	19	18	Nd	50	26	17
V	18	11	6	Mo	190	24	23	Pm	42	22	14
Cr	13	7	3	Tc	243	30	28	Sm	40	19	10
Mn	10	4	3	Ru	297	37	33	Eu	35	16	10
Fe	9	3	2	Rh	348	43	41	Gd	34	15	9
Co	8	3	1	Pd	446	59	53	Tb	31	14	8
Ni	8	2	1	Ag	551	83	68	Dy	32	13	8
Cu	8	2	1	Cd	670	83	69	Hf	31	10	5
								Er	29	9	5
								Tm	34	10	6
								Yb	35	8	5
								Lu	36	8	5
								Hf	35	17	5
								Ta	36	19	5
								W	40	8	4
								Re	44	13	6
								Os	43	11	5
								Ir	41	8	5
								Pt	45	8	6
								Au	48	8	6
								Hg	48	8	6
								Tl	55	9	7
								Pb	59	9	6
								Bi	59	9	8
								Th	112	18	13
								U	146	20	20

Detection limit comparison of various filter media for PIXE analysis. Detection limits are expressed in ng/cm²

*(Compendium of Methods for Inorganic Air Pollutants
EPA/625/R-96/060a - January 1997)*

- D - Etat d'avancement du projet.

Ce qui a déjà été réalisé.

* Toutes les fonctions accélérateur de particules, guidage du faisceau, chambre d'analyse, détecteur et système d'acquisition, sont opérationnelles au CENBG pour démarrer les premières études. De même la technique PIXE est parfaitement maîtrisée puisque elle-même est utilisée depuis déjà longtemps au laboratoire pour d'autres applications (en recherche fondamentale dans le domaine de la biologie en particulier, ou dans des domaines industriels les plus divers: micro-électronique, optique, cosmétiques, polymères...). Ainsi nous avons déjà effectué plusieurs tests sur des échantillons réels provenant de réseaux régionaux chargés du contrôle de la pollution atmosphérique, afin de démontrer la faisabilité des mesures.

Ce qui est en cours et les perspectives d'études.

* D'un point de vue technique nous sommes en train de concevoir une chambre d'analyse spécialement dédiée, dans le but d'automatiser les mesures afin de les rendre encore moins onéreuses et donc de faciliter leur utilisation dans le cadre d'études systématiques.

* En attendant la réalisation de celle-ci, nous pouvons malgré tout travailler avec le matériel existant à notre disposition, et sommes en train de réaliser des tests de faisabilité ou avons déjà entamé des collaborations avec différentes sociétés et laboratoires de recherche sur les trois thèmes principaux suivants:

Identification des sources
Phénomènes de transport
Effets sur la santé

* En tout état de cause nous pouvons être maître d'oeuvre sur certains projets mais restons avant tout des analystes, et à ce titre sommes ouverts à toute proposition d'étude dans laquelle nous ne serions que fournisseur de mesures.

- E - Bibliographie.

Applied Research on air pollution using nuclear-related analytical techniques.
Report NAHRES-19, International Atomic Energy Agency, Vienna (1994).

The application of PIXE and pike techniques in the analytics of atmospheric aerosols.
E. Koltay.
Nucl. Inst. Meth. B85 (1994) 75-83.

Pixe analysis of trace and major elements in atmospheric aerosol particles at three different sites of Debrecen city, Hungary.
J. Basco, A. Ali et al.
International Journal of PIXE, Vol.4, N°1 (1994) 9-17.

Characterization of road-side aerosols by PIXE and sem-edx analysis.
M. Kasahara, K. Shinoda et al.
International Journal of PIXE, Vol.3, N° 4 (1993) 313-318.

Seasonal study of the composition of atmospheric aerosols in Mexico city.
F. Aldape, J. Flores et al.
International Journal of PIXE, Vol.1, N° 4 (1991) 355-371.

Study of the respirable immision levels for a cyclist in Brussels traffic using PIXE as analytical technique.
W. Maenhaut, L. Thiessen and G. Verduyjn.
Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. B39 (1990) 406-410.

A quantitative assessment of source contributions to inhalable particulate matter pollution in metropolitan Boston.

G.D Thurston, J.D Spengler.

Atmos. Environ. **19** (1985) 9-25.

Light element analysis with the CENBG microprobe.

Y.Llabador, P.Moretto, H.Guégan.

Nucl. Inst. Meth. **B77** (1993) 123.

Determination of metals in ambient Particulate Matter using Proton induced X-ray emission (PIXE).

Compendium of methods for the determination of inorganic compounds in ambient air.

EPA/625/R-96/060a - January 1997.

Etude par sonde nucléaire des poussières atmosphériques.

H.Guégan.

Forum particules. Organisée par l'APPA et le CCTMR.

Santé: Pollution due aux particules - Réglementation, Risques, Prévention.

Bordeaux 04 juin 1997.

DETERMINATION DE LA REPARTITION SPATIALE DES PARTICULES DANS LE MILIEU SOUTERRAIN

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

⁽¹⁾ Régie Autonome des Transports Parisiens (RATP)
LAC A67, 54 quai de la Rapée, 75599 Paris Cedex 12

⁽²⁾ Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations (LPATC)
Université Paris XII Val de Marne, Av. du Général de Gaulle, 94010 Créteil Cedex

RESUME : Cette étude a pour objectif de déterminer la répartition spatiale des concentrations particulières dans une station du métropolitain parisien. Les résultats des comptages particulières constituent une base de données essentielles à la simulation numérique. Ils permettront en outre de positionner le système de filtration envisagé le plus judicieusement possible dans la station, de manière à traiter un volume d'air maximal et obtenir ainsi une amélioration significative de la qualité de l'air sur les lignes du métropolitain parisien.

Mots clés : qualité de l'air, particule, répartition spatiale, métropolitain

ABSTRACT : This paper's aim is to settle the spatial distribution of particles inside the Parisian underground. Measurements results provide information about the spread of particles and particle's sources. They also supply data for numerical modeling, which is essential to point the aerodynamic flows. Both measurements and modeling results are helpful to place judiciously the chosen filtration system, in order to filter the greatest air volume and so to have a significant improvement of the air quality.

Keywords : air quality, particle, spatial distribution, underground

INTRODUCTION

Parallèlement aux actions de recherche spécifiques entreprises en vue d'améliorer la qualité de l'air sur les lignes du métropolitain parisien [1][2], la RATP tente actuellement de mettre en place un système de traitement d'air capable de limiter les concentrations particulières dans ce milieu souterrain. L'élaboration d'une solution technique fiable, peu coûteuse et adaptée aux modes d'exploitation du métropolitain implique la connaissance de la répartition spatiale des particules en station, des facteurs d'influence qui sont à l'origine de cette répartition; ainsi qu'un grand nombre d'informations relatives aux écoulements d'air dans ce milieu dit "semi-confiné". Une campagne de mesures a donc été menée dans une station choisie comme site de référence, afin de déterminer ces différents paramètres.

PROTOCOLE DE MESURE

► Points de mesure :

La station choisie comme site d'essai est la station Saint-Sulpice, située sur la ligne 4 du métropolitain entre les stations Saint-Germain-des-Prés et Saint-Placide. Cette station a doré et déjà été instrumentée pour l'étude des transferts thermiques et aérodynamiques en milieu souterrain, dans le cadre de la validation d'un logiciel 1D de mécanique des fluides ("Express-Air").

Les concentrations particulières ont été mesurées pendant deux jours consécutifs à la fois en tunnel et en station en dehors de la période de circulation des trains, c'est à dire entre 1:00 et 5:30 environ; puis, après la reprise du trafic ferroviaire entre 5:30 et 9:00.

La figure 1 indique l'emplacement des points de mesure, répartis de la manière suivante :

- 3 points sur le quai direction Porte de Clignancourt (à 20 cm, 1 m 20 et 2 m 50 du sol)
- 3 points dans la salle des billets (à 20 cm, 1 m 20 et 2 m 50 du sol)
- 1 point dans le train (milieu de rame)
- 1 point de référence extérieur (rue de Rennes, à 1 m 20 du sol)

Les différents points de hauteur apportent une information complémentaire sur la répartition verticale des concentrations particulières.

Quelques points supplémentaires ont pu être choisis en dehors de la période de circulation des trains :

- 3 points sur la voie (à 20 cm du sol)
- 2 points en tunnel (à 1 m 20 du sol)

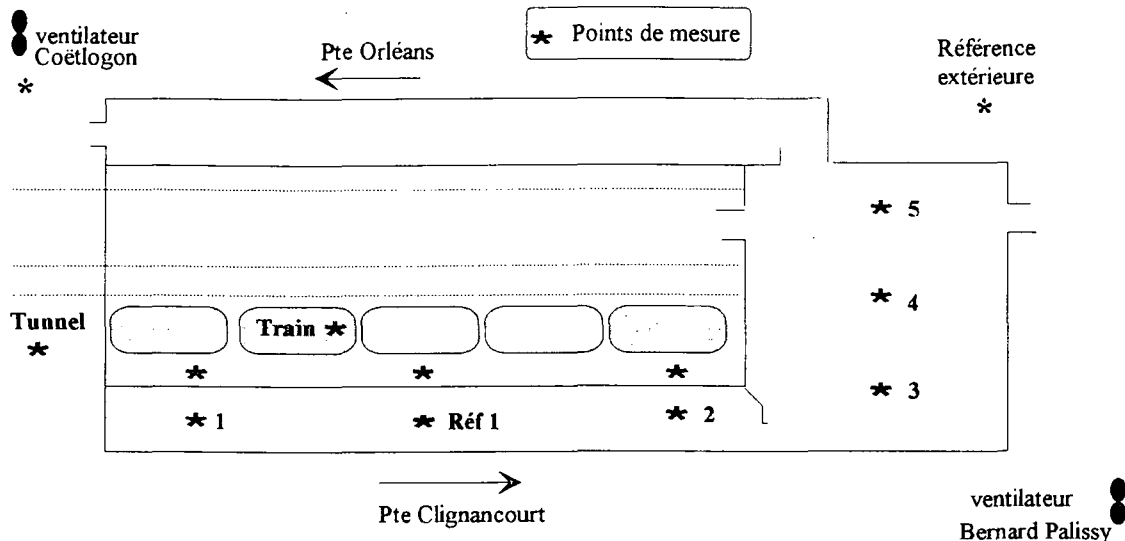


Fig 1 : Répartition des points de mesure dans la station Saint-Sulpice

➤ **Appareils de mesure :**

Un compteur de particules de marque GRIMM, modèle G1.106, a été utilisé, afin d'apprécier la répartition granulométrique en nombre ou en masse des particules; son fonctionnement étant basé sur le principe de diffusion de la lumière (fig.2). Cet appareil comporte 8 canaux, couvrant diverses granulométries comprises entre 0.35 μm et 6.5 μm .

La précision du GRIMM pour le comptage optique a été testé dans l'environnement du métro; les résultats montrent que la granulométrie en nombre est vérifiée à plus de 90% [3].

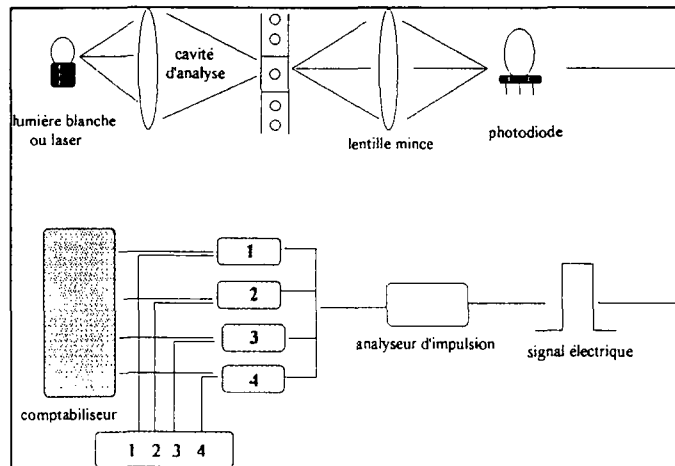


Fig 2 : L'air à contrôler est prélevé au débit de 28.4 l/mn pendant une minute. Les particules prélevées passent dans la chambre optique de l'appareil. La lumière diffusée par chacune des particules est mesurée à l'aide d'une photodiode qui transforme l'impulsion lumineuse en impulsion électrique.

Deux compteurs MET ONE, modèle 217 et 317, ont également été utilisés dans le cadre de cette campagne de mesures. Ces derniers comportent deux canaux, à savoir 0.35 et 3.0 μm .

➤ **Ventilation :**

Le système de ventilation mécanique assure un minimum de quatre renouvellements d'air par heure [4], et joue un rôle crucial sur l'état d'empoussièremement du métro.

En période estivale (avril-septembre), au cours de laquelle s'est déroulée la présente campagne de mesures, la ventilation mécanique du métropolitain fonctionne en mode extraction; le débit initial de chaque ventilateur étant de 60 m³/s. L'air pénètre alors par les accès de la station et est évacué par le puits de ventilation, situé en interstation. Notons ainsi que les concentrations particulières dans la salle des billets seront, par voie de conséquence, fortement influencées par la qualité de l'air extérieur.

RESULTATS

Les résultats de ces mesures montrent deux types de comportement dépendant de la taille des particules. Ainsi, nous distinguerons les fines particules, dont le diamètre s'étend de 0.35 à 1 µm, et les grosses particules, dont le diamètre est compris entre 2 et 6.5 µm.

➤ **Concentrations en station :**

Les figures 3 et 4 présentent les concentrations en nombre des particules de diamètres supérieurs à 0.35 et 3.5 µm, relevées au point de mesure "réf1.", situé au milieu du quai.

Ces courbes montrent de brusques élévations des concentrations en fines particules lors du freinage des trains avec émission de fumée. Une récente étude [5] nous a permis de constater que ces concentrations en fines particules augmentaient également fortement en présence de fumeurs à proximité du compteur de particules. Le nombre de grosses particules est quant à lui fortement tributaire du passage de trains de chantier, provoquant un important accroissement des concentrations à 1:32 et 4:50. La pollution que ces trains engendrent peut être transportée d'une station à une autre en fonction des écoulements d'air créés par la ventilation mécanique du métropolitain et "l'effet piston" des trains.

La reprise progressive du trafic ferroviaire (1^{ère} rame à 5:34) s'accompagne d'une augmentation des concentrations particulières tant pour les fines que pour les grosses particules.

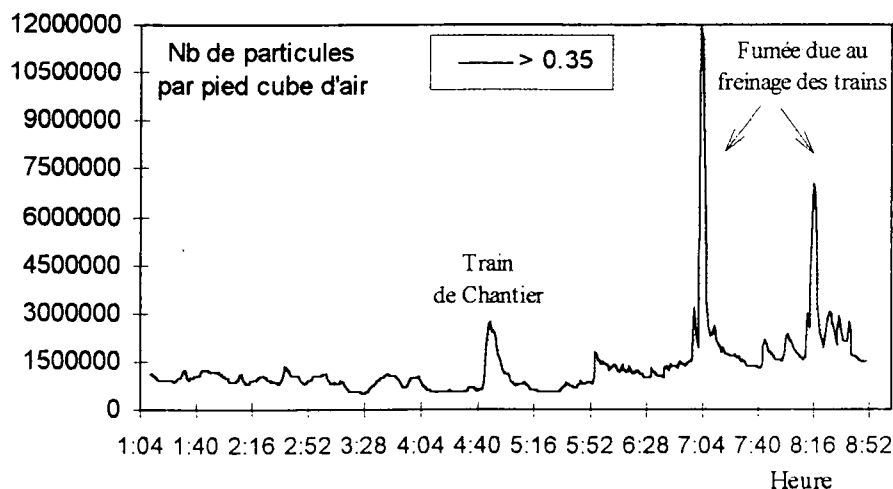


Fig 3 : Variation du nombre de particules de $d_p > 0.35 \mu\text{m}$ par pied cube d'air⁽¹⁾ en fonction de l'heure (période 1:04 / 8:52). Point de mesure : Réf.1.

⁽¹⁾ 1 pied cube d'air = 28.4 litres

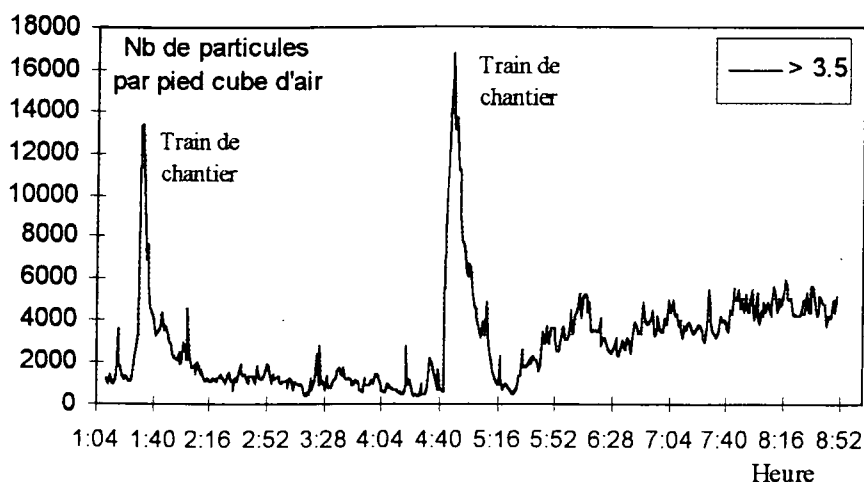


Fig.4 : Variation du nombre de particules de $d_p > 3.5 \mu\text{m}$ par pied cube d'air en fonction de l'heure (période 1:04 / 8:52). Point de mesure : Réf.1.

► **Concentrations dans la rame :**

Les concentrations relevées dans la rame sont beaucoup plus fortes que celles mesurées dans la station; elles peuvent atteindre 4 millions de particules par pied cube d'air à $0.35 \mu\text{m}$ et jusqu'à 28000 particules par pied cube d'air à $3.5 \mu\text{m}$, soit le double des concentrations observées sur le quai.

Les fluctuations des concentrations particulières suivent l'affluence des personnes, qui représentent une source importante de grosses particules. Par ailleurs, des pics de concentrations ont pu être observés au passage de certains groupes de stations plus fréquentées. Ces concentrations sont également influencées par l'ouverture plus ou moins longues des portes.

► **Concentrations extérieures/niveau quai/niveau voie (en tunnel) :**

La comparaison des concentrations particulières mesurées au niveau de la voie, du quai et dans l'environnement extérieur (figures 5 et 6) montre que la voie constitue une zone de faible empoussièremement quelque soit la granulométrie concernée. En revanche, la comparaison des concentrations extérieures et intérieures suggère que le trafic ferroviaire est essentiellement générateur de grosses particules; les fines particules ayant pour origine la pollution de l'air extérieur.

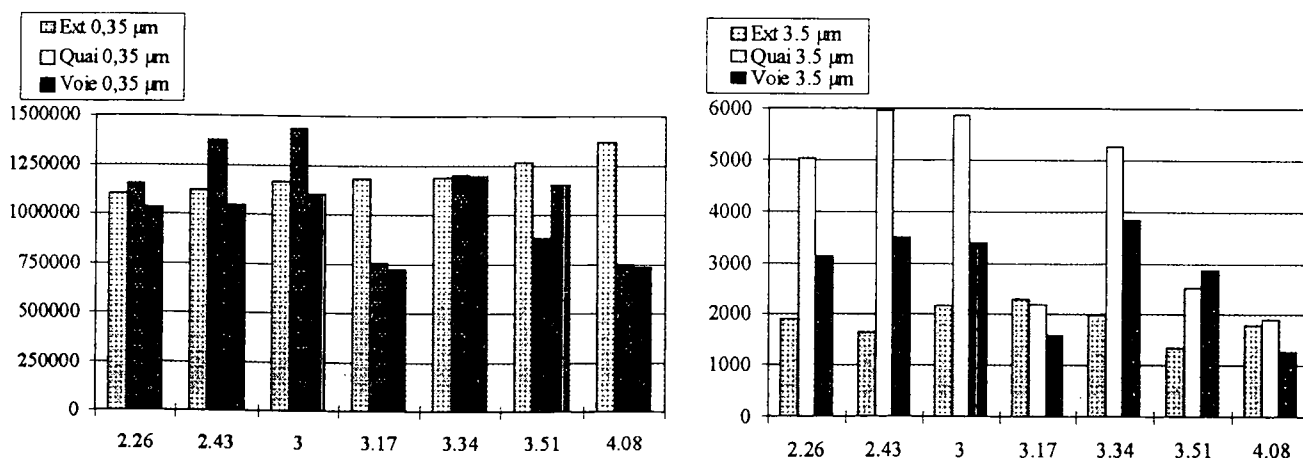


Fig. 5 et 6 : Comparaison des concentrations particulières relevées au point de référence extérieur, au niveau du quai (réf.1) et au niveau de la voie ($d_p > 0.35 \mu\text{m}$ et $d_p > 3.5 \mu\text{m}$).

Tab.I : Ce tableau présente en résumé les différentes sources particulières observées dans le milieu souterrain.

Fines Particules (0.1 - 1 µm)	Grosses Particules (2 - 10 µm)
<ul style="list-style-type: none"> • air extérieur (trafic routier) • fumée : cigarettes • freinage des trains • voyageurs 	<ul style="list-style-type: none"> • matériel roulant • travaux d'entretien et de génie civil • voyageurs

► **Répartition verticale des concentrations :**

Dans la salle des billets, la répartition horizontale et verticale des concentrations est homogène. En revanche, les mesures réalisées sur le quai ont mis en évidence un maximum des concentrations en partie haute de la station (voûte) au point 2, situé à l'extrémité du quai. Ce point semble être le siège de tourbillons provoqués par le passage des trains de chantier entraînant une perturbation de l'écoulement turbulent établi dans la station. Ces tourbillons sont alors susceptibles d'engendrer une remise en suspension des particules et peuvent être à l'origine des fortes concentrations observées en partie haute. Cette hypothèse devra être validée par la simulation numérique, grâce à un code 3D de mécanique des fluides, qui est une exigence préalable pour toute explication des phénomènes rencontrés. Aux différents autres points de mesure, les résultats sont très homogènes.

Notons que, selon les sources ASPEC (Tab.II), les concentrations mesurées en station, au niveau du quai (fig.7), demeurent inférieures à celles observées dans les ateliers mécaniques ou les bureaux fumeurs et sont du même ordre de grandeur (en période d'activité) que celles mesurées dans les bureaux climatisés ou non.

Tab.II : Concentrations particulières dans différents milieux (source : ASPEC)

Ambiances Extérieures	Ambiances Intérieures	Nombre de Particules ($d_p > 0.5 \mu\text{m}$) pour 28 litres d'air
Campagne / Temps calme		250 000
Petite ville / Temps calme		500 000
	Bureaux (climatisés ou non)	600 000
	Ateliers mécaniques	2 500 000
	Bureaux fumeurs	4 000 000
Centre urbain / Forte activité		5 000 000
Site industriel lourd		10 000 000
	Salles blanches (Empoussièrement contrôlé)	1 à 100 000

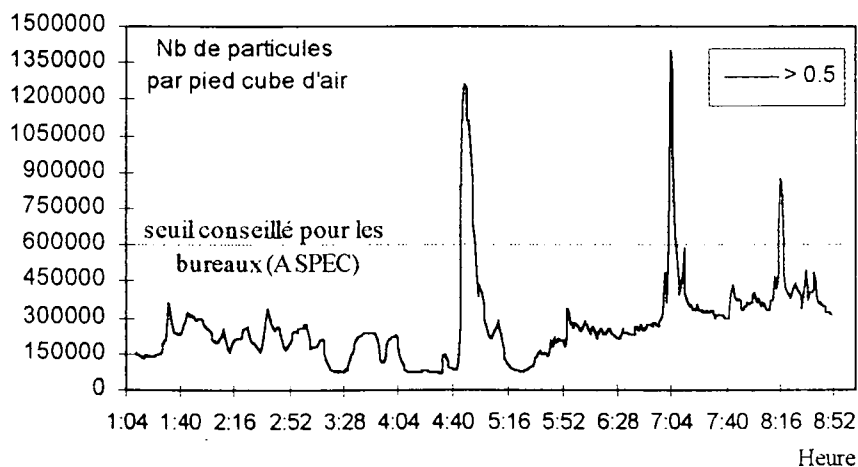


Fig.7 : Variation du nombre de particules de $d_p > 5 \mu\text{m}$ par pied cube d'air en fonction de l'heure (période 1:04 / 8:52). Point de mesure : Réf.1.

CONCLUSION

Cette étude a permis de mieux connaître la répartition spatiale des particules dans la station Saint-Sulpice. Elle met en évidence les différents paramètres d'influence en fonction de la granulométrie des particules, et souligne la forte contribution du trafic ferroviaire aux concentrations particulières. Ces résultats serviront de support, en tant que conditions aux limites notamment, à la simulation numérique. Le couplage de ces deux approches, simulation numérique et mesures, est la seule solution permettant de mieux caractériser l'aérosol du métropolitain, à partir de la connaissance des écoulements d'air en station. Elles apportent enfin les informations nécessaires au choix et à la mise en place d'un système de traitement d'air dans les stations présentant un taux d'empoussièrément élevé.

REFERENCES

- [1] Laboratoire d'Hygiène de la Ville de Paris (1995). Convention Régie Autonome des Transports Parisiens - Ville de Paris, Rapport Annuel.
- [2] MILLARD F., PARFAIT C. (1996). Définition d'un indice de qualité de l'air pour le métropolitain.
- [3] LE GUERN C. (1994). Validation d'un compteur GRIMM pour la caractérisation des particules dans l'environnement souterrain du métro parisien.
- [4] GABAY D. (1994). Bioclimatic comfort within the Paris transport network (metro and RER) and its application to the Meteor line, 8TH International conference on aerodynamics and ventilation of vehicle tunnels.
- [5] MAZOUÉ S. (1997). Comptages particulières du 27 et 28 Mai 1997 dans la station Saint-Sulpice.

ÉTALONNAGE D'UN "T E O M", MESURE EN MASSE DE L'AÉROSOL DU MÉTROPOLITAIN PARISIEN

M. B. ATTOUI*, C. PARFAIT**, A. RENOUX*, G. TYMEN***

*Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations Université Paris XII.
94010 Créteil.

** RATP, Département Environnement et Sécurité, Domaine expertises de l'environnement,
124, Rue Mont Cenis 75889 Paris.

*** Laboratoire de Recherches Appliquées Atmosphère - Hydrosphère, Université de Bretagne Occidentale,
29000 BREST.

Résumé:

Le TEOM est une microbalance qui permet la mesure de la masse d'aérosols déposés sur un filtre. Il utilise un tube oscillant sur lequel est disposé un filtre absolu (Pall-Flex). La masse d'aérosols déposés est proportionnelle à une différence de fréquence d'oscillation du tube. L'étalonnage consiste à déterminer le coefficient de proportionnalité. Dans la première partie de cette étude, nous étalonnons le TEOM à l'aide d'aérosols calibrés submicroniques (0,1 - 0,2 - 0,5 μm) et supermicroniques (1 - 2,5 - 3 - 5 - 6 - 7 - 9 μm) pour des concentrations allant de 70 à 140 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Dans la seconde partie, nous donnons les résultats d'une campagne de mesures avec le même TEOM de l'aérosol atmosphérique sur le quai d'une station du métropolitain parisien, pour une journée et pour une semaine, par tranches de quinze minutes.

1°/ Introduction

Le TEOM (Tapered Element Oscillant Microbalance) est une balance en temps réel et en continu pour la mesure de la masse d'aérosols déposés sur un filtre. La mesure est obtenue à l'aide d'un élément oscillant sur lequel est disposé un filtre chargé de recueillir les aérosols (Patashnick et Rupprecht 1980). La masse d'aérosol déposée sur le filtre est proportionnelle à la différence de fréquences de l'élément oscillant à deux instants donnés quelconques. Etalonner un TEOM revient à déterminer le coefficient de proportionnalité entre la différence de fréquences et la masse déposée sur le filtre. A l'aide d'un générateur d'aérosols monodispersés nous produisons un aérosol de concentration numérique et de diamètre connus que nous introduisons dans le TEOM. La connaissance de la masse volumique du produit aérosolisé, de la concentration volumique en nombre des aérosols ainsi que leur diamètre permettent de calculer de manière précise la concentration volumique en masse échantillonnée par le TEOM. Il suffit de faire coïncider cette valeur de la concentration avec celle affichée par le TEOM.

2°/ Description du TEOM

Le TEOM est constitué de trois parties distinctes:

1°) l'élément oscillant (formant la microbalance) est suspendu dans un boîtier dans lequel l'aérosol arrive, à travers une canne de prélèvement, par la partie supérieure (Figure 1). La canne est maintenue à température constante pour éviter des condensations intempestives des vapeurs contenues dans l'air échantillonné. En effet, le boîtier est en général dans un local où la température peut être inférieure à la température extérieure.

2°) Un boîtier de commande, de contrôle, d'affichage et de stockage des données. Livré avec un logiciel de gestion puissant, d'utilisation relativement facile, le boîtier est compact et de lecture aisée. Le logiciel permet d'accéder à un nombre élevé de combinaisons de mesures de la masse en fonction d'un nombre également élevé de combinaisons de temps de prélèvement et de mesures. Il est équipé d'une sortie RS 232 permettant de communiquer avec un ordinateur extérieur pour récupérer des données pour du stockage en base de données ou exploitation graphiques notamment.

3°) Une tête de prélèvement type PM 10 qui rappelle le coupe à 10 microns et doit pour cela, prélever avec un débit volumique de 1 m^3/h .

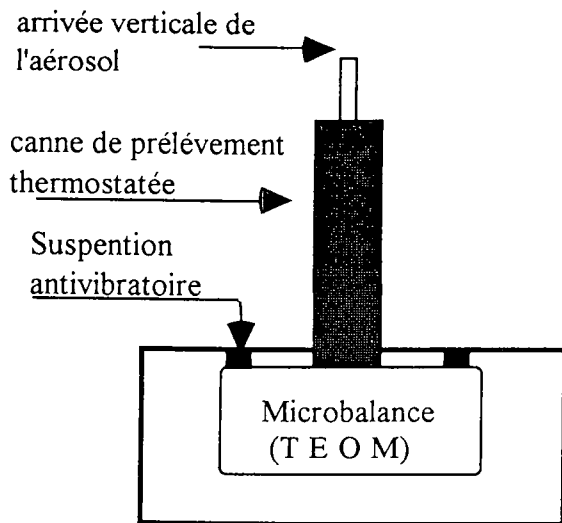


Figure 1

Boîtier de mesure contenant la microbalance, et la canne de prélèvement.

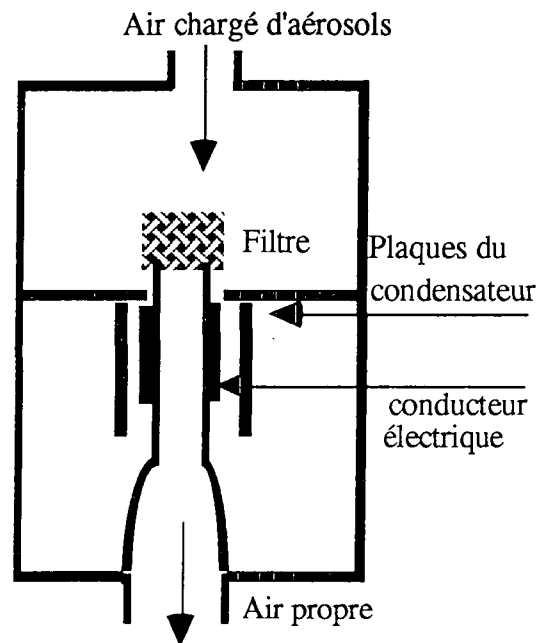


Figure -2-

Dispositif électrique de mise en oscillation du tube

3°/ Principe de fonctionnement du TEOM

Le TEOM (figure 2) est constitué principalement d'un tube creux conique dont la partie la plus large est fixe (solidaire d'un bâti). La partie supérieure est étroite et libre, elle peut donc osciller. Un filtre (Pall Flex) disposé à la partie supérieure du tube collecte les aérosols tandis que l'air filtré passe dans le tube pour être aspiré par la pompe. La fréquence d'oscillation du tube est directement liée à la masse d'aérosols déposée sur le filtre. Si f_0 est la fréquence d'oscillation initiale du tube et f_1 la fréquence au bout d'un certain temps de prélèvement du TEOM, la masse Δm d'aérosols déposés sur le filtre est donnée par la relation:

$$\Delta m = K_0 \left(\frac{1}{f_0^2} - \frac{1}{f_1^2} \right)$$

Il nous faut donc déterminer le coefficient de proportionnalité K_0

ETALONNAGE DU T.E.O.M.

Le dispositif expérimental qui nous permet d'étalonner le TEOM est représenté sur la figure 3.

Il comprend:

-) une sphère de prélèvement de 800 litres environ équipée d'un ventilateur d'homogénéisation de la concentration en aérosols,
-) un générateur d'aérosols type MAGE,
-) un compteur de noyaux de condensation (CNC),
-) un compteur optique de particule (COP).

La tête de prélèvement PM10 est bien sûr disposée à l'intérieur de la sphère à la verticale du TEOM. Son débit d'aspiration est de $1 \text{ m}^3/\text{h}$. Nous disposons une entrée d'air filtré dans la sphère pour compenser la différence de débit entre le générateur et le TEOM. En effet, le générateur MAGE fonctionne, lui, avec un débit de seulement 240 litres par heure.

La concentration en aérosols à la sortie du MAGE peut dépasser pour les diamètres les plus faibles (Peters et Altman 1993) les 10^7 particules par centimètre cube. L'air filtré introduit dans la sphère permet donc, en plus, de diluer cette concentration de manière à pouvoir la mesurer de manière précise avec le compteur de noyaux de condensation CNC. Le compteur optique de particules Pallas permet de contrôler en permanence le diamètre de l'aérosol généré.

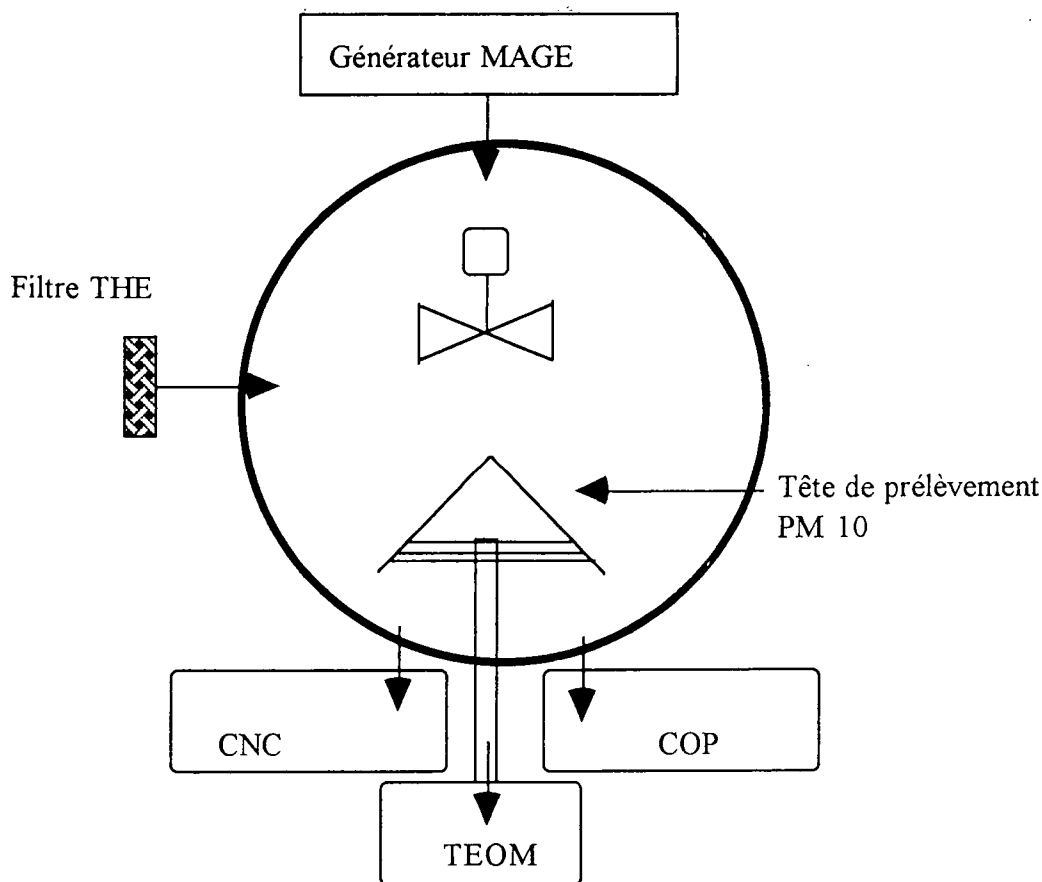


Figure 3 Dispositif expérimental d'étalonnage du TEOM.

Principe de fonctionnement du générateur MAGE:

Le principe de fonctionnement du MAGE est représenté sur la figure 5. Il est constitué par

-) un générateur de noyaux de condensation de NaCl, qui, par pulvérisation pneumatique d'eau salée (15 à 20 mg/l), génère des noyaux de condensation dont le diamètre médian est égal à 0,04 μm environ. La concentration volumique en noyaux est de quelques 10^5 par centimètre cube. A l'aide d'un filtre placé sur un circuit de dérivation, on peut réduire cette concentration par dilution jusqu'à quelques 10^4 particules par centimètre cube.

-) un générateur de vapeur constitué d'un four thermostaté à l'intérieur duquel on dispose une substance liquide ou solide. La quantité de vapeur produite est fonction de la température du four. (variable de 200 à 300°C). Le gaz vecteur chargé des noyaux de condensation plonge dans le produit à aérosoliser dans le four avant d'arriver dans

-) une colonne dite "réchauffeur", dont on contrôle la température, (légèrement supérieure à celle du four) où le mélange noyaux de condensation - vapeur est porté à l'équilibre thermique avant d'arriver dans

-) une cheminée de condensation, à température ambiante, dans laquelle la vapeur se condense sur les noyaux de sel.

L'aérosol ainsi produit (liquide ou solide) a un diamètre médian compris entre 0,2 et 8 μm . La concentration en noyaux de sel, la température du four (pour agir sur la quantité de vapeur générée) et la température du réchauffeur permettent de faire varier le diamètre de l'aérosol produit. Un courant d'air filtré tout le long du condenseur permet, au mélange vapeur noyaux de sel, de rester au centre du tube pour une meilleure monodispersion.

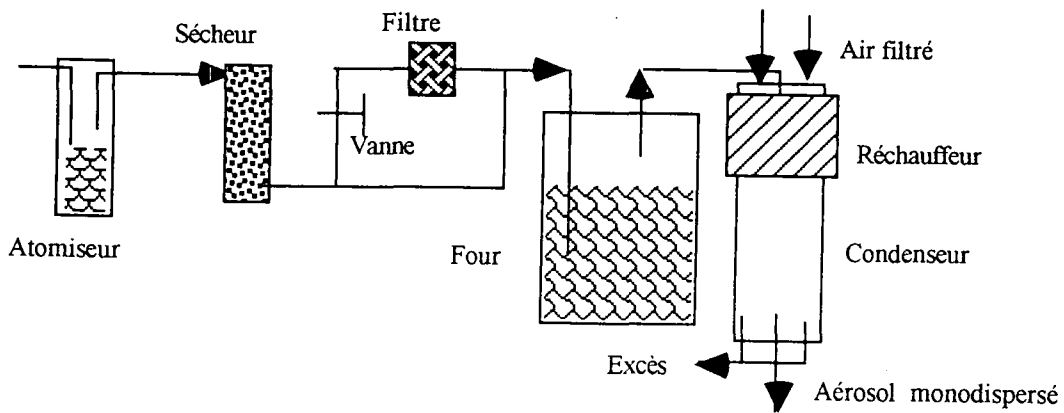


Figure - 4 - Schéma de principe du générateur MAGE.

Résultats expérimentaux:

Avec du di-éthyl-2 hexyle sébaçate (liquide) de masse volumique égale à 910 kg/m^3 , nous générons les diamètres suivants: $0,1 - 0,2 - 0,5 - 1$ et $2,5 \mu\text{m}$; $3 - 5 - 6 - 7$ et $9 \mu\text{m}$ sont des particules solides de cire végétale de masse volumique égale à 910 kg/m^3

La connaissance précise du diamètre nous permet de calculer le volume V_p de la particule,

$V_p = \frac{4}{3} \pi R^3$ où R est le rayon de la particule. La masse m_p de chaque particule est donnée par la relation $m_p = V_p \cdot \rho_p$ où ρ_p est la masse volumique de la particule (qui est celle de la substance aérosolisée). La concentration (en nombre) C par unité de volume permet de remonter à la concentration massique par unité de volume par la relation:

$$M = m_p \cdot C$$

Cette valeur "calculée" de la concentration massique générée est ensuite comparée à la valeur donnée par le TEOM. Nous nous plaçons dans les conditions d'exploitation sur le terrain du TEOM et qui sont préconisées par le Constructeur lui-même. Les résultats de nos mesures sont donnés par la figure 5. Comme nous pouvons le voir, le TEOM ne répond pas de la même manière pour les basses concentrations et pour les hautes. En effet, pour les basses concentrations la valeur mesurée est sous estimée alors que c'est l'inverse pour les fortes concentrations.

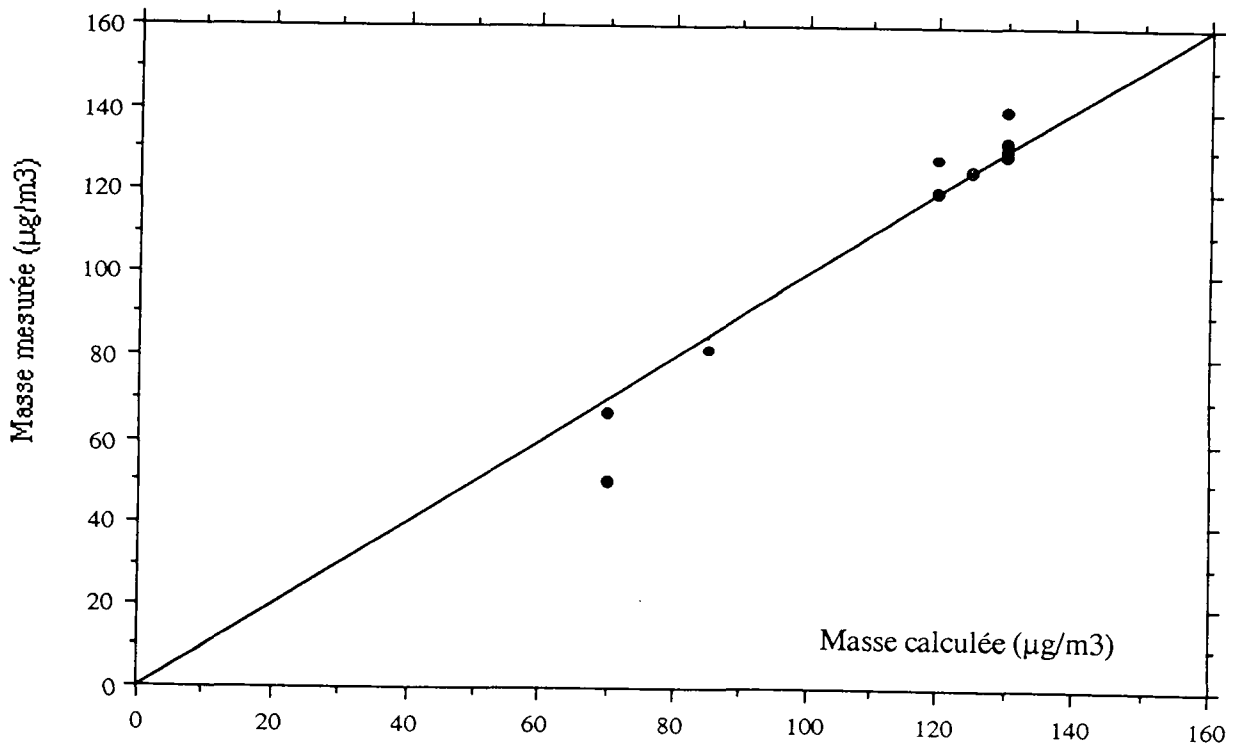


Figure - 5 - Réponse du TEOM avant étalonnage.

La figure 6 donne les résultats des mesures effectuées après introduction de la nouvelle valeur du coefficient de proportionnalité K_0 obtenue à l'aide de la masse d'aérosols calculée, dans le logiciel du TEOM.

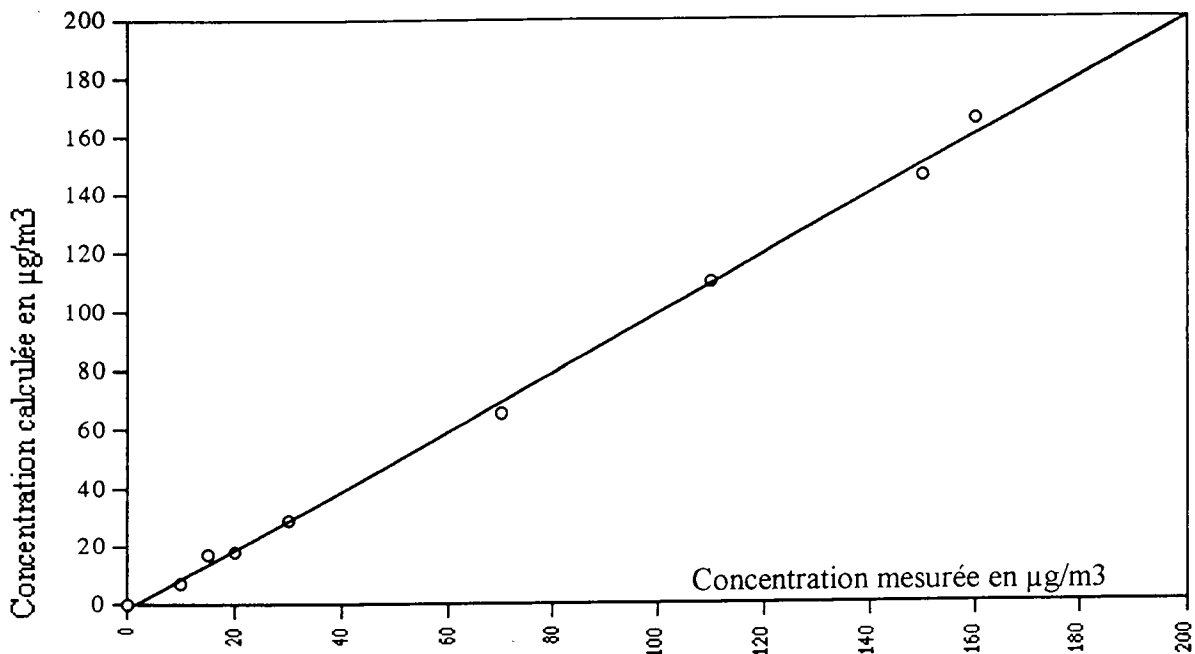


Figure - 6 - Réponse du TEOM après étalonnage

RESULTATS DE LA CAMPAGNE DE MESURES DANS LE METRO:

Le TEOM est installé sur le quai de la station CHATELET sur la ligne Porte de Clignancourt-Porte d'Orléans, direction Porte de Clignancourt. La tête de prélèvement PM 10 est disposée à deux mètres du sol du quai. La balance et le boîtier de commande sont installés dans un compartiment fermé sur le quai. La mesure se fait de manière continue pendant toute l'année. Les temps d'échantillonnage sont de quinze minutes. A titre d'exemple, la figure 7 donne la concentration massique toute les quinze minutes sur une journée depuis une heure du matin jusqu'au lendemain une heure du matin.

La figure 8 donne la concentration massique sur une semaine (du 09 au 11 novembre 1997) toutes les quinze minutes.

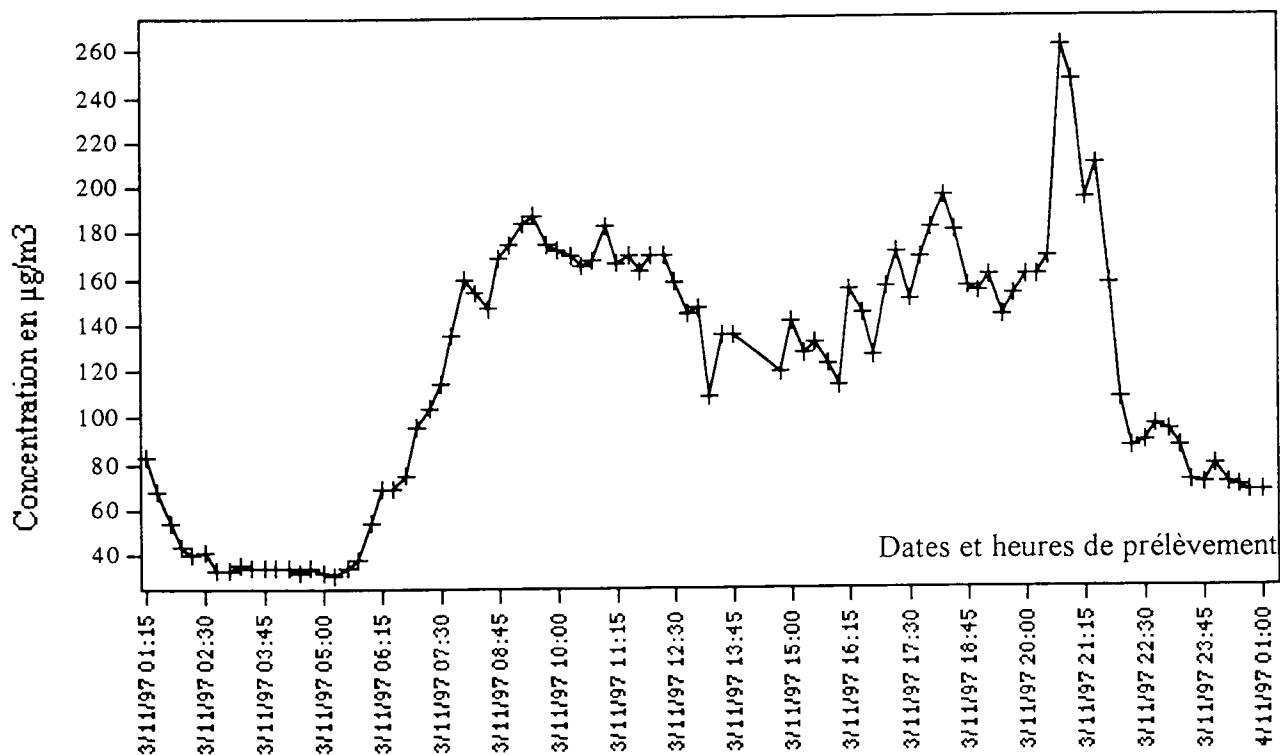


Figure - 7- Variations de la concentration massique en fonction du temps pendant une journée à la station CHATELET

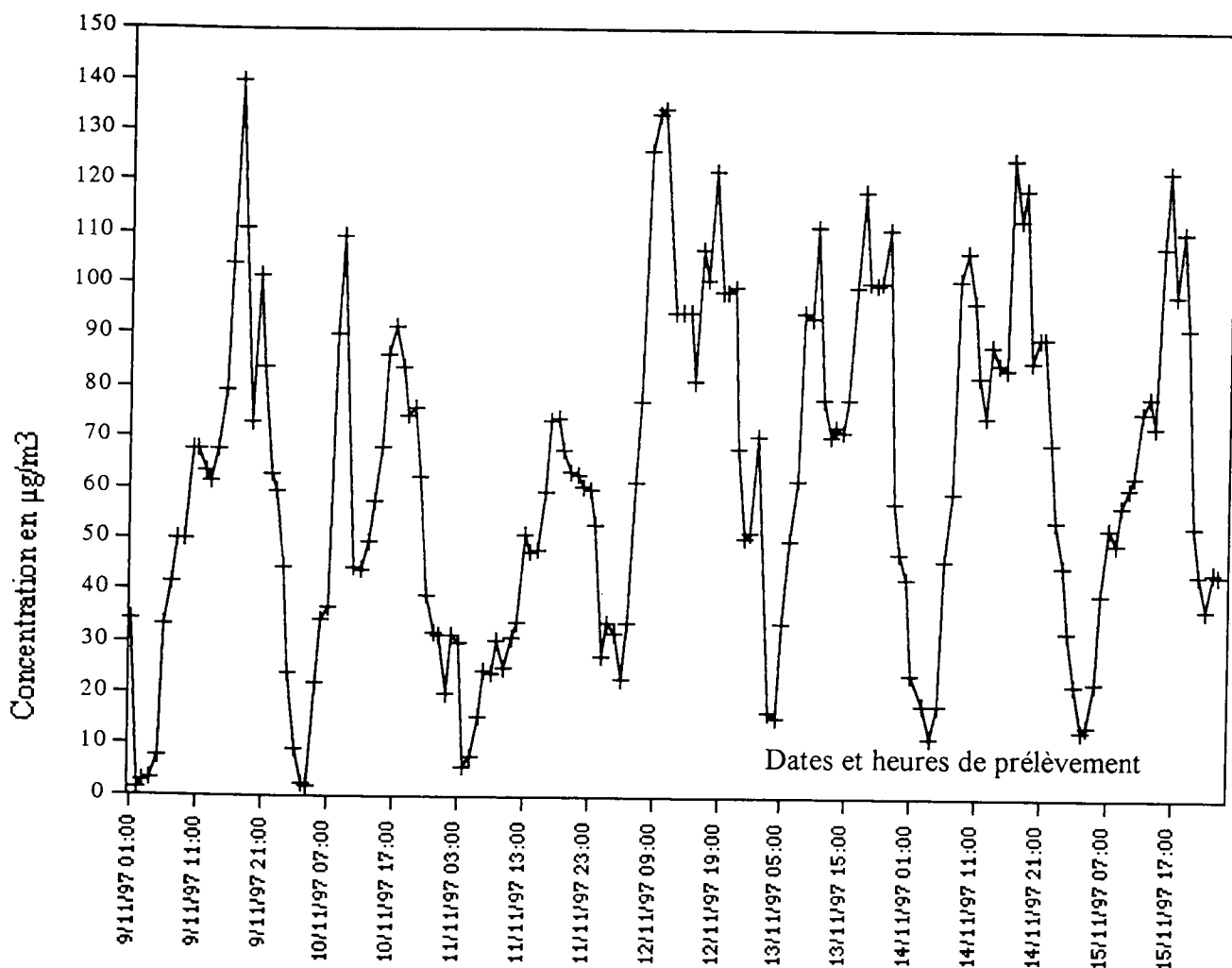


Figure - 8- Variations de la concentration massique en fonction du temps pendant une semaine à la station CHATELET

Conclusion:

Dans notre étude, nous générons des aérosols étalons avec un générateur MAGE (monodisperse aerosol generator) qui utilise l'évaporation condensation contrôlée sur des noyaux de condensation de NaCl. Notre dispositif expérimental nous permet de jouer sur la concentration volumique (en nombre) envoyée au TEOM, sur le diamètre de l'aérosol et sur sa nature (liquide ou solide). Nous constatons une différence significative entre la masse réelle d'aérosols envoyée au TEOM et la masse mesurée par lui. Ces manipulations préliminaires nous permettent de calculer le coefficient K_0 de proportionnalité qu'utilise le logiciel de traitement des mesures du TEOM. La nouvelle valeur de K , une fois entrée dans le programme de calcul du logiciel nous donne de bien meilleurs résultats quand à la comparaison les valeurs affichées - valeurs calculées. En fait, le TEOM demande un certain nombre de précautions quant à son utilisation. Il est très sensible aux vibrations malgré son système anti vibratoire. Il ne peut être utilisé dans un véhicule par exemple. La tête de prélèvement doit être nettoyée assez souvent pour la débarrasser des aérosols recueillis par l'impacteur dont elle est équipée. Ceci montre bien que le TEOM, comme tout appareil de mesures, doit être vérifié et étalonné régulièrement.

Les résultats obtenus à l'aide d'un TEOM dans le métro parisien montrent que le niveau d'empoussièrément suit le niveau du trafic des rames. En effet, on voit qu'il baisse dès l'arrêt du trafic (01 heure du matin) et continue à diminuer jusqu'à la reprise. En revanche, Les niveaux sont relativement élevés aux heures de pointe. Ceci est dû à l'effet piston des trains qui arrivent en station, qui agit sur la mise en suspension des particules générées par les usagers, les locaux et les rames.

Références:

Patashnick, H. G. Rupprecht (1980): In *Proceedings Advances in Particulate Sampling and Measurement*, ed. W.B. Smith, P.264, EPA-600/9-80-004. U.S. Environmental Protection Agency.

Peters C., J. Altman (1993): *Journal of Aerosol Medicine*, Vol.6, P. 307-315.I

ETUDE ET ANALYSE DES DEPOTS D'AEROSOLS DANS L'ENCEINTE PITEAS PAR SEDIMENTATION, THERMO ET DIFFUSIOPHORESE

V. SALDO*, E. VERLOO*, A. ZOULALIAN**

* Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire/Département de Recherches en Sécurité
CEA - Cadarache - 13108 St Paul Lez Durance Cedex

** LERMAB-ENSTIB - Université Henri Poincaré Nancy 1 - B.P. 239 -
54506 Vandoeuvre-Lès-Nancy Cedex

ABSTRACT

In an hypothetic severe accident on a PWR (pressurised water reactor), the core melting induces, in particular, hygroscopic aerosols which reach the containment after their transport in the primary circuit, where they can be deposited by different mechanisms such as sedimentation, thermo and diffusiophoresis. To have a better knowledge of the deposit kinetics, ECC took the decision to finance an "Aerosol Physics in Containment" project and the Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN) was selected to do two runs in the Piteas vessel which represents a 3 m³ model containment. We provide in this paper the deposition rate of an hygroscopic aerosol during the three steps of the runs and compare them with the values calculated with the classical deposit laws used for sedimentation, thermo and diffusiophoresis deposition rates.

Key words : Aerosol, Containment, Sedimentation, Thermo and Diffusiophoresis.

1 INTRODUCTION

Au cours d'un hypothétique accident grave sur un réacteur nucléaire à eau pressurisée (REP), la fusion du cœur du réacteur entraîne le relâchement de produits de fission dont un certain nombre sous forme d'aérosols. Transportés dans le circuit primaire par un écoulement de vapeur d'eau et d'incondensables, les aérosols atteindront l'enceinte de confinement par la brèche. A ce stade, les aérosols peuvent se déposer dans l'enceinte par différents mécanismes et plus particulièrement par sédimentation, thermo et diffusiophorèse.

Afin d'avoir une meilleure connaissance de ces trois types de dépôt dans l'enceinte, la communauté européenne a décidé de participer au financement du projet "Aerosol Physics in Containment" et dans ce cadre l'Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire a été chargé de réaliser deux essais analytiques dans la cuve PITEAS, maquette d'un volume voisin de 3 m³ représentative de l'enceinte d'un REP [1] [2]. L'objectif de ces deux essais, se différenciant essentiellement par l'humidité initiale de l'atmosphère gazeuse, est d'examiner les mécanismes de dépôts d'aérosols hygroscopiques de CsI générés dans l'enceinte au cours de trois étapes successives, à savoir :

- une première étape de sédimentation isotherme,
- une deuxième étape où le dépôt de sédimentation est associé à un dépôt par thermo et diffusiophorèse suite à une condensation de la vapeur d'eau présente dans la cuve,
- une troisième étape où le dépôt de sédimentation est associé à un dépôt par thermophorèse suite au maintien dans la cuve d'un gradient de température.

L'analyse des trois étapes permet d'accéder aux vitesses de dépôt et de comparer les valeurs obtenues à celles susceptibles d'être estimées par les modèles classiques de cinétique de dépôt introduits dans les codes de sûreté.

2 DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET DEROULEMENT DES ESSAIS - GRANDEURS MESUREES

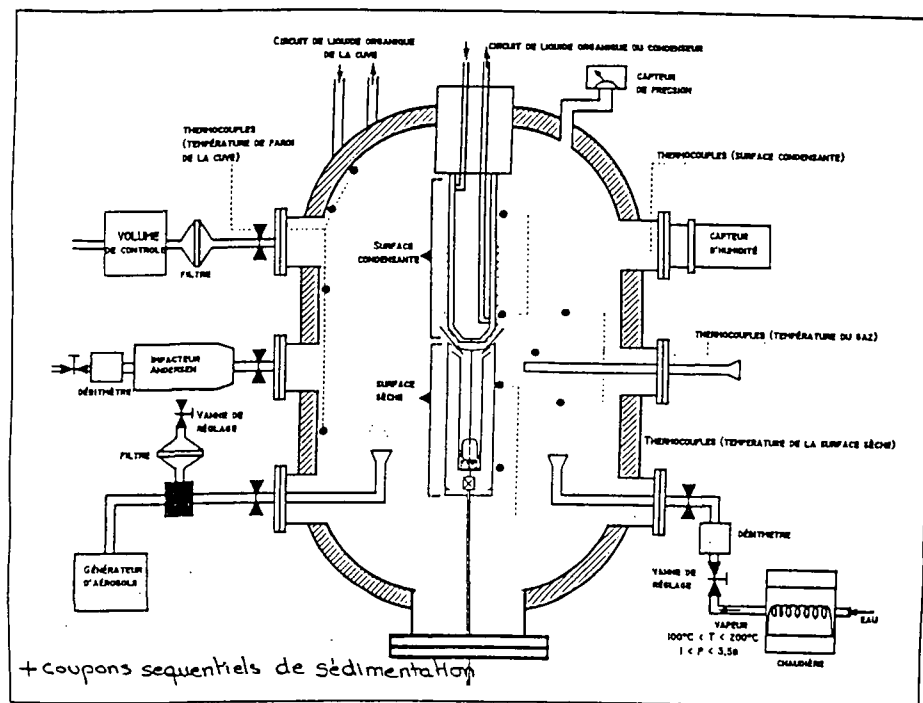


Figure 1: Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental comprend (Figure 1) :

- une cuve cylindrique de volume total $2,92 \text{ m}^3$, de diamètre intérieur $1,18 \text{ m}$ et de 3 m de hauteur dans laquelle sont introduits la phase gazeuse et les aérosols. La cuve peut être chauffée par une circulation d'huile dans une enveloppe extérieure. La température maximale de chauffage est de 160°C et la pression maximale de fonctionnement de la cuve ne peut dépasser 5 bar ,
- un condenseur coaxial permettant de condenser la vapeur d'eau contenue dans la cuve, muni d'un réservoir refroidi permettant de recueillir le condensat. La surface condensante est de $0,773 \text{ m}^2$,
- un générateur ultrasonore d'aérosols qui permet de produire des aérosols d'iodure de césium dont le diamètre aérodynamique médian en masse (AMMD) est compris entre 1 et $5 \mu\text{m}$.

Le protocole expérimental adopté pour les deux essais est le suivant : après introduction et stabilisation en température de la phase gazeuse, la cuve est alimentée en aérosols anhydres de CsI. A l'issue de cette alimentation, on observe tout d'abord en système fermé isotherme un dépôt des aérosols par sédimentation. C'est la première étape des essais. A un instant donné, on procède rapidement au refroidissement du condenseur coaxial à une température inférieure à la température de rosée de la phase gazeuse présente dans la cuve. La condensation de la vapeur d'eau est accompagnée par un piégeage des aérosols par thermo et diffusiophorèse. Ce dépôt d'aérosols se superpose au dépôt par sédimentation. C'est la deuxième étape de l'essai. Lorsque la pression de vapeur d'eau devient égale à la pression de vapeur saturante de l'eau à la température du condenseur, le dépôt des aérosols sur le condenseur se limite à un dépôt par thermophorèse. C'est la troisième étape de l'essai caractérisée par des dépôts d'aérosols par sédimentation et thermophorèse.

Le tableau 1 résume certaines grandeurs caractéristiques des deux essais. En dehors de l'humidité initiale de la phase gazeuse, les deux essais se différencient par la valeur de la concentration initiale des aérosols qui est beaucoup plus élevée dans l'essai 1 que dans l'essai 2.

Pour suivre l'évolution des aérosols au sein de l'enceinte, différentes grandeurs sont mesurées, à savoir :

- la concentration en aérosols au sein de la phase gazeuse,
- la masse d'eau condensée et la masse de CsI dans l'eau condensée,
- la masse d'aérosols déposée par sédimentation au fond de la cuve. Cette masse est obtenue en disposant au fond de la cuve des coupons de surface connue, exposés à des temps différents,
- la distribution granulométrique des aérosols obtenue soit à l'aide d'impacteurs du type Andersen Mark II, soit par analyse microscopique des coupons disposés au fond de la cuve.

Essai	Essai 1			Essai 2		
	1° étape	2° étape	3° étape	1° étape	2° étape	3° étape
Durée (min)	18	50	50	26	55	60
Température cuve (°C)	120	114	114	125	120	120
Température condenseur (°C)	120	120-70	70	123	123-71	71
Pression totale (bar)	3,9-3,8	3,8-2,4	2,4-2,1	3,9-3,75	3,75-1,82	1,82-1,5
Humidité relative (%)	70	70-17	17	87	87-16	16
Concentration initiale en aérosols (g/m ³)	0,399	0,206	0,042	0,023	0,0148	0,004

Tableau 1 - Grandeurs caractéristiques des essais 1 et 2

A titre d'exemple, nous donnons respectivement sur les figures 2, 3, 4 les valeurs de la concentration en aérosols en phase gazeuse, la masse cumulée d'eau condensée et la masse d'aérosol solubilisée dans le condensat et enfin la masse spécifique cumulée d'aérosols déposés par sédimentation sur les coupons relatives aux trois étapes de l'essai 1.

Des courbes similaires ont été obtenues pour l'essai 2.

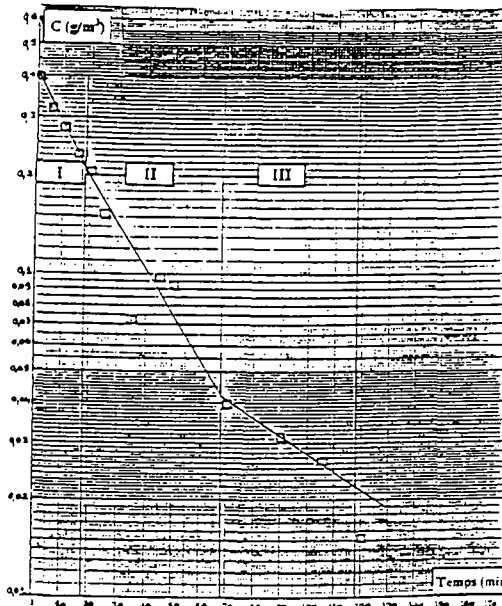


Figure 2 : Variation de la concentration en aérosols

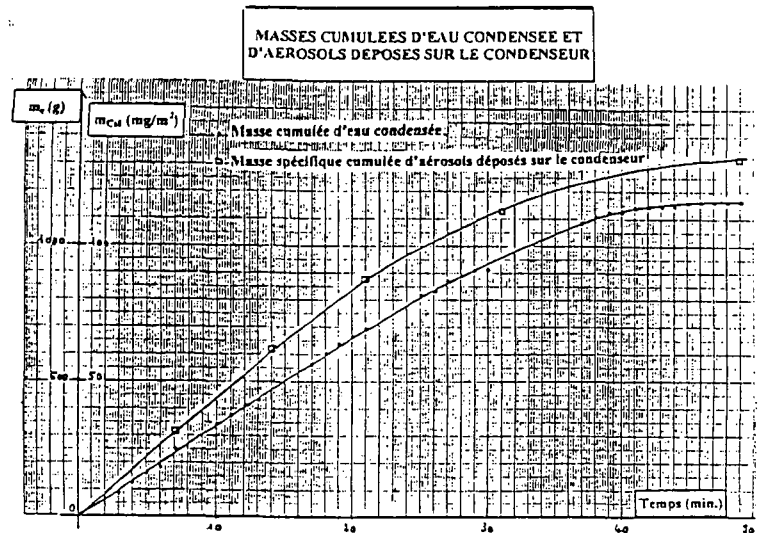


Figure 3 : Masses d'eau condensée et d'aérosols déposés sur le condenseur

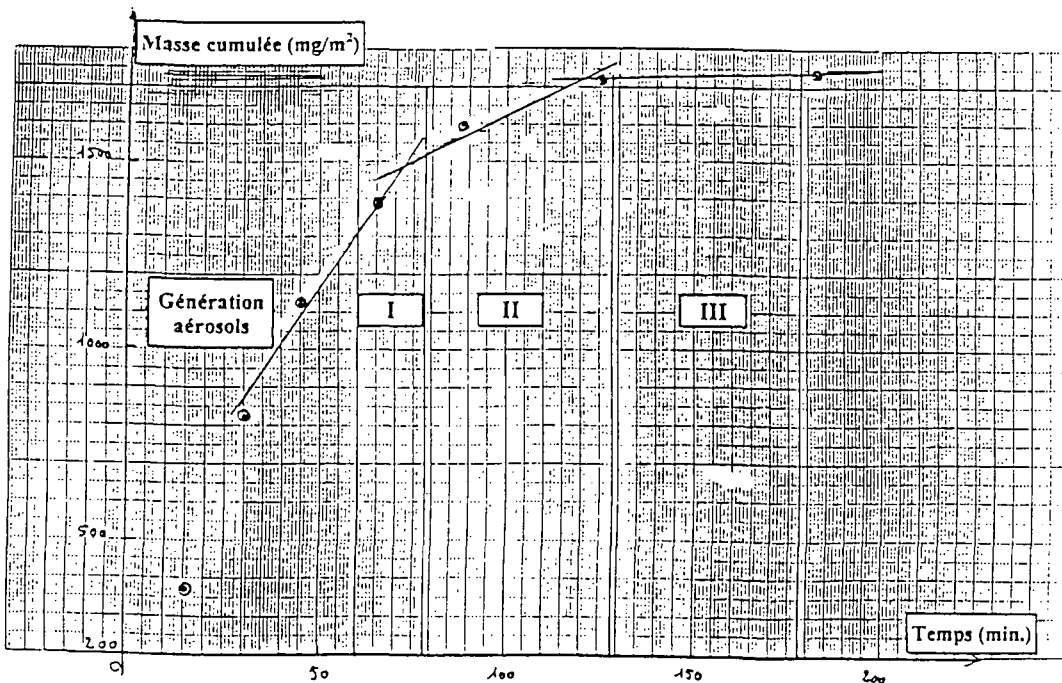


Figure 4 - Masse spécifique d'aérosols déposés sur les coupons

3 ANALYSE DES DEUX ESSAIS - DETERMINATION DES VITESSES DE DEPOT DES AEROSOLS AU COURS DES TROIS ETAPES

3.1 ETUDE DE LA PREMIERE ETAPE

Au cours de cette étape isotherme, le dépôt des aérosols se fait seulement par sédimentation et le bilan massique des aérosols à l'instant t s'écrit :

$$\frac{VdC}{dt} = -v_s CS \quad (1)$$

qui par intégration conduit à :

$$\text{Ln} \frac{C}{C_0} = -\frac{\overline{v_s} t}{H} \quad (2)$$

$$\text{avec } \overline{v_s} = \frac{1}{t} \int_0^t v_s(x) dx \text{ et } H = V/S \quad (3)$$

Pour la cuve Pitéas, H a été estimé à 2,65 m [3].

Les variations des concentrations des aérosols au cours de la 1ère étape permettent en utilisant la relation (2) d'estimer les vitesses de sédimentation. On trouve :

$$\overline{v_s} = 1,61 \times 10^{-3} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 1}$$

$$\overline{v_s} = 1,14 \times 10^{-3} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 2.}$$

Ces valeurs sont compatibles avec celles que l'on peut obtenir à partir des masses déposées sur les coupons en prenant pour la concentration en aérosols une valeur moyenne des concentrations au cours de l'étape.

De même, nous pouvons chercher à vérifier si les valeurs trouvées sont voisines de celles que l'on peut déduire à partir de la connaissance du diamètre médian en masse des aérosols.

Les aérosols de CsI étant hygroscopiques, ils absorbent de la vapeur d'eau et donc grossissent. En admettant que ce grossissement est rapide, le rayon à l'équilibre atteint par les aérosols est tel que :

$$\rho_{\infty} / \rho^{\circ}(T_{\infty}) = \frac{1}{1+i} \frac{Me \rho_s}{Ms \rho_e} \frac{1}{\left(\frac{r_{\infty}}{r_0}\right)^3 - 1} \exp \frac{2\sigma Me}{\frac{r_{\infty}}{r_0} \left[r_0 \left(\rho_e + (\rho_s - \rho_e) \left(\frac{r_0}{r_{\infty}}\right)^3 \right) \right] RT} \quad (4)$$

Avec $\rho_{\infty} / \rho^{\circ}(T_{\infty})$ l'humidité relative de l'air, $\frac{r_{\infty}}{r_0}$ le taux de grossissement à l'équilibre, r_0 désignant le rayon des

aérosols anhydres. Compte tenu des valeurs de r_0 , σ , Me , Ms , ρ_e , ρ_s le terme exponentiel de la relation (4) est voisin de 1. Le premier membre de la relation (4) représente l'humidité relative de la phase gazeuse. En prenant les valeurs suivantes : facteur de Vant'Hoff $i = 1,75$, $Me = 18 \times 10^{-3} \text{ kg mole}^{-1}$, $Ms = 260 \times 10^{-3} \text{ kg mole}^{-1}$, $\rho_e = 1000 \text{ kg m}^{-3}$, $\rho_s = 4500 \text{ kg m}^{-3}$, on trouve :

$$\frac{r_{\infty}}{r_0} = 1,314 \text{ pour l'essai 1}$$

$$\frac{r_{\infty}}{r_0} = 1,668 \text{ pour l'essai 2.}$$

La particule d'aérosol sédimentant en régime de Stokes, la vitesse de sédimentation est donnée par la relation :

$$\overline{v_s} = \frac{2}{9\mu_f} \left[\rho_e + (\rho_s - \rho_e) \left(\frac{r_0}{r_{\infty}}\right)^3 \right] g \left(\frac{r_{\infty}}{r_0}\right)^2 r_0^2 \quad (5)$$

Les concentrations mesurées au cours des essais sont suffisamment faibles pour ne pas prendre en compte le phénomène d'agglomération des particules.

A 120°C, pour l'essai 1, la viscosité μ_f peut être estimée à $1,8 \times 10^{-5} \text{ Pa.s}$. La valeur de r_0 est assimilée au rayon médian en masse. La valeur déduite des impacteurs est nettement inférieure à la valeur r_0 déduite de l'analyse microscopique des coupons, la valeur de v_s évaluée à l'aide de la relation (5) est telle que :

$$\overline{v_s} = 1,53 \times 10^{-3} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 1}$$

Un calcul similaire n'a pu être effectué sur l'essai 2 car la distribution des tailles des particules d'aérosols sur les coupons n'est pas significative, le nombre de particules déposées étant trop faible.

En se limitant à l'essai 1, on peut donc dire que la vitesse de sédimentation d'aérosols hygroscopiques évaluée par la relation (5) est en très bon accord avec la valeur expérimentale.

3.2 ETUDE DE LA DEUXIEME ETAPE

L'application de la relation (2) à la variation de la concentration des aérosols en phase gazeuse au cours de la deuxième étape permet d'obtenir une valeur moyenne de la vitesse apparente de sédimentation. On trouve expérimentalement :

$$\overline{v_s^{app}} = 1,24 \times 10^{-3} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 1}$$

$$\overline{v_s^{app}} = 0,97 \times 10^{-3} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 2.}$$

En réalité, cette vitesse apparente est reliée à la vitesse moyenne de sédimentation et à la vitesse moyenne de dépôt par thermo et diffusiophorèse par la relation :

$$\overline{v_s^{app}} = \overline{v_s} + \overline{v_{DTH}} \frac{Sc}{S} \quad (6)$$

où Sc est la surface active du condenseur coaxial ($Sc = 0,773 \text{ m}^2$) et S la surface horizontale sur laquelle apparaît la sédimentation ($S = 1,1 \text{ m}^2$).

Expérimentalement la vitesse de sédimentation peut être obtenue à partir des masses d'aérosols déposés sur les coupons. On trouve :

$$\overline{v_s} = 6,5 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 1}$$

$$\overline{v_s} = 8 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 2.}$$

Pour l'essai 1, la valeur de $\overline{v_s}$, obtenue en utilisant la relation (5) avec le rayon médian anhydre déduit de la distribution mesurée sur les coupons, de $8,7 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1}$ est compatible avec la valeur expérimentale.

A partir des masses d'iodure de césium déposées sur le condenseur, solubilisées dans le condensat, il est possible, en se donnant une valeur moyenne de la concentration d'aérosols au cours de la deuxième étape, d'estimer une valeur moyenne de la vitesse de thermo-diffusiophorèse. On trouve :

$$\overline{v_{DTH}} = 4,5 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 1} \quad \overline{v_{DTH}} = 8,5 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 2.}$$

Au cours de la deuxième étape, on observe une proportionnalité entre la masse d'eau condensée et la masse d'aérosols solubilisée. A partir de la masse d'eau condensée on peut alors calculer une valeur moyenne de la vitesse de Stefan à l'aide de la relation :

$$\overline{v^*} = \frac{me}{Me \Delta t} \frac{l}{S_c (C_e + C_i)} = \frac{me}{Me \Delta t} \frac{RT}{S_c P_t} \quad (7)$$

me est la masse d'eau condensée durant l'intervalle de temps Δt .

P_t est la pression totale de la phase gazeuse. En prenant pour P_t une valeur moyenne sur l'intervalle Δt , on trouve :

$$\overline{v^*} = 4,2 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 1} \quad \overline{v^*} = 7,9 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 2.}$$

Connaissant la vitesse de Stefan, la vitesse de dépôt par diffusiophorèse v_D peut être évaluée à l'aide de la relation de Waldmann [4], soit :

$$\overline{v_D} = K_D \overline{v^*} \quad (8) \quad \text{avec} \quad K_D = \frac{\sqrt{Me}}{xe\sqrt{Me} + (1-xe)\sqrt{Mi}} \quad (9)$$

xe est la fraction volumique de la vapeur d'eau dans la phase gazeuse constituée par les molécules d'eau et de gaz inerte. Au début de la deuxième étape, les valeurs de K_D sont égales à :

$$K_D = 0,857 \text{ pour l'essai 1}$$

$$K_D = 0,902 \text{ pour l'essai 2.}$$

Les valeurs de K_D étant inférieures à 1, les valeurs de $\overline{v_D}$ déduites de $\overline{v^*}$ sont inférieures à $\overline{v^*}$ et donc inférieures aux valeurs de $\overline{v_{DTH}}$. Les différences n'excèdent pas 20 % mais cette estimation par défaut montre qu'une partie du dépôt des aérosols pourrait être due au phénomène de thermophorèse dans la mesure où la condensation a

lieu en présence d'un gradient de température. Une estimation de la vitesse de thermophorèse (voir 3^e étape ci-après) montre que la vitesse de thermophorèse est de l'ordre de $2 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1}$. En définitive, la vitesse de dépôt par thermodiffusiophorèse peut être estimée avec une bonne précision en tenant compte de la vitesse de Stefan et de la vitesse de thermophorèse. Nous confirmons ainsi les résultats obtenus dans le programme IPSN Tuba diffusiophorèse [5].

Connaissant les valeurs expérimentales de $\overline{v_s}$ et de $\overline{v_{DTH}}$, on peut évaluer la vitesse de sédimentation apparente $\overline{v_s^{app}}$. On trouve :

$$\overline{v_s^{app}} = 0,97 \times 10^{-3} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 1} \quad \overline{v_s^{app}} = 1,40 \times 10^{-3} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 2}$$

L'accord avec les valeurs de $\overline{v_s^{app}}$ obtenues à partir de la variation de la concentration des aérosols est satisfait à $\pm 30\%$ mais compte tenu des incertitudes liées à la détermination de certaines vitesses de dépôt, on peut considérer que la vitesse de dépôt dans la deuxième étape est bien égale à la somme de la vitesse de sédimentation et de la vitesse de thermo-diffusiophorèse pondérée par les fractions de surface sur laquelle apparaissent ces dépôts.

3.3 ETUDE DE LA TROISIEME ETAPE

L'application de la relation (2) à la variation de la concentration des aérosols en phase gazeuse au cours de la troisième étape permet d'obtenir une valeur moyenne de la vitesse apparente de sédimentation. On trouve expérimentalement :

$$\overline{v_s^{app}} = 5,5 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 1} \quad \overline{v_s^{app}} = 5,7 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 2.}$$

Cette vitesse apparente est reliée à la vitesse moyenne de sédimentation et à la vitesse moyenne de dépôt par thermophorèse par la relation :

$$\overline{v_s^{app}} = \overline{v_s} + \overline{v_{TH}} \frac{S_c}{S} \quad (10)$$

Expérimentalement la vitesse de sédimentation peut être obtenue à partir des masses d'aérosols déposées sur les coupons. On trouve :

$$\overline{v_s} = 2,0 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 1} \quad \overline{v_s} = 2,6 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1} \text{ pour l'essai 2.}$$

Pour l'essai 1, la valeur de $\overline{v_s}$ obtenue en utilisant la relation (5) avec le rayon médian anhydre déduit de la distribution mesurée sur les coupons, soit $\overline{v_s} = 2,6 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1}$ est compatible avec la valeur expérimentale compte tenu des incertitudes sur les déterminations expérimentales de $\overline{v_s}$ ($\pm 10\%$) et de $\frac{r_\infty}{r_0}$ ($\pm 10\%$).

Au cours de cette étape, une partie des aérosols est également piégée par thermophorèse suite au gradient de température entre la phase gazeuse et la surface du condenseur. La vitesse de thermophorèse est telle que :

$$\overline{v_{TH}} = -K_T \frac{v}{T} \nabla T = K_T \text{Pr} \frac{h \Delta T}{\rho C_p T} \quad (11)$$

Pour l'essai 1, en prenant $T = 387 \text{ K}$, $\Delta T = 50 \text{ K}$, $\rho = 1,97 \text{ kg m}^{-3}$, $C_p = 1200 \text{ J/kg/K}$, $K_T \text{Pr} = 0,20$, $h = 20 \text{ W/m}^2/\text{K}$, on trouve :

$$\overline{v_{TH}} = 2,2 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1}$$

$$\text{Par suite, la vitesse apparente de sédimentation est telle que : } \overline{v_s^{app}} = \overline{v_s} + \overline{v_{TH}} \frac{S_c}{S} = 3,55 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1} \quad (10)$$

Bien que cette valeur soit inférieure à la valeur expérimentale, elle reste tout à fait compatible avec celle déduite des mesures des concentrations d'aérosols en phase gazeuse. On peut noter qu'au cours de la 3^e étape, le dépôt par thermophorèse est loin d'être négligeable devant le dépôt dû à la sédimentation.

4 MODELISATION DE L'ESSAI 1 - CONCLUSION

La modélisation ne portera que sur l'essai 1 dans la mesure où la distribution des dimensions des particules d'aérosols sur les coupons n'a pu être mesurée que sur cet essai. Pour chacune des étapes, on connaît : les températures de la phase gazeuse et du condenseur, les pressions totales initiale et finale, la concentration initiale d'aérosols, les compositions initiale et finale de la phase gazeuse, le rayon médian anhydre des aérosols et la durée des étapes.

A partir de ces grandeurs, on calcule les propriétés physiques du mélange gazeux, les vitesses de dépôt spécifiques aux étapes et la variation de concentration des aérosols au cours de chaque étape. Cette variation permet en

particulier d'estimer la concentration des aérosols à la fin d'une étape et donc de préciser la masse d'aérosol déposée au cours de l'étape.

La vitesse de sédimentation est calculée à l'aide de la relation (5). Dans la deuxième étape, la vitesse de Stefan est choisie de telle sorte que l'équilibre en vapeur d'eau soit atteint à la fin de la 2^o étape. La vitesse de diffusiophorèse est déduite de celle de Stefan en utilisant la relation de Waldmann. Enfin dans le calcul de la vitesse de thermophorèse, la constante K_T est évaluée à l'aide de la relation de Talbot [6].

L'ensemble des résultats est résumé dans le tableau 2.

Grandeurs	1 ^o étape	2 ^o étape	3 ^o étape
Durée de l'étape (s)	1080	3000	3000
r_0 rayon médian anhydre (μm)	1,70	1,284	0,763
Vitesse de sédimentation (ms^{-1})	$1,54 \times 10^{-3}$	$8,76 \times 10^{-4}$	$2,56 \times 10^{-4}$
Vitesse de Stefan (ms^{-1})	-	$4,05 \times 10^{-4}$	-
Vitesse de diffusiophorèse (ms^{-1})	-	$3,45 \times 10^{-4}$	-
Vitesse de thermophorèse (ms^{-1})	-	$1,46 \times 10^{-4}$	$1,75 \times 10^{-4}$
Vitesse apparente de sédimentation (ms^{-1})	$1,54 \times 10^{-3}$	$1,22 \times 10^{-3}$	$3,79 \times 10^{-4}$
Concentration initiale d'aérosols g/m^3	0,399	0,2134	0,0525
Concentration finale d'aérosols g/m^3	0,2134	0,0535	0,0348
Masse d'aérosols déposée calculée (g)	0,542	0,467	0,0546
Masse d'aérosols déposée expérimentale (g)	0,552	0,485	0,0712

Tableau 2 - Modélisation de l'essai 1

Les masses déposées calculées sont toujours inférieures aux masses expérimentales déduites de la décroissance en concentration mesurée au cours du temps, ce qui est logique dans la mesure où on ne tient pas compte dans le calcul des divers prélèvements effectués lors de l'essai. L'accord sur les deux premières étapes est très satisfaisant. L'écart sur la troisième étape est nettement plus prononcé mais les mesures au cours de cette étape sont beaucoup plus imprécises, la concentration en aérosols devenant très faible.

Si on s'intéresse à la masse totale déposée, la valeur calculée est de 1,064 g alors que la valeur expérimentale est de 1,108 g. La différence reste donc inférieure à 4 % et au bout de 7080 s l'efficacité de dépôt des aérosols durant les trois étapes est de 91,3 %.

En conclusion, nous pouvons dire qu'avec une connaissance précise de la distribution granulométrique initiale des aérosols, et du transfert thermique au sein de la cuve, l'utilisation des lois usuelles pour calculer les vitesses de dépôt par sédimentation thermo et diffusiophorèse est suffisante pour estimer avec précision les dépôts d'aérosols dans une enceinte où la phase gazeuse reste homogène en température et en composition.

Références :

- [1] First diffusiophoresis test in the Piteas containment : PDICO1
V. Saldo, C.Mourlon, M. Blanchard, S. Belval - N.T. SREAS/LEA n°97/247 (1997)
- [2] Second diffusiophoresis test in the Piteas containment : PDICO2
V. Saldo, C.Mourlon, M. Blanchard, S. Belval - N.T. SREAS/LEA n°97/748 (1997)
- [3] Piteas experiments : the growth of hygroscopic aerosol in humid atmosphere. The Third International Conference on containment design and operation
F. Sabathier, Th. Albiol, A. Zoulalian.
- [4] K.H. Schmitt, L. Waldmann, Z. Naturf, 15a 843 (1910) and Z. Naturf 16a, 144 (1960).
- [5] Modélisation des dépôts d'aérosols par diffusio et thermophorèse lors d'un écoulement dans une conduite cylindrique. Application aux essais Tuba-diffusiophorèse
A. Zoulalian N.T. SREAS/LEA N° 96/531 - (1996).
- [6] Thermophoresis of particle in a heated layer
L. Talbot, R.K. Cheng, R.W. Schefer, D.R. Willis, J. Fluid Mech. 101, 737-758 (1980).

ETUDE EXPÉRIMENTALE DE L'ÉCOULEMENT CRITIQUE DE GOUTTELETTES D'EAU GÉNÉRÉES PAR CONDENSATION HÉTÉROGÈNE EN COURS DE DÉTENTE

K. Jurski, E. Géhin

LETIEF, Université Paris XII Val de Marne,
IUT, Avenue du Général de Gaulle 94010 Créteil cedex, France.

Résumé

Notre étude porte sur la simulation expérimentale de l'écoulement au passage d'une brèche (généralement représentée par une tuyère) provoqué par la rupture d'un réservoir contenant initialement un air humide sous pression en présence de sites de condensation de concentration et diamètre différents. L'ensemble tente de décrire l'influence du processus de condensation hétérogène et de la poursuite du grossissement des gouttelettes d'eau générées sur le diamètre final des gouttes.

Abstract

In a pipe or reservoir, with high pressure conditions, in a normal operating mode, the fluid is usually of one-phase type. When a crack accidentally occurs in the walls, the flow pattern can become of dispersed two-phase type. Several aspects such as liquid phase formation, influence of the operating conditions on the particle size have been investigated during a vapour heterogeneous condensation on nuclei of different size and concentration.

1. INTRODUCTION

Une vapeur présente dans une canalisation ou un réservoir sous pression peut condenser en régime accidentel (au passage d'une brèche par exemple). La conception des systèmes ayant pour but de récupérer et de traiter les produits rejetés passe par la détermination des paramètres relatifs aux phases liquide et vapeur. Parce que la plupart des écoulements de vapeur (en soupapes de sécurité, détendeurs, turbines) sont en réalité constitués d'un mélange de vapeur et d'impuretés, il convient de s'interroger sur l'influence de la présence de ces aérosols sur le processus d'activation de la condensation et la granulométrie des gouttes formées. Si dans certaines conditions, l'évolution de la distribution en nombre et en taille d'une dispersion est gérée par des interactions de types « coagulation » (brownienne, turbulente ou cinétique) ou « fractionnement » (turbulent ou cinétique), il existe des situations relativement fréquentes où interviennent des interactions non plus d'ordre mécanique, mais d'ordre thermodynamique basées sur une conversion gaz - particules; la dispersion peut alors évoluer en taille et en masse.

2. RAPPELS SUR LE PROCESSUS DE CONDENSATION HÉTÉROGÈNE

Lorsqu'une suspension est présente au sein d'une phase continue constituée entre autre de vapeur, les particules peuvent voir leur granulométrie et leur concentration modifiées par des phénomènes de condensation ou d'évaporation à leurs surfaces sous certaines conditions de température, de pression et de teneur en vapeur.

L'influence du degré de sursaturation S sur l'apparition et le grossissement de gouttelettes est un phénomène connu et utilisé depuis les travaux de Coulier [1875] et Aitken [1880] (cités par Reist [1984]) sur la formation de brouillard dans le domaine météorologique. Wilson [1927] a étendu leurs études en examinant les différents processus de condensation à divers degrés de sursaturation en présence et en absence de particules étrangères (Friedlander [1977], Reist [1984]). L'expérience de Wilson consiste à réaliser une détente adiabatique d'un air humide initialement saturé. Lors de la détente, la pression et la température chutent simultanément menant le système à un état de sursaturation. Les investigations expérimentales de Wilson ont permis de mettre en évidence deux modes de condensation qui nécessitent tous deux la présence de noyaux, mais de taille et de nature différentes pour chacun des modes. Lorsque le noyau de condensation est constitué d'un agglomérat de molécules de vapeur, le mode de condensation est appelé « condensation homogène » ou encore « condensation spontanée ». Quand le noyau est d'une autre nature (impuretés, aérosol atmosphérique, particules solides ou liquides), le mode de condensation est appelé « condensation hétérogène » avec conservation de la concentration particulaire. Wilson montre que le phénomène de condensation hétérogène survient à des conditions de sursaturation faibles : une condensation hétérogène peut être obtenue à des degrés de sursaturation de quelques pour-cent supérieurs à la saturation. Sous l'influence des forces d'adhésion entre les molécules de vapeur et la surface de l'aérosol, les molécules de vapeur se déposent. La pellicule de liquide ainsi formée sur l'aérosol présente une surface à grand rayon de courbure (par rapport aux dimensions moléculaires) sur laquelle les molécules continuent à se déposer. L'aérosol initial constitue une zone privilégiée de condensation, communément désigné par le terme « site de condensation ».

Reist, P.C., *Introduction to Aerosol Science*, Collier MacMillan Publishers, London, 1984.

Wilson, C.T.R., *On the cloud method of making visible ions and the tracks of ionizing particles* in Nobel Lectures in Physics 1922 - 1941, 1927.

Friedlander, S.K., *Smoke, Dust and Haze, Fundamentals of aerosol behaviour*, John Wiley & sons, 1977.

3. DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

Nous proposons ici l'analyse d'un écoulement provoqué par la rupture d'un réservoir contenant initialement un air humide sous pression en présence de particules.

La boucle d'essai « Tapioca », constituée de deux réservoirs reliés par une veine comportant une tuyère convergente - divergente à mi distance amont - aval, sert de support expérimental à cette étude (Jurski et al. [1995]).

L'aérosol monodispersé de Di-octyl-phthalate (DOP) est généré par évaporation - condensation contrôlée puis injecté dans le réservoir amont. La technique utilisée lors de l'ensemencement est celle développée par Attoui et al. [1994]. Lorsque la concentration en sites est atteinte, le réservoir amont est mis sous pression avec un air humide propre. La sursaturation requise pour initier le processus de condensation sera obtenue en début de décharge dans la tuyère et en fin de décharge dans le réservoir. Les conditions génératrices typiques sont $p_{\text{amont}} = 4.10^5$ Pa, $T_{\text{amont}} \approx 20^\circ\text{C}$ et une humidité relative HR d'environ 95% (Figure 1). Les sites de condensation utilisés sont monodispersés, de diamètre 0,4 ou 1,3 μm présents en concentration 10^4 ou 10^7p/cm^3 suivant les essais. En cours de décharge, les gouttelettes d'eau générées sont caractérisées en termes de vitesse relative gaz - gouttes (U_r) (Jurski et al. [1996]) et d'évolution granulométrique.

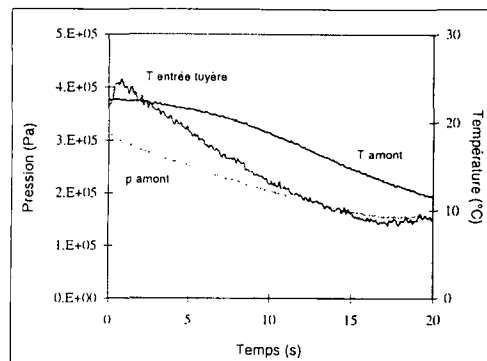


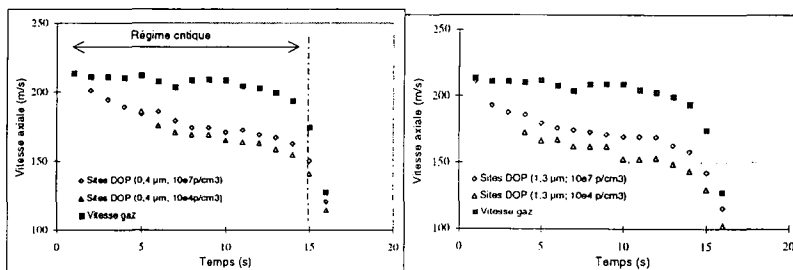
Figure 1 : Évolution de la température en entrée de tuyère, de la température et la pression dans le réservoir amont en cours de décharge.

4. MESURES RELATIVES À LA PHASE DISPERSÉE EN ÉCOULEMENT

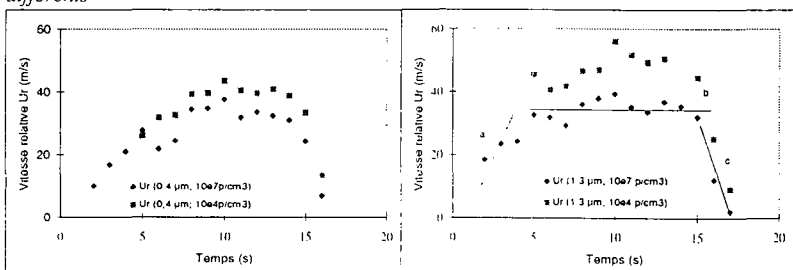
Nous avons procédé à plusieurs séries de décharge d'un mélange d'air humide et d'aérosol de DOP de diamètre et de concentration différents d'une série à l'autre. Pour chaque décharge, outre les mesures relatives au fluide en écoulement (pression, température à l'amont et en entrée de tuyère), nous relevons expérimentalement l'évolution temporelle de la vitesse axiale des gouttelettes en milieu de convergent (Figures 2a, 2b).

La vitesse du gaz, obtenue par mesure de la vitesse de traceurs de l'écoulement présente deux allures différentes :

- une première allure légèrement décroissante liée à la diminution de température dans le réservoir amont tant que le régime est critique ($t < 15$ s),
- la chute de la vitesse observée au delà de 15 s étant directement liée au déblocage du col.



Figures 2a, 2b : Évolution temporelle des vitesses relatives gaz - gouttes d'eau pour des gouttelettes d'eau formées sur des sites de condensation des diamètres et concentrations différents



Figures 3a, 3b : Évolution temporelle de la vitesse relative gaz - gouttes d'eau pour des sites de diamètres et concentrations différents. Mise en évidence de trois pentes distinctes.

En régime critique ($t < 15$ s), les vitesses des gouttes possèdent une évolution différente de celle observée pour le gaz. Au delà de 15 s, la chute de vitesse du gaz entraîne une forte diminution des vitesses de gouttes.

Les Figures 3a et 3b présentent les vitesses relatives gaz - gouttes (U_r) pour différents diamètres et concentrations en sites. Plusieurs remarques s'imposent :

Jurski, K., Géhin E., Degeratu M., Piar G., *Étude expérimentale de la phase liquide dispersée dans un écoulement diphasique en tuyère convergente - divergente*, Association Française d'études et de Recherches sur les Aérosols, COFERAe, 11èmes Journées d'études sur les Aérosols, pp. 182 - 187, Paris, 5 - 6 Décembre 1995.

Attoui, M.B., Renoux, A., Vauge, C., Boulaud, D., *Experimental and theoretical study of the filter efficiency at low pressure*, IDOJARAS, vol. 98, N° 3 p: 151-165, 1994.

Jurski K., Géhin E., Piar G., *Mesure de vitesses de gouttes dans un écoulement diphasique critique air - eau à faible teneur en eau par Anémométrie Laser Doppler*, 5ème Congrès Francophone de Vélométrie Laser, pp. F3, 1 - 8, Rouen, 24 - 27 Septembre 1996.

- Les vitesses relatives présentent globalement quatre évolutions, caractérisées par quatre pentes différentes :
 - absence de vitesse relative entre phases dans les premiers instants de la décharge (jusqu'à $t \approx 2$ s),
 - accentuation de la vitesse relative jusqu'à $t \approx 4$ s (pente (a)),
 - évolution selon un palier légèrement croissant (pente (b)) jusqu'au déblocage du col ($t = 15$ s),
 - la pente (c) étant la conséquence directe du déblocage du col.
- De façon plus spécifique, les évolutions sont fonctions des caractéristiques des sites de condensation utilisés :
 - pour un même diamètre de sites présents en concentrations différentes, les vitesses relatives des gouttes d'eau diffèrent,
 - pour des sites de diamètres différents mais présents en concentration identique, les évolutions de vitesse relative sont semblables.

5. ANALYSE THÉORIQUE DE L'INFLUENCE DE LA CONCENTRATION ET DU DIAMÈTRE DES SITES SUR LE DIAMÈTRE FINAL DES GOUTTES D'EAU

Dans ce dispositif, l'air porteur des gouttelettes est fortement accéléré au passage du convergent. Du fait de leur inertie, les gouttelettes mettent un certain temps à ajuster leur vitesse à celle du fluide, ce retard à l'ajustement est proportionnel au diamètre aérodynamique moyen. Le diamètre aérodynamique peut selon ce principe être déterminé par une mesure de vitesse relative de la goutte.

Par l'intermédiaire de l'équation du mouvement d'une goutte de masse volumique ρ_r , animée d'une vitesse U_r , au sein d'une phase porteuse de masse volumique ρ_c , il est possible de lier la vitesse relative entre phases U_r au paramètre « diamètre aérodynamique » d_{ae} de la goutte :

$$d_{ae} = \frac{(3/4) \cdot C_D \cdot \rho_c \cdot U_r^2}{\rho_\ell \cdot U_\ell \cdot \left(\frac{dU_\ell}{dz} + \frac{dp}{dz} \right)} \quad (1)$$

avec C_D le coefficient de traînée selon Brauer et Mewes [1972] : $C_D = 0,4 + \frac{4}{Re_\ell^{0,5}} + \frac{24}{Re_\ell}$ (2)

Dans les mêmes conditions de transport, une vitesse relative entre phases U_r détermine un diamètre aérodynamique d_{ae} unique de la goutte. Ainsi, l'absence de vitesse relative entre phases en tout début de décharge est liée au fait que l'écoulement soit constitué d'un mélange aérosol de DOP - air humide sous saturé. La phase dispersée possède alors les caractéristiques « vitesse et diamètre » d'un traceur de l'écoulement. Lorsque les conditions de saturation sont atteintes, la condensation est initiée à la surface de l'aérosol de DOP; le diamètre de la phase dispersée augmente; ses caractéristiques aérodynamiques sont modifiées; à un certain niveau de grossissement, la phase dispersée n'est plus correctement entraînée par la phase continue. Ce phénomène est directement lié aux conditions d'apparition et de grossissement des gouttelettes d'eau.

Dans nos conditions d'expérience, on distingue deux zones de condensation, le réservoir amont et la tuyère (le mélange issu du réservoir caractérisant les conditions initiales de l'écoulement en entrée de tuyère). La masse d'eau condensée m_{liq} (kg/cm^3) à un instant i donné est calculée à partir de la pression de vapeur, de la pression de vapeur saturante et de la température T selon :

$$m_{liq} = 0,62198 \cdot \frac{p_{vs}}{p - p_{vs}} \cdot \frac{(p - p_v)}{R \cdot T} \quad \text{avec } p_{v_i} = \frac{p_i}{p_0} \cdot p_{v_0} \quad \text{lorsque } HR < 100\% \quad (3)$$

$$\log_{10}(p_{vs}) = 10,7958 \cdot (1 - \theta) + 5,0280 \cdot \log_{10}(\theta) + 1,5047 \times 10^{-4} \cdot (1 - 10^{-8,2969 \cdot (\frac{1}{\theta} - 1)}) + 0,4287 \times 10^{-3} \cdot (10^{4,7695 \cdot (1 - \theta)} - 1) - 2,2196$$

avec pour l'expression précédente p_v , p_{vs} en atm et $\theta = 273,16/T$ pour T comprise entre 223 K et 373 K (Bullock et al. [1976])

En supposant que le processus de condensation hétérogène est instantané, l'évolution temporelle de la masse d'eau liquide couplée aux caractéristiques « diamètre d_s , et concentration volumique n_s » des sites de condensation permet de déterminer une évolution théorique du diamètre local des gouttes d'eau (d_{th}) en fonction du temps :

Brauer, H., Mewes, D., Chem. Ing. Tech., vol. 44, pp. 865 - 868, 1972.

Bullock, C., Davies, J., ASHRAE Handbook of Fundamentals, Heating Refrigerant Ventilating and Air Conditioning, 3rd edition, 1976.

$$d_{th} = 2 \cdot \left[\left(\frac{d_s}{2} \right)^3 + \frac{3 \cdot m_{liq}}{4\pi \cdot \rho_{liq} \cdot n_s} \right] \quad (4)$$

a. Cas du réservoir :

La Figure 4 propose une illustration de l'évolution de la masse d'eau condensée dans le réservoir amont pour une humidité relative initiale HR de 95 %. La pression de vapeur saturante p_{vsat} , initialement supérieure à la pression de vapeur p_v (air humide légèrement sous saturé) diminue plus rapidement que p_v . A environ 15 s après le début de la détente, les deux valeurs s'égalisent, on atteint alors la saturation, toute la masse de vapeur en excès par rapport à la saturation condense. La masse d'eau liquide produite augmente au cours du temps pour atteindre dans nos conditions d'expérience $2 \cdot 10^{-6} \text{ g/cm}^3$ environ 20 s après le début de la décharge. L'écoulement en sortie de réservoir est alors constitué d'air humide à la saturation et de gouttelettes d'eau en cours de grossissement.

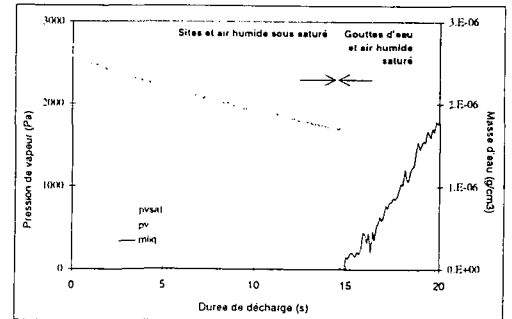


Figure 4 : Evolution temporelle de la pression de vapeur et de la pression de vapeur saturante dans le réservoir amont pour une humidité relative initiale de l'ordre de 95 %. Mise en évidence de l'apparition d'une masse d'eau liquide dès 15 s après le début de la décharge.

Les Figure 5 et Figure 6 décrivent le grossissement *théorique* des sites de taille et de concentration différentes, à partir de la masse d'eau produite dans le réservoir. Sur les 14 premières secondes de la décharge, le mélange en écoulement en entrée de tuyère est constitué d'air humide et de sites de DOP. A $t = 14$ s, la saturation est atteinte dans le réservoir, l'écoulement est alors constitué de gouttelettes d'eau et d'air humide à la saturation. Au delà de 15 s, l'écoulement n'étant plus critique, nous ne présenterons pas d'analyse du grossissement.

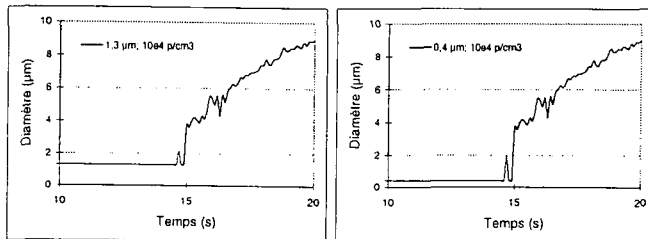


Figure 5 : évolution du diamètre théorique des gouttes (sites de diamètre 0,4 ou 1,3 µm en concentration proche de 10^4 p/cm^3).

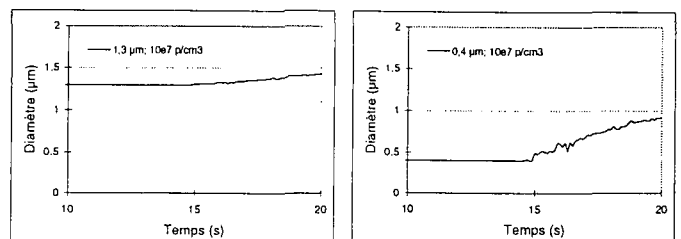
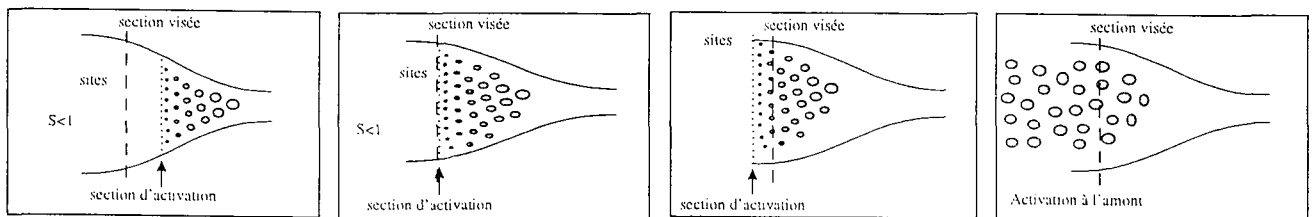


Figure 6 : évolution du diamètre théorique des gouttes (sites de diamètre 0,4 ou 1,3 µm en concentration proche de 10^7 p/cm^3).

b. Cas de la tuyère :

Les schémas suivants illustrent l'évolution de l'activation des sites et le grossissement des gouttes formées dans la tuyère :



Figures 7a,b,c,d : schémas représentatifs de l'évolution de l'activation des sites et de la génération des gouttes d'eau au cours du temps (de gauche à droite).

- Lorsqu'en entrée de tuyère le mélange est légèrement sous saturé (Figures 7a et 7b), la condensation est initiée dans le convergent où la chute de pression et de température mène à la saturation en une section donnée :
 - figure 7a : la section visée se situe en amont de la section d'activation. Les gouttelettes détectées dans le volume de mesure optique sont dans ce cas des sites de condensation non activés,
 - figure 7b : la section d'activation de la condensation se rapproche rapidement de l'entrée de la tuyère au cours du temps alors qu'évoluent les conditions génératrices à l'amont. Le diamètre des gouttelettes augmente alors rapidement au cours du temps en une section donnée. Parce que le grossissement se poursuit, la vitesse locale des gouttes diminue (analogie avec la pente (a) de la Figure 3b).

- Lorsque la section d'activation se trouve en entrée de tuyère (Figure 7c), le grossissement se poursuit spatialement dans le convergent par condensation de la vapeur en excès par rapport à la saturation. La variation de masse des gouttes en fonction du temps en une section n'est pas suffisante au point de modifier de façon significative le comportement aérodynamique des gouttes (pente (b) de la Figure 3b).
- La Figure 7d est représentative de ce qui est observé au delà de 14 s, lorsque la saturation est atteinte dans le réservoir amont.

La masse d'eau liquide localement produite en milieu de tuyère pour une humidité relative HR initiale de 95 %, calculée par l'équation (3), est donnée en Figure 8. La condensation est initiée à $t = 2$ s au moment où la chute de pression de vapeur et de température mène à la saturation en cette section.

La masse d'eau liquide alors produite augmente localement au cours du temps pour atteindre dans nos conditions d'expérience un maximum de 6.10^{-6} g/cm³ environ 14 s après le début de la décharge.

Les diamètres théoriques des gouttes d'eau, calculés à l'aide de l'équation (4) sont représentés en Figure 9 et Figure 10.

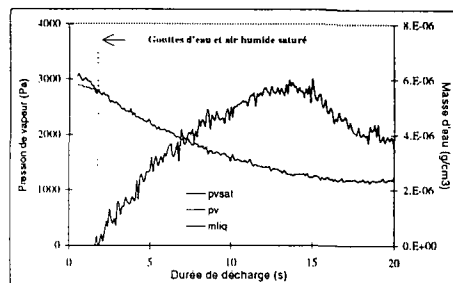


Figure 8 : Evolution temporelle de la pression de vapeur et de la pression de vapeur saturante en début de convergent pour une humidité relative initiale de l'ordre de 95 %. Mise en évidence de l'apparition d'une masse d'eau liquide 2 s après le début de la décharge.

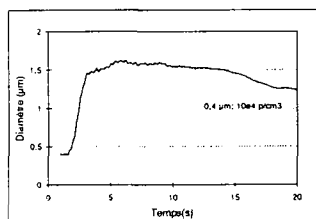
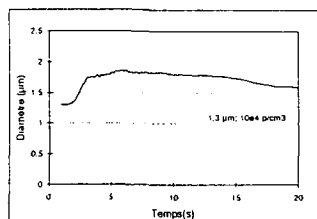


Figure 9 : évolution du diamètre de la phase liquide dispersée en entrée de convergent pour des sites de DOP de diamètre 0,4 ou 1,3 µm en concentration proche de 10^4 p/cm³.

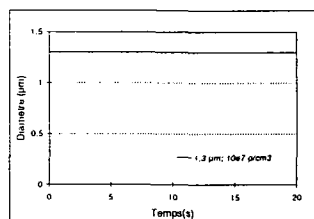
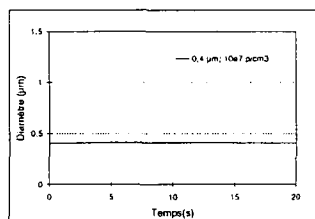


Figure 10 : évolution du diamètre de la phase liquide dispersée en entrée de convergent pour des sites de DOP de diamètre 0,4 ou 1,3 µm en concentration proche de 10^7 p/cm³.

Dans chaque décharge, le grossissement est amorcé à $t = 2$ s lorsque la saturation est localement atteinte en entrée de convergent. Plusieurs remarques s'imposent :

- Pour une concentration en sites de 10^4 p/cm³, le diamètre des sites ne présente pas d'influence sur le diamètre théorique des gouttes d'eau.
- Pour une concentration en sites de 10^7 p/cm³ dans nos conditions d'expérience, la masse de vapeur condensée n'est pas suffisante pour modifier de façon significative le diamètre des sites et cela quel que soit le diamètre des sites (0,4 ou 1,3 µm).

Ces observations peuvent s'expliquer à l'aide de la Figure 11, qui illustre sur un cas simple l'évolution du diamètre final des gouttes générées à partir de sites de concentrations et de tailles différentes pour une masse d'eau liquide de 10^{-7} g/cm³. Ce graphique met en évidence deux zones distinctes :

- pour des diamètres de sites inférieurs à 5 µm, le diamètre final des gouttes d'eau générées varie de façon significative en fonction de la concentration en sites,
- au delà de cette valeur, la masse de vapeur condensée n'est pas suffisante pour modifier de façon significative le diamètre des sites.

De façon plus spécifique, pour qu'un site de 0,4 à 1,3 µm en concentration 10^4 p/cm³ génèrent tous deux une goutte d'eau de même diamètre (2,7 µm), la masse d'eau liquide dans le réservoir doit être au minimum de 10^{-7} g/cm³. Pour cette même masse, lorsque le nombre de sites est multiplié par 1000, le diamètre des gouttes diffère selon la taille du site initial.

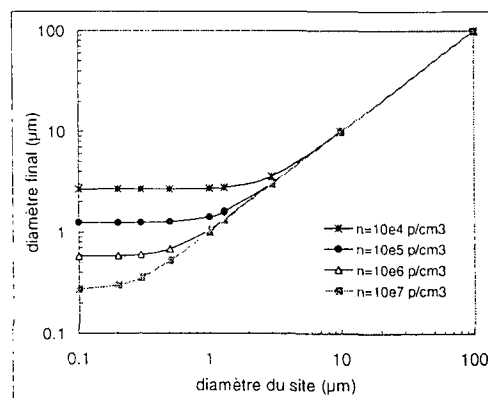


Figure 11 : illustration de l'évolution du diamètre des gouttes formées en fonction de la taille du site de condensation pour des concentrations croissantes en sites (par unité de volume) et une masse d'eau liquide de 10^{-7} g/cm³.

Signalons d'autre part que pour des masses d'eau liquide supérieures à 10^{-7} g/cm³, les différences observées sur le diamètre final persistent pour des concentrations en sites de 10^4 p/cm³ et 10^7 p/cm³.

c. Comparaison des diamètres théoriques et mesurés

Les diamètres des gouttes d'eau au passage du convergent sont obtenus à l'aide d'une méthode analogue aux systèmes commerciaux de type Aerodynamic Particle Sizer basée sur l'utilisation de l'équation (1) et la mesure de vitesse relative. Signalons que nous proposons une estimation expérimentale du diamètre des gouttes, puisque la méthode n'a pu être expérimentalement étalonnée.

Pour des concentrations en sites de l'ordre de 10^4 p/cm³, les diamètres des gouttes d'eau sont évalués à plusieurs microns (~ 5 μ m). Dans nos conditions d'expérience, quels que soient les diamètres et les concentrations en sites utilisés, les diamètres des gouttes d'eau théoriques diffèrent de façon importante des diamètres mesurés. La théorie utilisée sous estime nettement les diamètres évalués.

A cela, plusieurs explications peuvent être données :

- La comparaison concerne des diamètres théoriques déterminés en milieu de convergent et des diamètres mesurés en fin de convergent. Cependant, la masse de vapeur condensée atteint rapidement un palier. En fin de convergent, la masse de vapeur en excès par rapport au milieu du convergent n'apporte pas de modification notable du diamètre des gouttes d'eau.
- L'écart observé peut être lié à des phénomènes de coagulation qui en amont ou en aval du processus de grossissement par condensation viendrait modifier la granulométrie des gouttes. En présence de déséquilibre mécanique entre phases (cas des gouttes d'eau), la coagulation serait essentiellement cinétique liée à l'existence de vitesses différentes dans l'écoulement. En absence de vitesse relative entre phases (cas des sites de DOP), la coagulation serait essentiellement turbulente, ce dernier point ayant été mis en évidence par Jurski [1997].
- L'une des hypothèses de la détermination théorique de l'évolution temporelle des diamètres des gouttes d'eau est de considérer que les gouttelettes grossissent instantanément par condensation de toute la vapeur localement en excès. Or le processus de grossissement par condensation n'est pas instantané (Johnston et al. [1995], Mallina et al. [1997]). Lorsque la vapeur en excès par rapport à la saturation ne condense pas en totalité, la pression de vapeur devient supérieure à la pression de vapeur saturante à une température donnée, menant ainsi à une sursaturation du milieu. La sursaturation est entretenue alors que la température continue à chuter dans le convergent. La masse d'eau évaluée précédemment ne serait en réalité pas représentative de la masse d'eau réellement impliquée dans le grossissement des gouttes. Signalons toutefois que la prise en compte de cette remarque reviendrait à déterminer une masse d'eau condensée plus faible et mènerait par conséquent à calculer des diamètres de gouttes d'eau inférieurs à ceux obtenus précédemment.

6. CONCLUSION

Nous avons montré que les gouttelettes d'eau générées par condensation hétérogène de la vapeur d'eau sur l'aérosol de DOP présentent dans nos conditions d'expérience une évolution granulométrique dépendant à la fois des conditions d'écoulement au passage du convergent et également de l'évolution des conditions génératrices du réservoir amont. Nous avons ainsi révélé deux évolutions temporelles dans le processus de génération des gouttes d'eau par grossissement des sites, avec un impact direct sur les vitesses des gouttelettes. L'étude a ainsi permis de mettre en évidence d'une part un net déséquilibre mécanique entre phases à l'approche du col et d'autre part l'influence prépondérante de la concentration en sites sur le diamètre final des gouttes (le paramètre « taille » des sites n'étant quant à lui pas influent dans nos conditions d'expérience).

L'ensemble de ces acquis expérimentaux permettra d'aborder la modélisation de l'écoulement au moyen d'un schéma spatial permettant de quantifier le grossissement théorique des gouttes d'eau par condensation de vapeur le long du convergent. L'étude nécessitera toutefois à court terme un étalonnage de la méthode de détermination du diamètre aérodynamique des gouttes d'eau en écoulement.

Jurski K., *Étude expérimentale du transport et de l'évolution granulométrique de gouttelettes microniques en écoulement critique en tuyère*, Thèse de Doctorat, Université Paris XII - Val de Marne, septembre 1997.

Johnston, M.V., Wexler, A.S., *Mass spectrometry of individual aerosol particles*, *Analyt. Chem.*, vol.67, 721 A, 1995.

Mallina, R.V., Wexler, A.S., Johnston, M.V., *Particle growth in high speed particle beam inlets*, *J. Aerosol Sci.*, vol. 28, n°2, pp. 223 - 238, 1997.

DEPOT DES AEROSOLS NANOMETRIQUES DANS UNE CONDUITE CYLINDRIQUE EN ECOULEMENT TRANSITOIRE-TURBULENT

J.Malet^{1,2}, N.Michielsen¹, D.Boulaud¹, A.Renoux²

¹Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, Département de Prévention et d'Etude des Accidents,
Service d'Etudes et de Recherche en Aérocontamination et en Confinement,
CEA/Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

²Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations,
Université Paris XII, Avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil cedex, France

ABSTRACT

There are few studies on deposition of nanoparticles, because the generation and size measurement of such aerosols present some difficulties. These difficulties could be overcome by the use of ^{218}Po aerosol. This aerosol is obtained from radon decay, and its concentration can be easily determined with nuclear measurement techniques. So, we present here an experimental study of ^{218}Po deposition in turbulent tube flow in order to validate appropriated theories. ^{218}Po aerosol generation set-up and ^{218}Po brownian diffusion coefficient measurements methods are first presented (brownian diffusion coefficient is an important parameter for deposition fraction determination). The experimental results obtained in turbulent tube flow, and different theories are then compared. The theories which seem to be the more suitable are the ones of Friedlander (1977) and of Wells and Chamberlain (1967).

INTRODUCTION

Le dépôt des aérosols dans les conduites est un sujet de vaste intérêt puisqu'il trouve des applications dans de nombreux domaines de la physique et de la métrologie des aérosols. Les études portant sur l'échantillonnage des aérosols nécessitent souvent l'estimation de leur efficacité de captation dans les conduites de prélèvement. Divers appareils de métrologie des aérosols, tels que les batteries de diffusion à tubes, sont directement basés sur l'estimation des pertes des aérosols par dépôt sur les parois. Enfin, on peut citer les études concernant le dépôt des aérosols dans les bronches, souvent approximées à des conduites cylindriques. Cette dernière application intéresse particulièrement les travaux dosimétriques cherchant à évaluer l'impact radiobiologique du dépôt d'aérosols radioactifs dans l'appareil pulmonaire.

Le phénomène de dépôt des aérosols de taille nanométrique a fait l'objet de peu d'études expérimentales. En effet, la génération d'aérosols nanométriques ainsi que la mesure de leur concentration par un dispositif optique présentent de nombreuses difficultés. Par ailleurs, si, en écoulement laminaire, les théories permettant d'estimer la fraction d'aérosols déposée dans une conduite donnent des résultats similaires selon les auteurs (Gormley & Kennedy 1949, Ingham 1975), ce n'est pas le cas en écoulement turbulent. En effet, dans ce régime, et pour des nombres de Schmidt de la particule faibles ($Sc < 10$, c'est-à-dire pour des particules de taille nanométrique évoluant dans de l'air à température ambiante), les théories de Davies (1966), Wells & Chamberlain (1967), Levich (1962), et Friedlander (1977) divergent, comme on peut le voir sur la figure 1.

L'objectif de ce travail est donc de valider expérimentalement une des expressions analytiques existantes permettant le calcul de la vitesse de dépôt par diffusion des aérosols nanométriques dans un tube cylindrique en écoulement turbulent.

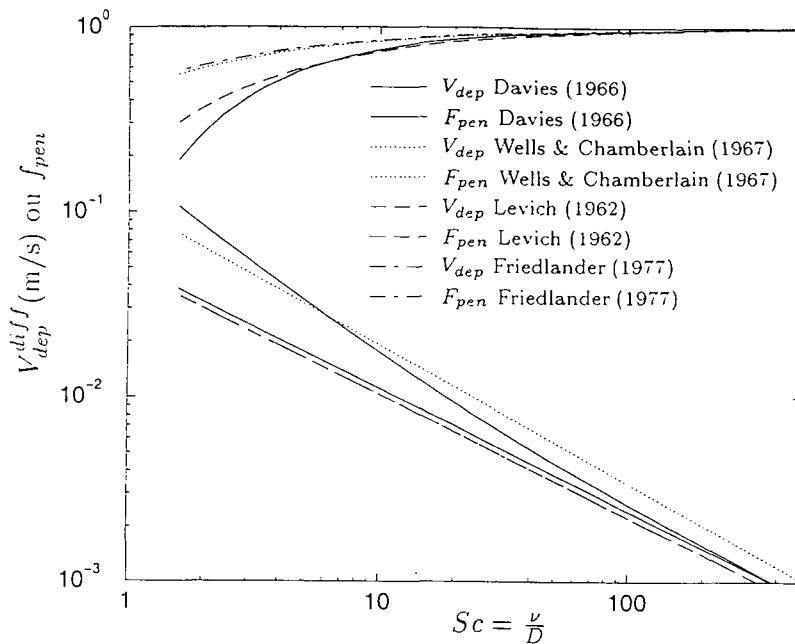


FIG. 1 – Fraction pénétrante f_{pen} (courbes du haut) et vitesse de dépôt par diffusion V_{dep}^{diff} (courbes du bas) en fonction du nombre de Schmidt de la particule Sc (ν : viscosité cinématique du gaz porteur ; D : coefficient de diffusion de l'aérosol). Théories développées pour des aérosols évoluant dans un tube cylindrique en écoulement turbulent.

PRINCIPE

Pour cela, nous nous sommes proposés d'utiliser comme générateur d'aérosols nanométriques un gaz radioactif naturel, le radon. En effet, celui-ci, en se désintégrant, produit des particules de ^{218}Po , réactives chimiquement, qui forment alors des clusters avec les molécules présentes dans le milieu porteur. Ces clusters sont régis par les lois de la physique des aérosols. Si le milieu porteur est suffisamment pur, et exempt d'aérosols atmosphériques, ces clusters sont de taille nanométrique.

Par ailleurs, le ^{218}Po est un élément radioactif à vie courte, émetteur α , ce qui permet de mesurer sa concentration par prélèvement sur filtre et comptage radioactif. On s'affranchit alors de l'utilisation d'un compteur optique inadapté à la mesure de particules de taille aussi fine.

Toutefois, l'utilisation du radon et de son premier descendant n'est pas sans difficulté.

La granulométrie du cluster de ^{218}Po varie selon les conditions ambiantes, sans que les processus physiques mis en jeu soient entièrement connus. Cette granulométrie peut, dans certains cas, comporter plusieurs modes (Malet et al. 1997). Or les théories concernant le dépôt des aérosols nanométriques nécessitent la connaissance du coefficient de diffusion de l'aérosol étudié, paramètre directement relié à sa taille. Il est donc indispensable, avant d'effectuer toute expérience sur le dépôt de cet aérosol, de mesurer sa distribution granulométrique, et de se placer dans des conditions où celle-ci est unimodale. Dans cette étude, le coefficient de diffusion de ^{218}Po est déterminé par différentes méthodes : méthode des deux filtres (Thomas 1972), batterie de diffusion à grilles, canal annulaire de diffusion (Kerouanton 1996). L'utilisation de ces méthodes dans notre expérience est décrite dans Malet et al. (1997). La valeur du coefficient de diffusion de ^{218}Po retenue ici est de $6.10^{-6}m^2/s$, soit un nombre de Schmidt de la particule de 2,6.

Une autre difficulté liée au ^{218}Po est ce que l'on appelle « la formation et la disparition en vol » : en

effet, cet élément est constamment produit par désintégration du radon, et disparaît rapidement car il est lui-même radioactif. Selon son temps de séjour dans le tube, cette formation ou cette disparition peut modifier la fraction d'aérosols en sortie du tube, ce qui modifie indirectement l'estimation de la fraction d'aérosols déposée. Il est donc nécessaire, soit, de prendre en compte, dans les calculs théoriques, ces phénomènes, soit, de s'en affranchir dans les expériences, en choisissant des temps de séjour très courts. Dans cette étude, le temps de séjour dans le tube est tel que la fraction d'aérosols formée dans le tube est négligeable devant celle qui y est injectée.

DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Notre dispositif expérimental est représenté figure 2.

Le tube utilisé pour l'étude du dépôt des particules en régime turbulent a une longueur de 0,5m et un rayon de 0,005m. Les débits varient de 25 à 65l/min, c'est-à-dire que les nombres de Reynolds de l'écoulement sont compris entre 3000 et 9000.

Le radon est injecté dans une chambre de vieillissement de 10l, de géométrie cylindrique. On s'assure que le régime est bien stationnaire en sortie de cette chambre, en renouvelant le volume de cette chambre au moins une fois. Une vanne permet ensuite d'injecter l'aérosol formé de cette chambre vers le tube en écoulement turbulent. Précisons que nous avons pris soin de minimiser la longueur du conduit entre l'aval de la chambre de vieillissement et l'amont du tube, afin de limiter les pertes d'aérosols par dépôt.

La mesure de l'activité volumique du ^{218}Po s'effectue par un prélèvement sur filtre et comptage en spectrométrie α par la méthode de Tremblay et al. (1979), méthode couramment utilisée en métrologie des descendants du radon. Nous mesurons successivement l'activité volumique amont puis l'activité volumique avale, en vérifiant préalablement que l'expérience est répétable. La fraction pénétrante expérimentale est obtenue en effectuant le rapport de ces deux activités. Nous vérifions également expérimentalement que la formation du ^{218}Po dans le tube est négligeable devant la quantité de ^{218}Po injecté, en raison du très court temps de séjour du radon dans le tube.

Nous réglons les débits d'injection d'aérosol et de dilution à l'aide de débitmètres massiques, et nous les mesurons avec un compteur volumétrique. Des mesures de pression préalables nous permettent de déterminer la perte de charge du tube pour les différents débits étudiés. Une mesure de pression en amont du tube nous permet d'effectuer une correction de pression systématique sur la détermination des débits de prélèvement sur les filtres.

RESULTATS

Nos résultats expérimentaux obtenus pour la fraction pénétrante du ^{218}Po dans le tube cylindrique en écoulement turbulent sont représentés figure 3 .

Nous pouvons constater sur cette figure que nos résultats sont répétables. Par ailleurs, le débit n'influençant pas beaucoup la fraction pénétrante du ^{218}Po , comme le prévoient d'ailleurs toutes les théories citées précédemment, il ne paraît pas nécessaire d'effectuer des expériences sur plus de trois débits. La fraction pénétrante moyenne du ^{218}Po est de 0.65 ± 0.09 dans nos expériences. Aux mêmes débits, et pour un aérosol de coefficient de diffusion de $6.10^{-6} m^2/s$, les fractions pénétrantes moyennes du ^{218}Po obtenues par les théories de Friedlander (1977) et Wells & Chamberlain (1967) sont respectivement de 0,64 et 0,59, tandis que celles obtenues par les théories de Davies (1966) et Levich (1962) sont de 0,31 et 0,39.

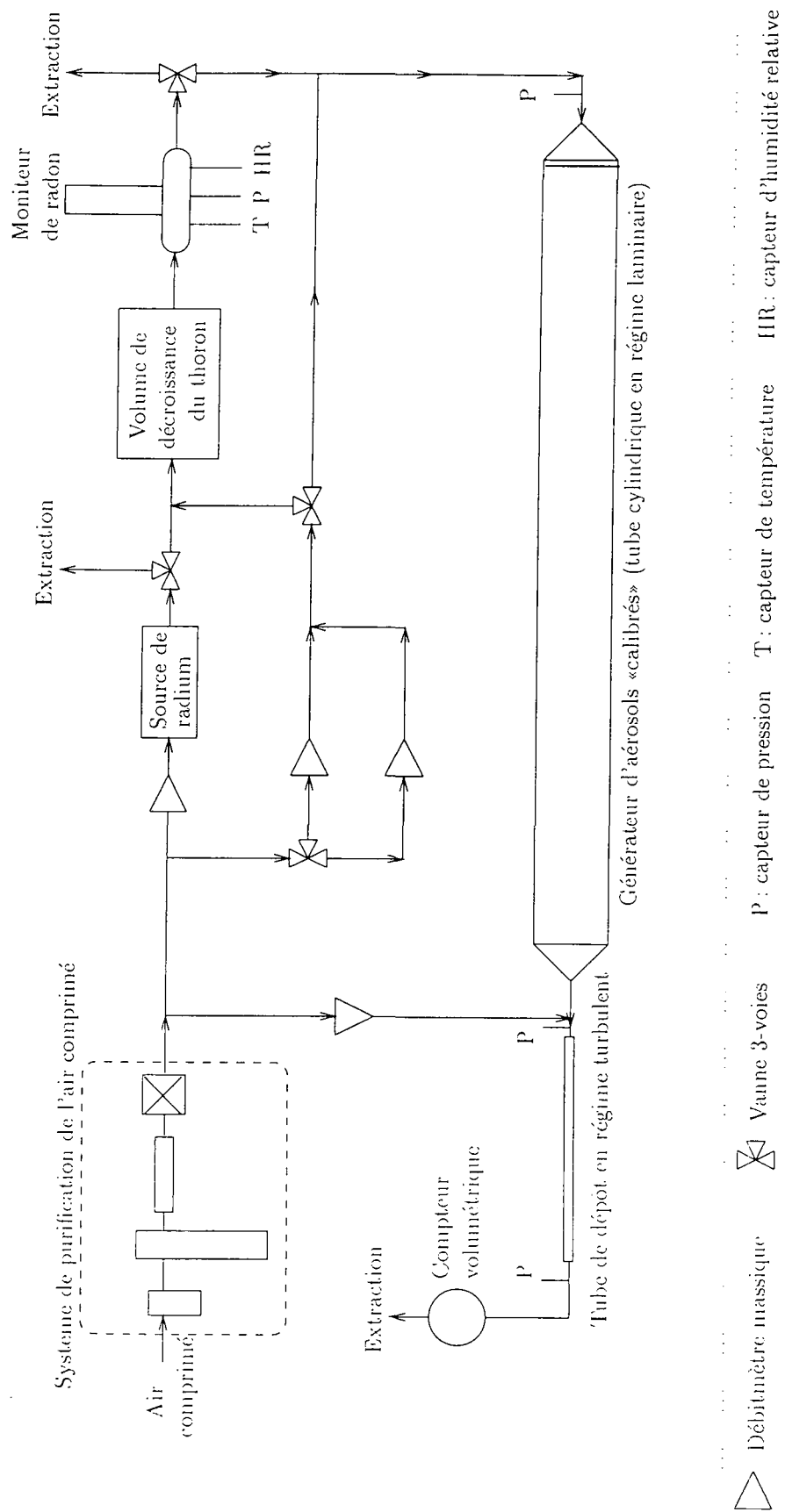


FIG. 2 - Dispositif expérimental.

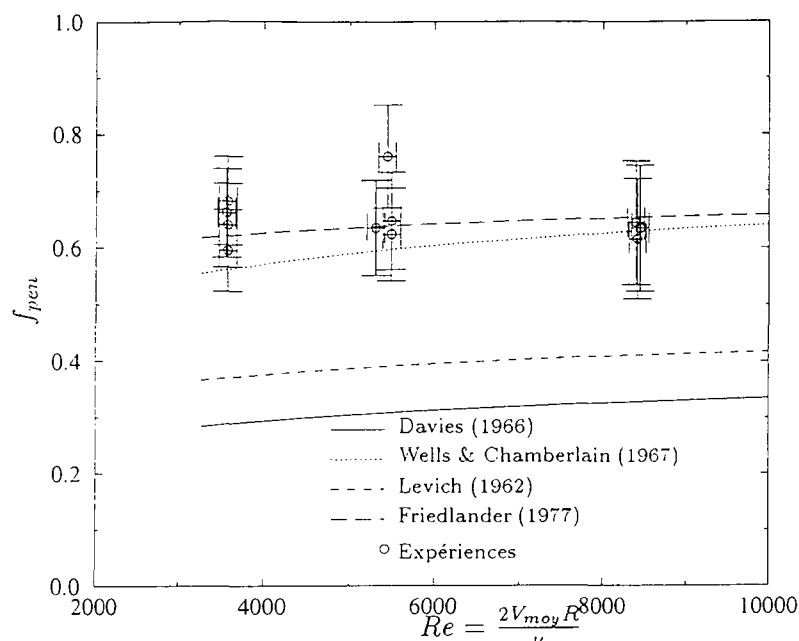


FIG. 3 - Fraction pénétrante du ^{218}Po en fonction du nombre de Reynolds (V_{moy} : vitesse moyenne de l'écoulement ; R : rayon du tube) dans le tube en régime turbulent ; comparaison entre les résultats expérimentaux (intervalle de confiance de 95%) et les théories existantes représentés pour un aérosol de coefficient de diffusion de $6 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$.

Nous pouvons donc considérer que les théories les plus adaptées à la détermination d'un ordre de grandeur de la fraction pénétrante d'aérosols de taille nanométrique dans un tube cylindrique en écoulement turbulent sont celles de Friedlander (1977) et Wells & Chamberlain (1967). Il faut toutefois associer à cette conclusion les remarques suivantes :

- il subsiste une incertitude sur la mesure du coefficient de diffusion du ^{218}Po que nous ne prenons pas en compte dans nos calculs ;
- la rugosité de la surface n'est pas prise en compte ; or, Malet (1997) a montré que l'état de la surface du tube influe sur le dépôt du ^{218}Po en écoulement laminaire ; la rugosité de surface risque donc d'influer d'autant plus sur le dépôt du ^{218}Po en écoulement turbulent, puisqu'alors, contrairement au régime laminaire, l'écoulement se trouve modifié ;
- ces résultats sont obtenus en régime transitoire, non complètement turbulent.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Nous avons donc validé expérimentalement les théories de Friedlander (1977) et Wells & Chamberlain (1967) concernant le dépôt d'aérosols nanométriques (nombre de Schmidt $Sc = 2, 6$) dans un tube cylindrique de surface en inox, en écoulement caractérisé par un nombre de Reynolds compris entre 3000 et 9000.

Toutefois, il serait intéressant de vérifier cette conclusion pour de plus grands nombres de Reynolds.

Par ailleurs, une étude expérimentale sur le dépôt de ces aérosols dans des tubes présentant des états de surface différents (paroi «miroir» ou très rugueuse) sera entreprise. Ceci nous permettra

alors d'avoir un ordre de grandeur des variations du dépôt des aérosols nanométriques dans un tube cylindrique en écoulement turbulent en fonction de l'état de la surface.

Enfin, il serait également intéressant de comparer nos résultats à ceux d'un code de calcul appliqué à la mécanique des fluides, dans l'optique de valider ce type de code. En effet, l'utilisation de tels outils de calculs correctement validés est une aide incontestable à l'expérimentateur, que ce soit pour un dimensionnement d'expérience, un complément de résultats expérimentaux, ou la compréhension fine des phénomènes mis en jeu.

REFERENCES

- Davies, C. N. (1966), 'Deposition of aerosols from turbulent flow through pipes', *Proc. R. Soc. London A.* **289**, 235-245.
- Friedlander, S. K. (1977), *Smoke, Dust and Haze*, Wiley, New York.
- Gormley, P. G. & Kennedy, M. (1949), 'Diffusion from a stream flowing through a cylindrical tube', *Proc. Roy. Irish Aca.* **52A**, 163-169.
- Ingham, D. B. (1975), 'Diffusion of aerosols from a stream flowing through a cylindrical tube', *J. Aerosol Sci.* **6**, 125-132.
- Kerouanton, D. (1996), Etude de la composante ultra-fine issue du radon 222 à partir d'un canal de diffusion annulaire muni d'un détecteur de traces nucléaires, Thèse de doctorat, Université de Bretagne Occidentale, Brest, France.
- Levich, V. G. (1962), *Physicochemical Hydrodynamics*, Prentice - Hall, Englewood Cliffs, New Jersey.
- Malet, J. (1997), Transport et dépôt des aérosols nanométriques. Application à la fraction libre des descendants à vie courte du radon., Thèse de doctorat, Université de Paris Val-de-Marne, Créteil, France.
- Malet, J., Michielsen, N., Boulaud, D. & A. Renoux (1997), 'Comparison between different methods for ^{218}Po diffusion coefficients measurements', *J. Aerosol Sci.* **28**, S709-710.
- Thomas, J. W. (1972), 'Measurements of radon daughters in air', *Health Phys.* **23**, 783-789.
- Tremblay, R. J., Leclerc, A., Mathieu, C. & Pepin, R. (1979), 'Measurement of radon concentration in air by α -particle spectrometric counting during and after air sampling', *Health Phys.* **36**, 401-411.
- Wells, A. C. & Chamberlain, A. C. (1967), 'Transport of small particles to vertical surfaces', *Brit. J. appl. Phys.* **18**, 1793-1799.

Evolution du spectre de gouttes en écoulement turbulent homogène et isotrope

F. PIGEONNEAU* et F. FEUILLEBOIS

PMMH (Physique Thermique) ESPCI 10, rue Vauquelin 75231 PARIS Cedex 05

13^{ème} Congrès d'Etudes et de Recherches sur les Aérosols, Paris 2 et 3 décembre 1997

Résumé

Le modèle présenté est basé sur une équation décrivant l'évolution granulométrique d'un nuage dans un écoulement turbulent homogène et isotrope. Le taux de collision des gouttes est déterminé en supposant que celles-ci sont petites devant l'échelle de Kolomogorov. L'efficacité de collision prend en compte les interactions hydrodynamiques entre les gouttes. L'histogramme des volumes de gouttes est discrétisé au moyen de B-splines linéaires puis l'équation d'évolution est résolue numériquement. Les résultats montrent que la prise en compte des interactions hydrodynamiques augmente le temps nécessaire à un accroissement donné du rayon moyen de Sauter. Ce mécanisme d'accroissement des tailles de gouttes est important pour la formation de la pluie dans les nuages tropicaux.

Abstract

The model presented here is based on an equation describing the granulometric evolution of a cloud in homogeneous and isotropic turbulent flow. The collision rate of drops is determined by assuming them to be small as compared with Kolmogorov's scale. The effect of hydrodynamic interactions between drops is included in the collision efficiency. The histogram of drops volumes is discretized with linear B-splines and the evolution equation is solved numerically. Results show that when hydrodynamic interactions are taking into account there is an increase in the time necessary for the Sauter mean radius to increase by a given amount. This mechanism for the increase of sizes of drops is relevant for the formation of rain in tropical clouds.

1 Introduction

Cet exposé concerne l'évolution granulométrique d'un nuage par collision entre les gouttes le constituant. Nous ferons l'hypothèse que le milieu dispersé est suffisamment dilué pour ne prendre en compte que les collisions entre paires de gouttes. L'écoulement turbulent sera supposé homogène et isotrope. Les collisions entraînent la formation de plus grosses gouttes. Les fractionnements ne sont pas considérés dans cette étude.

Ce problème s'applique à la formation de la pluie dans les nuages tropicaux. En effet, la formation de la pluie dans les nuages est généralement expliquée par le processus de Bergeron (cité dans [7]). Ce dernier correspond à la présence de cristaux solides dans les nuages et à la croissance de ces derniers au détriment des gouttes. Cette croissance est liée au fait que la pression de vapeur saturante à la surface des cristaux solides est plus faible qu'à la surface des gouttes. Ensuite, les cristaux se transforment en liquide au cours de leur chute. La croissance en taille se fait à ce stade par coalescence gravitationnelle.

Par contre, dans les nuages tropicaux où la température est trop élevée pour assurer la présence de cristaux solides, la formation des gouttes de pluie est expliquée par la coalescence entraînée par l'agitation turbulente [1]. Par la suite, le dernier stade de la formation de la pluie par coalescence gravitationnelle se produit également.

Nous présentons d'abord l'équation régissant l'évolution en taille des gouttes, puis la détermination du taux de collision en écoulement turbulent homogène avec l'introduction de l'efficacité de collision. Nous exposons ensuite la méthode numérique puis les résultats.

2 Equation de population

2.1 Modèle de Smoluchowski

L'approche classique de Smoluchowski [9] consiste à partager l'histogramme continu des volumes des gouttes en classes discrètes de volume v_i , $i = 1, \dots, N$, tels que $v_i = i \times v_1$. Soit n_i le nombre de gouttes par unité de

*également ONERA, 8, rue des Vertugadins 92190 Meudon

volume dans la classe i . La variation temporelle de n_i s'écrit formellement sous la forme suivante:

$$\frac{dn_i}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} n_j n_{i-j} J_{j(i-j)} - n_i \sum_{j=1}^N J_{ij} n_j. \quad (1)$$

où J_{ij} représente le taux de collision entre les gouttes de classes i et j . Ce terme qui prend en compte la nature de l'écoulement porteur sera présenté dans le prochain paragraphe. Le premier terme du membre de droite de l'équation (1) correspond à la formation de nouvelles gouttes dans la classe i par coalescence de gouttes d'espèces j et k où $v_j + v_k = v_i$. Le deuxième terme est lié à la coalescence de gouttes de classes i avec d'autres gouttes d'espèce quelconque formant de nouvelles dont le volume est strictement supérieur à v_i .

Cette relation est vérifiée pour chaque valeur de i variant de 1 à N . Dans le cas où le taux de collision est constant, Smoluchowski détermine la solution exacte de (1). Si J_{ij} n'est plus constant il est nécessaire de recourir à une méthode numérique pour résoudre (1).

Une approche plus générale consiste à utiliser une modélisation continue de l'histogramme. Pour cela, on introduit la fonction de distribution $f(v, t)$. $f(v, t)dv$ est la concentration volumique de gouttes dont le volume est compris entre v et $v + dv$. On peut alors généraliser l'équation de Smoluchowski, (1), en remplaçant les termes n_i par $f(v_i, t)dv_i$. Les sommes se transforment en intégrales sur v . L'équation d'évolution de $f(v, t)$ est alors:

$$\frac{\partial f(v, t)}{\partial t} = \frac{1}{2} \int_{v_m}^{v-v_m} f(v', t) f(v-v', t) J(v', v-v') dv' - f(v, t) \int_{v_m}^{v_M} J(v, v') f(v', t) dv', \quad (2)$$

où v_m et v_M sont respectivement les volumes minimum et maximum.

La résolution numérique de l'équation de population nécessite la connaissance précise du taux de coalescence. La détermination de $J(v, v')$ en écoulement turbulent homogène isotrope est présentée ci-dessous.

3 Taux de collision

On supposera ici que deux gouttes entrant en collision vont coalescer. La détermination du taux de collision est limitée au cas de petites gouttes par rapport à l'échelle de Kolmogorov: $\eta_K = (\nu^3/\epsilon)^{1/4}$ où ν est la viscosité cinématique de la phase continue et ϵ est le taux de dissipation de l'énergie turbulente.

Le taux de collision correspond au flux de gouttes entrant dans la «sphère d'absorption» dont le rayon est égal à la somme des rayons des gouttes considérées. Pour des gouttes i (de volume v_i et rayon r_i) et j (de volume v_j et rayon r_j), le taux de collision J_{ij} est donné par la relation générale suivante:

$$J_{ij} = \pi(r_i + r_j)^2 \int \int \sqrt{\|\vec{w}\|} f_{ij}(\vec{c}_i, \vec{c}_j, t) d\vec{c}_i d\vec{c}_j. \quad (3)$$

\vec{w} est la vitesse relative entre les gouttes: $\vec{w} = \vec{c}_i - \vec{c}_j$. Les intégrales sont prises sur l'ensemble des vitesses possibles. L'élément différentiel $d\vec{c}_i$ est égal à $dc_{i1}dc_{i2}dc_{i3}$. La fonction $f_{ij}(\vec{c}_i, \vec{c}_j, t)$ est la probabilité de paire. Elle correspond à la probabilité de trouver deux gouttes de volume v_i, v_j distantes de $r_i + r_j$ et de vitesses \vec{c}_i, \vec{c}_j .

Dans le cas où les gouttes sont très petites par rapport à l'échelle de Kolmogorov, Saffman et Turner [8] trouvent comme taux de collision:

$$J_{ij} = \sqrt{\frac{8\pi}{15}} (r_i + r_j)^3 \sqrt{\frac{\epsilon}{\nu}}. \quad (4)$$

Cette solution est très proche de celle obtenue pour un écoulement de cisaillement simple [9] où le terme $\sqrt{8\pi/15}$ est remplacé par $4/3$ dont les valeurs numériques sont proches. (On a 1,29 pour le premier et 1,33 pour le second.)

Par contre, les interactions hydrodynamiques entre les gouttes ne sont pas prises en compte dans la présentation ci-dessus. Cependant, ces effets peuvent réduire le taux de collision. Nous introduisons pour tenir compte des interactions hydrodynamiques l'efficacité de collision E_{ij} . Le taux de collision devient alors:

$$J_{ij} = \sqrt{\frac{8\pi}{15}} (r_i + r_j)^3 \sqrt{\frac{\epsilon}{\nu}} E_{ij}. \quad (5)$$

E_{ij} est déterminé en prenant un écoulement de cisaillement simple de gradient $\sqrt{\epsilon/\nu}$. Cette méthode a été utilisée par Higashitani *et al* [2]. Le bon accord entre leurs résultats numériques et expérimentaux est encourageant pour l'utilisation de cette approche.

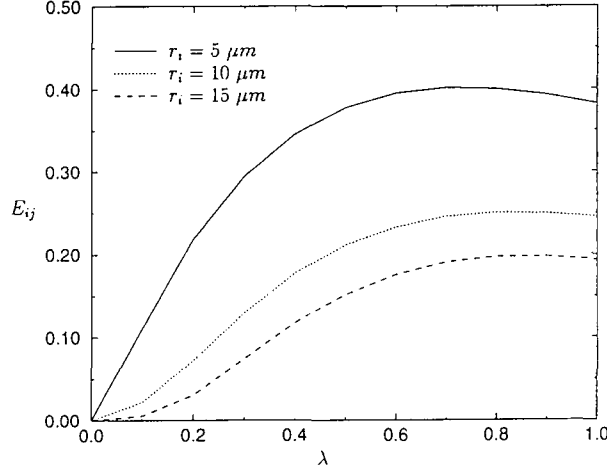


FIG. 1: Efficacite de collision pour un taux de cisaillement de $102,6 \text{ s}^{-1}$ et pour $r_i = 5, 10$ et $15 \text{ }\mu\text{m}$.

E_{ij} est calculé en utilisant les expressions des forces entre deux gouttes présentées dans [5]. E_{ij} est recherché en déterminant les sections de collision à l'aide du calcul des trajectoires relatives entre les gouttes [6]. Dans ce calcul, les forces à courte portée attractives (forces de van der Waals) et l'inertie des gouttes sont prises en compte. Nous donnons, sur la figure 1, E_{ij} pour un gradient de cisaillement égal à $102,6 \text{ s}^{-1}$ (i.e. $\epsilon = 0,15 \text{ m}^2/\text{s}^3$) et diverses valeurs de r_i en fonction du rapport des rayons $\lambda = r_j/r_i$. Notons que pour les tailles de gouttes considérées ici, l'inertie intervient peu.

On constate que lorsque le rapport des rayons est très faible, l'efficacité l'est également. Les perturbations hydrodynamiques sont très ressenties pour les petites gouttes lorsqu'elles sont à proximité de plus grosses gouttes. Sur la figure 1, nous voyons aussi que E_{ij} diminue lorsque le rayon r_i augmente. Cet effet est lié aux forces de van der Waals dont l'influence est d'autant plus grande que le rayon est faible.

4 Méthode numérique

Pour résoudre l'équation de population, (2), plusieurs techniques sont utilisées. Ici, nous avons choisi d'utiliser celle de Kovetz et Olund [4]. Il s'agit d'une discrétisation de l'équation (2) pour des gouttes dont les volumes sont répartis logarithmiquement. Les gouttes de la classe i ont un volume v_i . L'intervalle logarithmique entre les classes $i + 1$ et i est:

$$\log_a v_{i+1} - \log_a v_i = 1, \quad (6)$$

où a est la base du logarithme qu'il faut déterminer en tenant de la gamme de gouttes que l'on souhaite observer. On se fixe le nombre total de classes, noté N et les volumes minimum et maximum (v_m et v_M de rayons r_m et r_M). La valeur de a est alors déterminée par la relation:

$$a = \exp \left[\frac{\ln \left(\frac{v_M}{v_m} \right)}{N - 1} \right] = \exp \left[\frac{3 \ln \left(\frac{r_M}{r_m} \right)}{N - 1} \right]. \quad (7)$$

Ainsi, le volume et le rayon de la classe i sont:

$$v_i = v_1 a^{i-1}, \quad r_i = r_1 a^{\frac{i-1}{3}}. \quad (8)$$

L'avantage de l'échantillonnage logarithmique est la possibilité de décrire une large gamme de gouttes. L'inconvénient provient du fait que la coalescence entre deux gouttes de classes quelconques ne donnera par a priori des gouttes d'une classe définie. Pour pallier à ce problème, nous sommes obligés d'introduire un facteur B_{ijk} correspondant à la proportion de gouttes de classe i formées par la coalescence de gouttes de classes j et k . Nous utilisons ici la B-spline linéaire définie par:

$$B_{ijk} = \begin{cases} \frac{v_j + v_k - v_{i-1}}{v_i - v_{i-1}}, & \text{si } v_{i-1} < v_j + v_k \leq v_i \\ \frac{v_{i+1} - v_j - v_k}{v_{i+1} - v_i}, & \text{si } v_i < v_j + v_k < v_{i+1} \\ 0 & \text{si } v_j + v_k \leq v_{i-1}, \text{ ou } v_j + v_k \geq v_{i+1}. \end{cases} \quad (9)$$

Cette forme de B_{ijk} permet d'avoir conservation de la masse des gouttes. De plus, de façon à ne pas avoir de gouttes en dehors de notre gamme, on impose:

$$B_{ijk} = 0, \text{ si } v_j + v_k > v_M. \quad (10)$$

v_M doit être pris assez grand au départ.

L'équation donnant la variation temporelle de n_i est alors donnée par ([7], [4]):

$$\frac{dn_i}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^i \sum_{k=1}^i B_{ijk} J_{jk} n_j n_k - n_i \sum_{j=1}^N J_{ij} n_j. \quad (11)$$

Dans le cas où l'on prend un échantillonnage $v_i = i \times v_1$, l'équation (11) se transforme en celle de Smoluchowski, (1). En effet, il est facile de vérifier que dans ce cas, $B_{ijk} = \delta_{i,j+k}$.

La détermination granulométrique n'est pas faite en utilisant (11) sous cette forme. Nous faisons apparaître la fraction volumique α_i définie comme étant égale à $n_i v_i$. De plus, nous réalisons un adimensionnement en utilisant comme échelle de temps: $1/(\alpha_t \sqrt{\epsilon/\nu})$ où α_t est la fraction volumique totale de la phase dispersée. En introduisant les quantités suivantes:

$$\bar{\alpha}_i = \frac{\alpha_i}{\alpha_t}, \quad \bar{J}_{jk}^i = \frac{\tilde{J}_{jk}^i}{\sqrt{\frac{\epsilon}{\nu}}}, \quad \tau = t \alpha_t \sqrt{\frac{\epsilon}{\nu}}, \quad (12)$$

où \tilde{J}_{jk}^i est donné par:

$$\tilde{J}_{jk}^i = \frac{v_i J_{jk}}{v_j v_k}, \quad (13)$$

l'équation (11) devient:

$$\frac{d\bar{\alpha}_i}{d\tau} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^i \sum_{k=1}^i B_{ijk} \bar{J}_{jk}^i \bar{\alpha}_j \bar{\alpha}_k - \bar{\alpha}_i \sum_{j=1}^N \bar{J}_{ij}^j \bar{\alpha}_j. \quad (14)$$

Dans la suite, nous avons pris 25 classes, d'où un système de 25 équations différentielles. Ce dernier ayant un caractère raide, nous avons utilisé une méthode semi-implicite d'ordre 4 développée par Kaps et Rentrop [3].

5 Résultats et discussion

Dans le but d'appliquer cette méthode à l'observation de la granulométrie dans un nuage, nous avons choisi de prendre un taux de dissipation d'énergie turbulente correspondant à ce que l'on trouve dans les cumulus avec une forte convection. Fuchs [1] indique des valeurs de ϵ de l'ordre de $0,15 \text{ m}^2/\text{s}^3$. La viscosité cinématique de l'air est prise égale à $1,425 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$. L'échelle de Kolmogorov, η_K est égale dans ces conditions à $372,68 \mu\text{m}$. Concernant les gouttes, on prend dans un premier temps, un échantillonnage réparti uniformément en volumes (cas de Smoluchowski). La première classe est prise avec un rayon de $5 \mu\text{m}$. Ce qui donne pour la dernière espèce ($N=25$) un rayon de $14,62 \mu\text{m}$. L'hypothèse de petites gouttes par rapport à η_K est donc bien vérifiée. La distribution est supposée monodisperse à l'instant $t = 0$. Toutes les gouttes sont considérées appartenir à la classe 1 à l'instant initial. La fraction volumique totale est prise égale à 1×10^{-6} . Nous résolvons le système d'équations (14) jusqu'à ce que nous atteignons un certain pourcentage d'augmentation d'un rayon moyen. Pour cette première étude nous avons pris le rayon moyen de Sauter défini par la relation:

$$r_{32} = \frac{\sum_{i=1}^N \bar{\alpha}_i}{\sum_{i=1}^N \frac{\bar{\alpha}_i}{r_i}}. \quad (15)$$

Les calculs sont faits à la fois en prenant en compte ou non l'efficacité de collision. Nous donnons dans le tableau 1 les temps de coalescence calculés pour obtenir une augmentation donnée du rayon de Sauter. Il apparaît que la prise en compte de l'efficacité de collision entraîne une augmentation du temps de coalescence. Ceci est logique car l'introduction de E_{ij} s'accompagne d'une diminution du taux de collision.

Nous avons représenté sur les figures 2, 3 la granulométrie pour différentes valeurs du rayon de Sauter obtenue avec la prise en compte ou non des interactions hydrodynamiques. Il est à remarquer que l'introduction ou non

Pourcentage	Temps de coales. sans E_{ij} (min)	Temps de coales. avec E_{ij} (min)
10%	30, 50	50, 50
20%	58, 58	99, 06
30%	84, 54	145, 87
40%	108, 22	190, 62
50%	129, 06	232, 03

TAB. 1: Temps de coalescence avec ou sans interaction hydrodynamique pour différents accroissements du rayon moyen de Sauter.

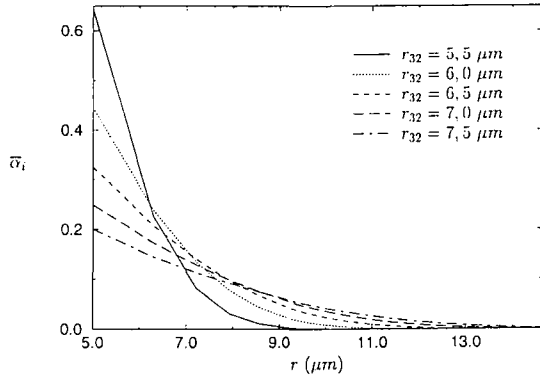


FIG. 2: Granulométrie obtenue avec E_{ij} pour différentes valeurs du rayon de Sauter.

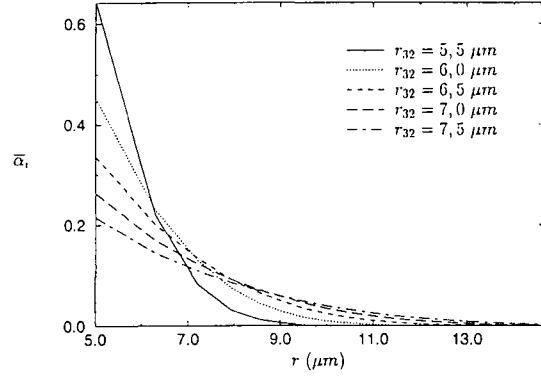


FIG. 3: Granulométrie obtenue sans E_{ij} pour différentes valeurs du rayon de Sauter.

de E_{ij} ne change pas trop la forme du spectre de goutte à un rayon de Sauter donné. La granulométrie devient de plus en plus large avec l'augmentation de r_{32} ou avec le temps. Le calcul ne peut plus être poursuivi pour des rayons de Sauter plus grand car l'apparition de concentrations volumiques non-négligeables pour les grosses gouttes entraîne la formation de gouttes qui sortent de la gamme de rayons que l'on s'est fixée.

Sur la figure 4, nous avons tracé l'évolution temporelle des concentrations volumiques pour les cinq première classes de gouttes. La classe 1 a initialement une concentration unité et ensuite cette dernière décroît en fonction du temps suivant approximativement une loi hyperbolique. Quant à la classe 2, elle commence par augmenter pour diminuer à partir de $\tau = 0,5$.

Il est intéressant de comparer notre résultat numérique avec la solution de Smoluchowski [9] obtenue en prenant un taux de collision constant. Cette solution pour les fractions volumiques est rappelée ci-dessous:

$$\bar{\alpha}_i(\tau) = \frac{i\tau^{i-1}}{(1+\tau)^{i+1}}. \quad (16)$$

Sur la figure 5, les fractions volumiques pour les trois premières classes sont représentées en utilisant les résultats numériques et la solution de Smoluchowski. On constate que la solution de Smoluchowski s'écarte de plus en plus du résultat numérique lorsque τ augmente. Elle sous-estime la fraction volumique de la première espèce. Il s'en suit une sur-estimation des autres classes. Par contre, on peut remarquer que la classe $r_2 = 6,3 \mu\text{m}$, admet un maximum pour $\tau = 0,5$ pour les deux solutions.

Dans cette présentation, nous avons cherché à obtenir la solution numérique de l'équation de population d'un nuage de gouttes en écoulement turbulent homogène et isotrope. Le taux de collision qui a été utilisé ne peut convenir que pour de très petites gouttes par rapport à l'échelle de Kolmogorov. Dans le cas où les gouttes sont plus grosses, il est nécessaire de revoir la détermination de J_{ij} . Nous avons également introduit dans les calculs l'efficacité de collision. Cette dernière entraîne des augmentations du temps de coalescence. La méthode numérique utilisant les B_{ijk} peut être remplacée par une interpolation plus précise (B-splines cubiques). Le manque de données rend difficile la comparaison de nos résultats avec des études expérimentales. Nous pouvons seulement envisager des confrontations qualitatives avec les temps de coalescence observés dans les nuages. Ce travail est en cours.

Remerciements

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

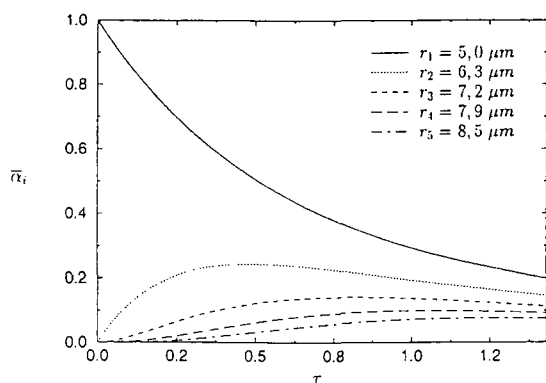


FIG. 4: Concentration volumique en fonction du temps adimensionné pour les 5 premières classes de gouttes.

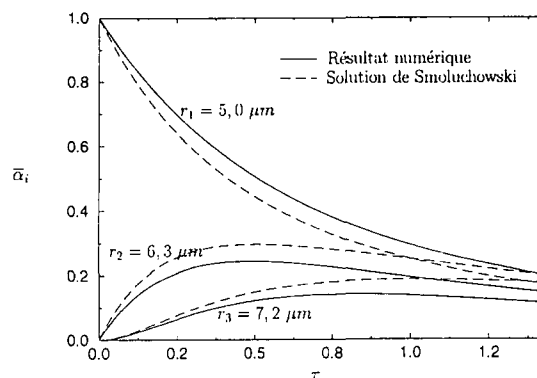


FIG. 5: Comparaison entre la solution de Smoluchowski et le résultat numérique pour les 3 premières classes de gouttes.

Références

- [1] N. A. Fuchs. *The mechanics of aerosols*. Pergamon Press, Oxford, 1964.
- [2] K. Higashitani, K. Yamauchi, Y. Matsuno, and G. Hosokawa. Turbulent coagulation of particles dispersed in a viscous fluid. *J. Chem. Eng. Japan*, 16(4):299–304, 1983.
- [3] P. Kaps and P. Rentrop. Generalized Runge-Kutta methods of order four with stepsize control for stiff ordinary differential equations. *Numer. Math.*, 33:55–68, 1979.
- [4] A. Kovetz and B. Olund. The effect of coalescence and condensation on rain formation in a cloud of finite vertical extent. *J. Atmos. Sci.*, 26:1060–1065, 1969.
- [5] F. Pigeonneau and F. Feuillebois. Drag forces on two drops embedded in a general linear flow field. *ZAMM*, soumis, 1997.
- [6] F. Pigeonneau and F. Feuillebois. Trajectoires et collision de gouttes dans un écoulement à taux de déformation constant. In *13^{ème} Congrès Français de Mécanique*, volume Tome 1, pages 305–308, Poitiers-Futuroscope, 1-5 septembre 1997.
- [7] H. R. Pruppacher and J. D. Klett. *Microphysics of clouds and precipitation*. D. Reidel publishing company, 1978.
- [8] P. G. Saffman and J. S. Turner. On the collision of drops in turbulent clouds. *J. Fluid Mech.*, 1:16–30, 1956.
- [9] M. V. Smoluchowski. Versuch einer mathematischen Theorie der Koagulationskinetik kolloider Lösungen. *Z. Phys. Chem.*, 92:129–168, 1917.

Diffusion d'un faisceau laser focalisé par un cylindre circulaire infini: résultats numériques

L. Mees, G. Gouesbet et G. Gréhan

December 18, 1997

Abstract

Numerical results describing the light scattered by an infinite circular cylinder illuminated by a focused Gaussian beam are presented. The computations rely on the GLMT for cylinders. The location and orientation of the scattering cylinder are arbitrary.

Résumé

Cet article présente les premiers résultats numériques décrivant les propriétés de la lumière diffusée par un cylindre infini éclairé par un faisceau gaussien. Les calculs sont réalisés dans le cadre rigoureux de la TLMG pour cylindres. La position et l'orientation du cylindre circulaire diffusant sont arbitraires par rapport au faisceau d'éclairage.

1 Introduction

Bien que, dans la nature comme dans l'industrie, la forme cylindrique soit une forme courante (au moins de manière approximative), il existe beaucoup moins de travaux dédiés à la diffusion de la lumière par de

tels objets que par des sphères. Pourtant, la maîtrise des propriétés de la lumière diffusée par un cylindre infini doit permettre l'amélioration ou le développement de nouvelles techniques de mesures optiques concernant ce type de particules. Un tel travail a déjà été effectué pour la mesure du diamètre de cylindres par anémométrie phase Doppler laser [1] [2]. Cependant ces travaux ont été réalisés dans le cadre de l'optique géométrique [1] ou en supposant que le cylindre diffusant était parfaitement perpendiculaire aux faisceaux incidents [2]. Ici, nous décrivons la diffusion d'un faisceau laser gaussien circulaire par un cylindre de position arbitraire et d'orientation arbitraire dans le cadre rigoureux de la théorie de Lorenz-Mie généralisée (TLMG) pour les cylindres.

Cet article est organisé comme suit. La section 2 rappelle le cadre théorique de cette étude. Les principales publications, supports de nos calculs, sont citées. La section 3 présente des prédictions numériques. Elle est organisée en trois sous-sections. La première est dédiée à une description qualitative de la diffusion d'un faisceau laser par un cylindre

infini dans le cadre de l'optique géométrique. Elle sert de base à la compréhension de la deuxième sous-section où une description quantitative dans le cadre de la théorie de Lorenz-Mie généralisée est donnée. La troisième sous-section est dédiée au cas particulier de l'arc-en-ciel. Enfin la section 4 est une conclusion.

2 Cadre théorique

La TLMG pour les cylindres est basée sur la résolution des équations de Maxwell avec les conditions aux limites appropriées pour cette géométrie. Pour ce faire, des potentiels scalaires, dits de Bromwich, sont introduits. Ils sont écrits sous la forme de séries de Fourier d'ondes partielles cylindriques, où les coefficients sont à déterminer en fonction de la forme du faisceau incident d'une part, et de la position et de l'orientation du cylindre diffusant d'autre part. Puis des potentiels scalaires de Bromwich sont aussi introduits pour le champ à l'intérieur du cylindre et le champ diffusé à l'extérieur du cylindre. Les nouveaux coefficients introduits dans ces séries de Fourier sont déterminés à l'aide des conditions aux limites à la surface du cylindre (continuité des composantes tangentes du champ électromagnétique) et à l'infini. Ce travail est décrit dans les références [3] [4].

Le calcul numérique des coefficients des séries de Fourier décrivant les champs électromagnétiques (en particulier diffusé) est effectué dans le cadre d'une approximation localisée. Comme pour le cas d'une incidence normale du faisceau gaussien sur le cylindre

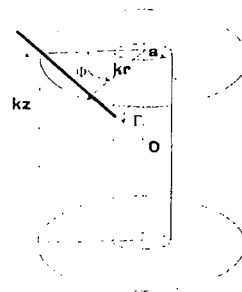


Figure 1: La géométrie du problème.

[5][6], une justification rigoureuse de cette approximation existe pour le cas général considéré ici [7].

3 Prédictions

Toutes les prédictions présentées décrivent le champ électromagnétique sur une surface cylindrique de rayon adimensionalisé kr , où k est le nombre d'ondes dans le milieu environnant (voir Fig 1). L'axe de cette surface cylindrique est confondu avec l'axe du cylindre diffusant de rayon a et d'indice de réfraction M . L'angle Γ caractérise l'orientation du faisceau incident par rapport à l'axe du cylindre (détails dans [4]) Un point courant de la surface d'observation est repéré par les coordonnées Φ et kz . Le faisceau incident a son col dans le plan $kz = 0$.

Dans la prochaine sous-section, les principales caractéristiques géométriques de la lumière diffusée sont décrites à l'aide de l'op-

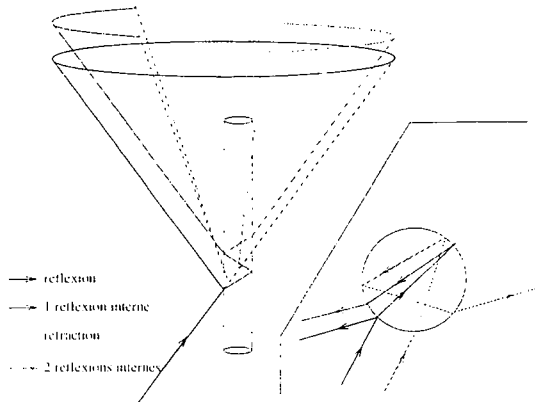


Figure 2: Représentation schématique de la diffusion d'un faisceau laser par un cylindre.

tique géométrique afin de faciliter la lecture des cartes de la sous-section 3.2.

3.1 Prédiction qualitative

Une différence essentielle entre la diffusion par une sphère et par un cylindre est que la sphère diffuse la lumière dans tout l'espace tandis que la lumière diffusée par un cylindre est localisée sur des cônes. Cet effet est schématisé sur la figure 2. La distance entre ces cônes dépend du diamètre du cylindre diffusant, de son indice de réfraction et de l'angle entre le faisceau incident et le cylindre diffusant Γ . En outre, l'existence d'un angle limite de réfraction implique que, pour chacun des types de lumière associé avec un cône donné (réflexion externe, réfraction, réfraction après une réflexion interne, ...), seule une portion du cône support sera illuminée.

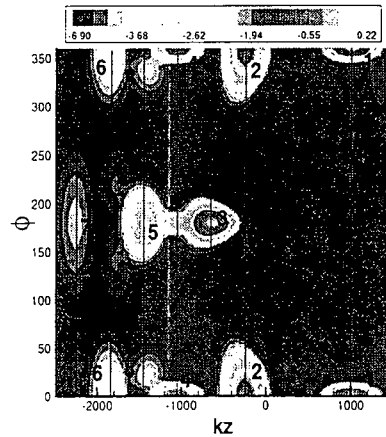


Figure 3: Lumière diffusée par un cylindre centré sur le faisceau.

3.2 Prédiction quantitative

La figure 3 illustre la distribution d'intensité prédite sur la surface cylindrique d'observation pour une fibre de verre ($M = 1.5$) d'un diamètre de $60 \mu m$, éclairée par un faisceau laser gaussien d'un diamètre au col de $16 \mu m$, pour une longueur d'onde de $0.5 \mu m$. L'angle d'incidence Γ du faisceau sur la fibre est de $\pi/4$. La surface cylindrique d'observation a un rayon de $80 \mu m$ (les observations sont effectuées à environ deux rayons de la surface de la fibre diffusante). Afin de faciliter la lecture, la surface cylindrique d'observation a été dépliée. Sur la figure 3, les différentes taches sont numérotées selon la convention suivante:

1. Le faisceau incident
2. La lumière réfléchie
3. La lumière directement réfractée

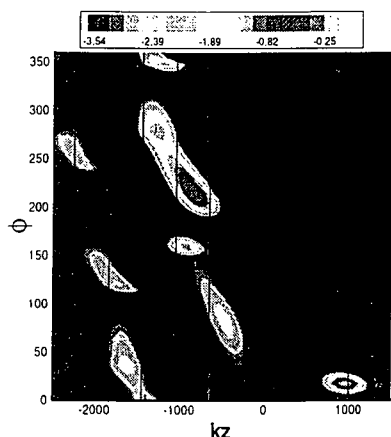


Figure 4: Lumière diffusée pour un cylindre décentré par rapport au faisceau d'éclairage.

4. La lumière réfractée après une réflexion interne
5. La lumière réfractée après deux réflexions internes
6. La lumière réfractée après trois réflexions internes
7. La lumière réfractée après quatre réflexions internes

Une première constatation est le bon accord entre les positions prédites par l'optique géométrique (lignes continues) et la position des maxima des taches 2 à 7. En outre, le faisceau d'éclairage étant environ quatre fois plus petit que la fibre, la lumière diffusée est localisée aux alentours du plan défini par la fibre et le faisceau incident. Il n'y a pas de lumière diffusée latéralement.

La figure 4 illustre la diffusion du même faisceau laser par la même fibre, mais le fais-

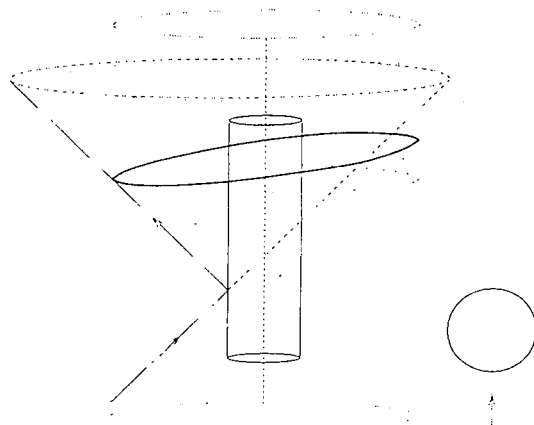


Figure 5: Schéma décrivant la déformation du cône de diffusion pour la lumière réfléchie.

ceau incident est décentré d'une fois et demi sa largeur ($24 \mu m$). La symétrie par rapport à $\Phi = 0^\circ$ est perdue. Il est possible de distinguer les contributions réfléchie (2), réfractée (3), réfractée après une réflexion interne (4), .. Cependant, le maximum d'intensité de ces taches ne correspond plus aux prédictions de l'optique géométrique (lignes continues) précédentes. Ces taches ne sont plus orientées à kz constant, mais avec un angle. Ceci est du au fait que la lumière n'est pas diffusée sur un cône centré sur l'axe. La figure 5, pour la lumière réfléchie, schématise ce phénomène. Sur cette figure deux rayons sont tracés: l'un est celui qui voyage dans le plan médian du cylindre, l'autre est tangent au bord du cylindre. A chacun de ces rayons il est possible d'associer un cône de diffusion. Un rayon avec un impact intermédiaire se situera entre ces deux limites. De plus il faut souligner la présence d'une tache

(T) qui était déjà présente sur la figure 3, où elle lie les taches 3 et 5. Cette tache correspond à l'impact du faisceau incident sur la surface d'observation en absence de fibre. Il n'est pas clair, à l'heure actuelle, que cette tache résulte d'un artefact de calcul ou d'un processus physique qui ne se laisserait pas décrire qualitativement en termes d'optique géométrique (par exemple résultant d'ondes de surface).

3.3 L'arc-en-ciel

La description des propriétés de la lumière diffusée aux alentours des angles d'arc-en-ciel est d'un intérêt fondamental et appliqué important. En effet, basées sur la mesure de la lumière diffusée aux angles d'arc-en-ciel, des techniques de mesure de température de gouttes et de cylindres se développent [8] [9]. Pour ces techniques, il est critique de décrire l'évolution de l'arc-en-ciel en fonction de l'écart à la sphéricité de la particule diffusante. Cette évolution est décrite, dans le cadre de l'optique géométrique par Moebius [10], et plus récemment, par une méthode intégrale de surface par van Beeck et Reithmuller [11]. Dans le cadre de cet article, lorsque l'angle d'incidence du faisceau évolue à partir de 90° , la section circulaire du cylindre devient elliptique. Nous pouvons donc proposer une vérification des formules de Moebius dans un cadre électromagnétique rigoureux. La figure 6 compare les diagrammes de diffusion aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel pour un faisceau incident perpendiculaire à l'axe du cylindre et un faisceau incliné de 10.8° ($\Gamma = 79.2^\circ$). La distance d'observation est

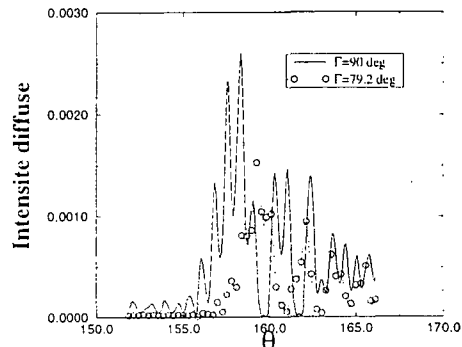


Figure 6: Diagramme de diffusion aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel pour un éclairage normal à l'axe ou incliné de 10.8° .

$kr = 10^5$. Pour une incidence perpendiculaire, l'observation est réalisée à $kz = 0$. Pour l'incidence inclinée à 10.8° , l'observation est réalisée pour une valeur kz d'environ -19500 .

La correspondance entre ellipticité et angle d'incidence est donnée par $\frac{d_{ga}}{d} = \frac{1}{\sqrt{\frac{m^2 - \sin^2 \gamma}{m^2}}}$ où $\gamma = \frac{\pi}{2} - \Gamma$. Ainsi une ellipticité d'environ 1% est obtenue pour une inclinaison de $\gamma = 10.8^\circ$. A cette ellipticité, l'analyse de Moebius fait correspondre un glissement de l'arc-en-ciel d'environ 0.75° . Cette prédiction est compatible avec les diagrammes de la figure 6. Sur ces bases, une analyse complète est en cours.

4 Conclusion

Nous présentons dans cet article les premiers résultats numériques décrivant la diffusion d'un faisceau laser focalisé par un cylin-

dre circulaire infini de position et d'orientation arbitraires dans un cadre électromagnétique rigoureux. Les résultats obtenus confirment les prédictions qualitatives de l'optique géométrique tout en affinant fortement notre compréhension de cette interaction.

References

- [1] H. Mignon, G. Gréhan, G. Gouesbet, T.H. Xu, and C. Tropea. Measurement of cylindrical particles with phase Doppler anemometry. *Applied Optics*, (25):5180–5190, 1996.
- [2] N. Gauchet, T. Girasole, K.F. Ren, G. Gréhan, and G. Gouesbet. Application of generalized Lorenz-Mie theory for cylinders to cylindrical characterization by phase-Doppler anemometry. *Optical Diagnostic in Engineering*, 2(1):1–10, 1997.
- [3] G. Gouesbet. Interaction between Gaussian beams and infinite cylinders, by using the theory of distributions. *J. of Optics (Paris)*, 26(5):225–239, 1995.
- [4] 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.
- [5] K.F. Ren, G. Gréhan, and G. Gouesbet. Scattering of a Gaussian beam by an infinite cylinder in GLMT-framework, formulation and numerical results. To be published in J.O.S.A. A.
- [6] G. Gouesbet, K.F. Ren, and G. Gréhan. Rigorous justification of the cylindrical approximation to speed up computations in GLMT for cylinders. To be published by Appl. Opt.
- [7] G. Gouesbet, K.F. Ren, and G. Gréhan. The cylindrical localized approximation to speed up computations in the GLMT for cylinders, for arbitrary location and orientation of the scatterer. Submitted to JOSA A.
- [8] J.P.A.J van Beeck and M.L. Riethmuller. Nonintrusive measurements of temperature and size of single falling raindrops. *Appl. Opt.*, 34(10):1633–1639, 1995.
- [9] F. Corbin, A. Garo, G. Gouesbet, and G. Gréhan. Réfractométrie d'arc-en-ciel: Application au diagnostic de gouttes avec gradient d'indice. In *5ème congrès Francophone de Vélocimétrie Laser, Rouen, 24-27 Septembre 1996*, pages E1.1–E1.8, 1996.
- [10] W. Möebius. Zur Theorie des Regenbogens und ihrer experimentellen Prüfung. *Annalen der Physik*, IV(33):1498–1558, 1911.
- [11] J.P.A.J. van Beeck and M.L. Riethmuller. Surface integral method to quantify the droplet non-sphericity effect on rainbow thermometry. Symposium on Advanced Aerodynamic Measurement Technology, Seattle Washington, USA, Sept 22-25, 1997.

LA CHARGE ELECTRIQUE DES AEROSOLS RADIOACTIFS ARTIFICIELS EMETTEURS ALPHA ET BÊTA

F. GENSDARMES^{1,2}, 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, Bat 389, 91191 Gif-sur-Yvette cedex, France.

²Université Paris XII
Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations
Av. du Général de Gaulle, 94010 Créteil cedex, France.

The electrostatic charging of artificial alpha and beta-active aerosols.

Abstract. The electrostatic charge of particules is an important characteristic of radioactive aerosols. It influences the aerosol coagulation, deposition and the transport in a containment. In the present work, we review the different existing studies on the self-charging of radioactive aerosols. Very few experimental data are available, making not reliable the validation of the existing theories. We use the self-charging theory developed by Clement and Harrison (1992) to calculate the charge distribution of two β emitter aerosols having different specific activities : the first correspond to an aerosol that could be released and dispersed during an accident, the second correspond to a test aerosol that can be generate in a laboratory facility. These theoretical results allow us to determine the existing constraints for conducting reliable and accurate measurements on the charge distribution of a radioactive aerosol.

INTRODUCTION

L'effet de la radioactivité sur le comportement des aérosols est un sujet qui intéresse différents domaines d'activités, comme la sûreté des réacteurs ou les études dosimétriques concernant le dépôt des aérosols dans les voies respiratoires. En situation d'accident à l'intérieur d'une installation nucléaire, les aérosols apparaissent comme le principal vecteur de la contamination radioactive. Dans les analyses de sûreté, on utilise des modèles destinés à prévoir les transferts de contaminations à l'intérieur et vers l'extérieur des installations de réacteurs, notamment les enceintes de confinement. Cependant, les effets possibles de la charge électrique des aérosols radioactifs ne sont pas pris en considération dans ces modèles de transferts de contaminations (Mc Donald 1988).

Clement et Harrison (1990) soulignent le fait que le comportement des aérosols, notamment radioactifs, est affecté par les phénomènes électrostatiques. On peut citer les conséquences suivantes : le transport des particules d'aérosols électriquement chargées est soumis aux forces créées par un champ électrique; le phénomène de coagulation brownienne entre les particules chargées; le dépôt des particules chargées sur les parois conductrices du fait de la force image.

Pour un aérosol en présence d'ions bipolaires, la charge électrique des particules est due au mécanisme de diffusion des ions vers la surface des particules. La loi de Boltzmann donne la probabilité de trouver n charges élémentaires sur une particule de rayon a , à l'état stationnaire (Keefe et al. 1959). Cette loi suppose une distribution symétrique des charges positives et négatives, elle décrit donc un état électriquement neutre de l'aérosol. Un aérosol radioactif produisant des ions bipolaires à chaque émission alpha ou bêta, est donc soumis à ce processus de neutralisation. Les particules radioactives sont également soumises à un mécanisme supplémentaire : l'auto-chargement. En effet, lors d'une désintégration, la particule alpha ou bêta éjectée arrache des électrons sur la particule d'aérosol. L'émission de ces électrons secondaires entraîne une charge résiduelle sur la particule estimée entre 5e et 40e (Ivanov et al. 1969). Ce processus d'auto-chargement est fonction de l'activité spécifique des particules et du nombre d'électrons secondaires émis. La figure (1) illustre ces principaux phénomènes.

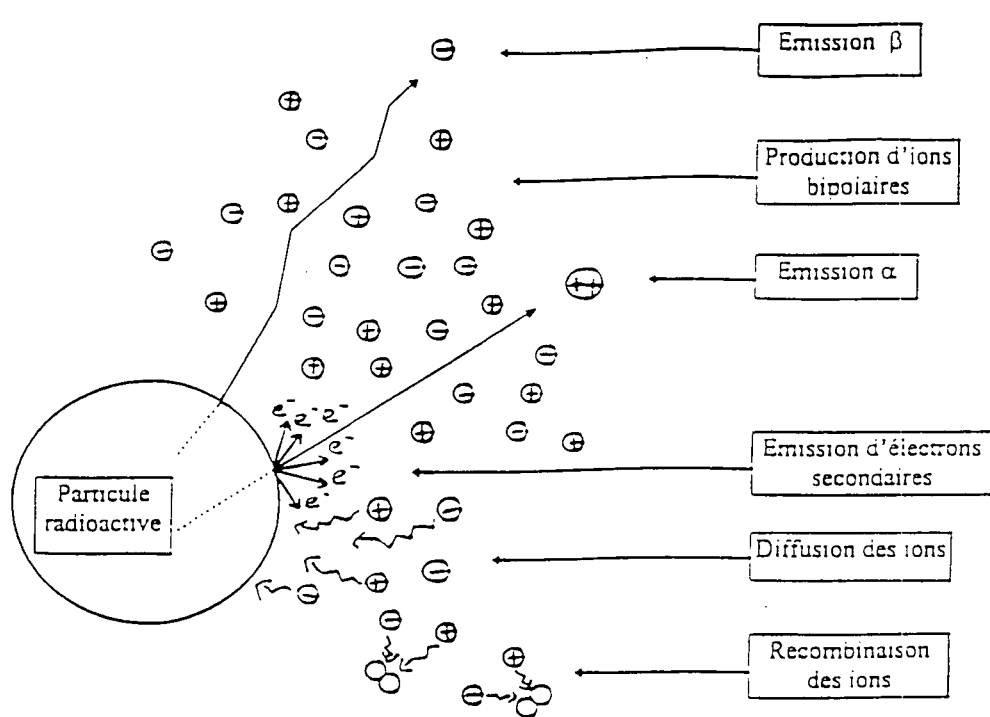


Figure 1 : Processus de charge d'un aérosol radioactif émetteur alpha ou bêta.

ANALYSE DES TRAVAUX ANTERIEURS

Peu d'expériences ont été réalisées sur le mécanisme d'auto-chargement des aérosols radioactifs artificiels. En 1976, Yeh et al. mettent en évidence expérimentalement un chargement positif sur un aérosol radioactif. Les auteurs étudient la distribution de charges d'un aérosol monodispersé marqué par un émetteur bêta (^{198}Au) et montrent que la charge moyenne croît avec l'activité spécifique des particules. Puis en 1978, Yeh et al. effectuent une étude sur la charge d'un aérosol monodispersé émetteur alpha de $^{238}\text{PuO}_2$. Leur distribution expérimentale montre un chargement positif de l'aérosol radioactif. Une charge moyenne $\bar{n}=2,84\pm 3,29$ est obtenue pour une activité spécifique de 1,92 Bq/particule. Les auteurs effectuent également une expérience avec un aérosol industriel polydispersé de MOX (mélange d'oxydes d'uranium et de plutonium) dont les particules sont faiblement actives ($2,8 \cdot 10^{-4}$ Bq/particule). Dans ce cas, la distribution expérimentale de charges ne permet pas de mettre en évidence un auto-chargement de l'aérosol.

D'après l'étude théorique de Liu et Pui (1974) sur la neutralisation des aérosols, Yeh (1976) propose une équation qui permet le calcul de l'évolution de la charge moyenne sur un aérosol monodispersé, soumis à un processus d'auto-chargement :

$$\frac{dn}{dt} = (J_+ - J_-) + S. \quad (1)$$

$$\text{avec } J_+ = 4\pi DaN \cdot \frac{ne^{-e/akT}}{\exp(ne^{-e/akT}) - 1} \quad \text{et} \quad J_- = 4\pi DaN \cdot \frac{ne^{e/akT}}{1 - \exp(-ne^{e/akT})} \quad (2)$$

J_+, J_- : expression des flux d'ions positifs et négatifs (ions/s) en régime continu ($a \gg$ libre parcours moyen du gaz) sur une particule chargée d'après Gunn (1954),

a : rayon de la particule d'aérosol (m),

n : nombre de charges élémentaires sur une particule,

S : taux d'auto-chargement (charges élémentaires/s),

D : coefficient de diffusion des ions (m^2/s),

N : concentration de paires d'ions (m^{-3}),

k : constante de Boltzmann ($1,38 \cdot 10^{-23}$ J/K),

T : température absolue (K),

e : charge élémentaire ($1,6 \cdot 10^{-19}$ C)

t : temps (s).

Pour $t \rightarrow \infty$ la solution de (1) donne :

$$n_{\infty} = \frac{S}{K} \quad \text{avec } K = 4\pi \cdot e \cdot \mu \cdot N \quad \text{et } \mu : \text{mobilité électrique des ions } m^2/V/s. \quad (3)$$

Cette équation donne une estimation de la charge à l'état stationnaire sur un aérosol radioactif. Reed et al. (1977) développent ensuite un modèle prenant en compte l'évolution de la concentration en ions positifs et négatifs dans le milieu en fonction de la fixation par diffusion sur les particules, ainsi que la recombinaison. Les auteurs effectuent une résolution numérique des équations qui permet d'observer l'évolution de la charge moyenne. D'après leurs équations, la charge moyenne n_{∞} à l'état stationnaire peut s'exprimer par :

$$n_{\infty} \cong \frac{mkT}{4\pi e^2 D} \sqrt{\frac{\alpha \eta}{IC}} \quad \text{pour } n_{\infty} \cdot e^2 / a \cdot k \cdot T \gg 1 \quad (4)$$

m : nombre d'électrons secondaires émis à chaque désintégration,

α : coefficient de recombinaison des ions (m^3/s),

η : activité spécifique des particules (Bq/particule),

I : nombre de paires d'ions créées à chaque désintégration,

C : concentration numérique de l'aérosol (particules/ m^3).

Dans une approche plus probabiliste, Kascheev et al. (1991) déterminent la valeur la plus probable de la charge d'une particule radioactive dans un bain d'ions positifs et négatifs de concentrations respectives N_+ et N_- . Cette valeur est équivalente à la relation (3) de Yeh (1976). Les auteurs donnent également un critère pour déterminer dans quelles conditions la distribution de charges est affectée par l'auto-chargement des particules, soit :

$$m \cdot \eta \gg 4\pi \cdot a \cdot D_- \cdot N_- \quad (5)$$

D_- : coefficient de diffusion des ions négatifs (m^2/s), N_- : concentration des ions négatifs (m^{-3}).

Les auteurs soulignent que l'application de ce critère aux conditions atmosphériques ($N_- \approx 500$ ions/ cm^3 ; $D_- \approx 3 \cdot 10^{-2}$ cm^2/s) implique $\eta > 0,1$ Bq/particule pour $a = 1 \mu m$. Dans ce cas, la charge la plus probable est supérieure à $80e$. En revanche, pour de plus faibles activités spécifiques, le processus d'auto-chargement n'influence pratiquement pas la charge de l'aérosol en milieu bipolaire.

A partir des études théoriques précédentes, Clement et Harrison (1992) établissent les équations d'évolution de la distribution de charges sur un aérosol monodispersé, ainsi que l'évolution de la concentration en ions dans le milieu. Leurs équations tiennent compte de l'asymétrie entre la mobilité des ions positifs et négatifs, ainsi que des termes sources et puits d'ions pour un aérosol radioactif (ionisation α et β , diffusion et recombinaison). Les auteurs proposent une résolution numérique des équations pour déterminer la distribution de charges sur l'aérosol en fonction du temps, ainsi qu'une solution analytique approchée pour le calcul de la charge moyenne \bar{n} à l'état stationnaire. Ils proposent également un critère de charge ainsi qu'un critère de neutralisation sur la concentration de l'aérosol défini par :

$$\bar{n} \approx 0 \quad \text{pour } C > \alpha \cdot I \cdot \eta / \beta^2$$

\bar{n} : charge moyenne des particules d'aérosol en nombre de charges élémentaires,

β : coefficient de fixation des petits ions sur les particules d'aérosol (m^3/s).

Pour $C < \alpha \cdot I \cdot \eta / \beta^2$ la solution approchée pour déterminer la charge moyenne à l'état stationnaire est fonction de trois paramètres adimensionnels :

$$x = \frac{N_+ \cdot \mu_+}{N_- \cdot \mu_-}, \quad \lambda = \frac{e^2}{8\pi \cdot \epsilon_0 \cdot a \cdot k \cdot T}, \quad y = \frac{\epsilon_0 \cdot \eta}{e \cdot \mu_- \cdot N_-}, \quad (6)$$

avec μ_+ ; μ_- : mobilités des ions positifs et négatifs ($m^2/V/s$), ϵ_0 : permittivité du vide ($8,85 \cdot 10^{-12}$ F/m), e : charge élémentaire ($1,6 \cdot 10^{-19}$ C), k : constante de Boltzmann ($1,38 \cdot 10^{-23}$ J/K), a : rayon de la particule (m), N_- et N_+ : concentration d'ions négatifs et positifs (m^{-3}).

La solution approchée de la charge moyenne à l'état stationnaire s'écrit alors :

$$\bar{n} = m \cdot y \left(1 - \frac{x-1}{\exp(2\lambda J) - 1} \right)^{-1} \quad \text{pour } \lambda y > 0,22, \quad (7)$$

$$\bar{n} = m \cdot y + \frac{x-1}{2\lambda} \quad \text{pour } \lambda y \leq 0,22, \quad (8)$$

Le temps τ pour atteindre l'état stationnaire est estimé par :

$$\tau = \frac{y}{\eta} = \frac{1}{\beta_- \cdot N_-} \cong \frac{1}{\beta_-} \left(\frac{\alpha}{I \cdot \eta \cdot C} \right)^{1/2}, \quad (9)$$

et le critère pour obtenir un aérosol fortement chargé ($\bar{n} > 10e$) par l'expression suivante :

$$C \ll C_{cr} = \frac{m^2 \cdot \eta \cdot \alpha}{\beta^2 \cdot I}. \quad (10)$$

Le tableau 1 compare la charge moyenne obtenue à l'état stationnaire d'après les différentes théories pour les conditions expérimentales de Yeh et al. (1976). On constate un écart entre les théories et l'expérience, qui peut être important, d'une part à cause de l'incertitude sur la valeur de I , d'autre part du fait que la mesure expérimentale n'est pas réalisée à l'état stationnaire. Cette dernière cause est surtout sensible pour les faibles activités spécifiques des particules.

activité spécifique (Bq/particule)	Yeh et al. (1976) (expériences)	Yeh (1976) théorie éq. (3)	Reed et al.(1977) éq. (4)	Clement et Harrison (1992) éq. (7)
0,470	+9,0	+12,8	+13,8	+12,1
0,210	+5,2	+8,6	+9,2	+8,0
0,077	+1,9	+5,2	+5,6	+4,7

Tableau 1 : Charge moyenne d'après les différentes théories citées.

Les caractéristiques de l'aérosol sont les suivantes : $a=0,265\mu\text{m}$; $C=15\text{p/cm}^3$; $\mu=1,20 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V/s}$ (Yeh; Reed et al.); ($\mu_+=1,14 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V/s}$ et $\mu_-=1,25 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V/s}$: théorie de Clement et Harrison); $I=64,6$ paires d'ions/désintégration d'après Yeh (1976).

Néanmoins, on peut déduire de ces approches théoriques un certain nombre de considérations liées aux valeurs des différents paramètres. D'après le critère donné par l'équation (10) un aérosol radioactif sera d'autant plus chargé, que la concentration en particules est faible, ou que l'activité spécifique des particules est importante. Par ailleurs, la résolution numérique des équations de Clement et Harrison permet de déterminer la distribution de charges de l'aérosol radioactif en fonction de ses caractéristiques (concentration, activité spécifique, ionisation, diamètre). Nous présentons sur les figures 2 et 3 les distributions de charges d'un aérosol monodispersé ($a=0,5 \mu\text{m}$) contenant du ^{137}Cs , ayant respectivement une forte et une faible activité spécifique ; nous présentons également l'état de charge neutre décrit par la loi de Boltzmann. Dans ces figures, le taux d'ionisation par désintégration correspond respectivement soit à son maximum (≈ 4800 paires d'ions/désintégration pour la principale émission bêta du ^{137}Cs , d'énergie $E_{\text{max}}=0,512 \text{ Mev}$), soit à une ionisation fortement limitée par la géométrie de l'échantillonnage, par exemple lors du transport d'aérosol dans un conduit de faible diamètre.

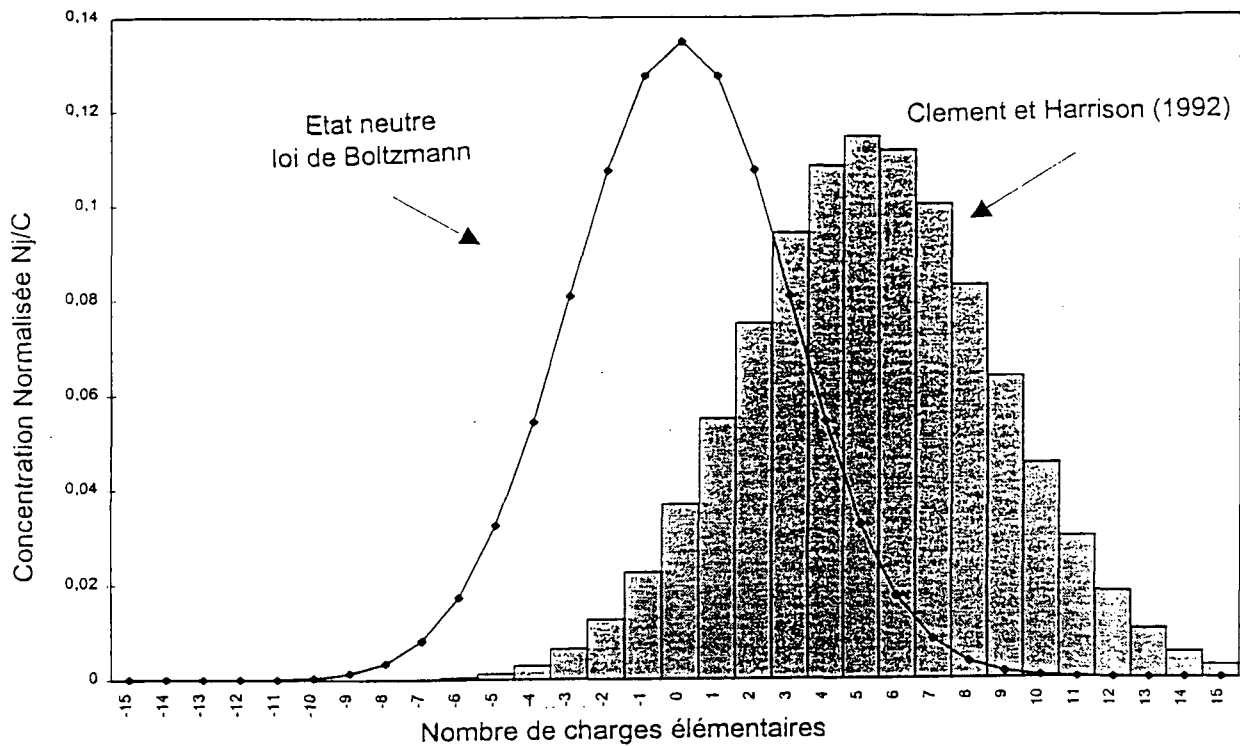


Figure 2 : distribution de charges sur un aérosol contenant 15% de ^{137}Cs .
 $(a=0,5 \mu\text{m}, C=10^6 \text{ p/m}^3, \mu_+=1,14 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V/s}, \mu_-=1,25 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V/s},$
 $I=4800 \text{ p.ions/désintégration}, \eta=0,5 \text{ Bq/particule}, \bar{n}=5,3e, \tau=11,7 \text{ s})$

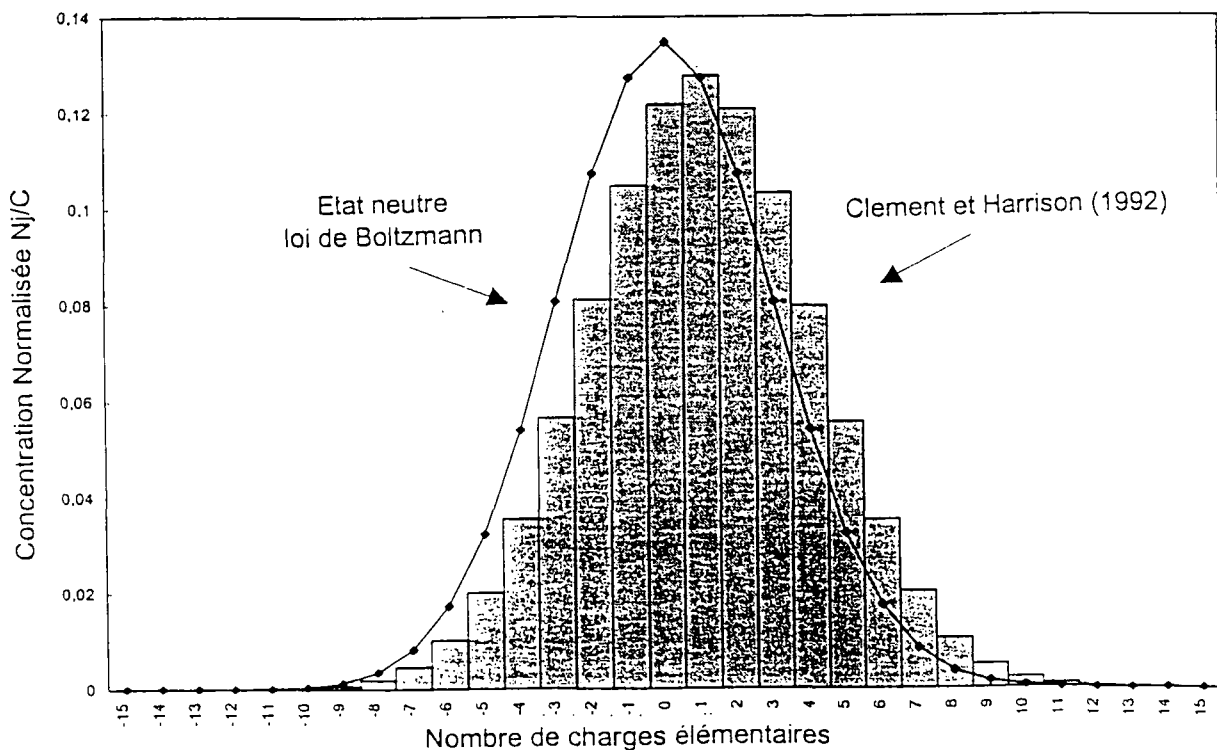


Figure 3 : distribution de charges sur un aérosol contenant 0,02% de ^{137}Cs .
 $(a=0,5 \mu\text{m}, C=10^6 \text{ p/m}^3, \mu_+=1,14 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V/s}, \mu_-=1,25 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V/s}, I=100 \text{ p.ions/désintégration},$
 $\eta=6,4 \cdot 10^{-4} \text{ Bq/part.}, \bar{n}=1e, \tau=2600 \text{ s})$

On constate à partir de ces deux exemples, que la distribution de charges peut être très différente en fonction de l'activité des particules et de l'ionisation du milieu. Dans l'hypothèse où un tel aérosol radioactif est présent dans l'atmosphère, on doit alors tenir compte de la diffusion des petits ions sur l'aérosol atmosphérique. Dans la figure 2 la charge moyenne de l'aérosol radioactif ($\bar{n}=5,3$) augmenterait en présence d'un aérosol inactif ($a=0,05\mu\text{m}$, $C=10^4\text{ p/cm}^3$) pour atteindre $\bar{n}=7,2$. Ces distributions peuvent être approchées par une gaussienne de moyenne \bar{n} (eq. 7-8) et d'écart type $\sigma = \sqrt{y + 1/2\lambda}$.

Comme on a pu le constater sur le tableau 1, des écarts subsistent entre les différents travaux théoriques et le petit nombre de données expérimentales existantes. Ces écarts sont notamment dus à un défaut de connaissances des paramètres utilisés dans les modèles. Par ailleurs, la distribution de charges a été peu étudiée alors qu'il s'agit d'un paramètre important pour la validation des modèles.

Nous nous proposons donc d'effectuer par la suite une étude expérimentale des différents phénomènes. Un certain nombre de difficultés intervenant dans la conception et dans la réalisation d'une telle étude devront également être résolues.

FAISABILITE DE L'ETUDE EXPERIMENTALE

Le dispositif expérimental devra mettre en oeuvre essentiellement trois fonctions.

1 - Génération d'un aérosol radioactif artificiel.

La granulométrie des aérosols radioactifs artificiels que l'on trouve dans l'environnement est généralement supérieure au micron (Dorrian et Bailey 1996). La compilation des mesures effectuées donne une gamme de dimensions allant de 0,3 à 18 μm pour un diamètre aérodynamique médian en activité de 1,5 μm . Nous retenons donc un système de génération par pulvérisation d'une solution contenant un sel radioactif en solution. Cette technique permet d'obtenir un aérosol constitué de particules solides dont le diamètre médian dépend de la concentration en sel de la solution et de la dimension des gouttelettes initialement générées. Un aérosol de chlorure de césium marqué par du ^{137}Cs pour l'émetteur bêta et du ^{239}Pu pour l'émetteur alpha pourra être ainsi utilisé lors des expérimentations.

2 - Vieillissement de l'aérosol.

Le volume de vieillissement dans lequel l'aérosol sera échantillonné détermine son temps d'évolution en fonction du taux de renouvellement imposé. La géométrie du système doit pouvoir permettre de contrôler l'ionisation du milieu en agissant sur la distance de parcours des rayonnements émis.

3 - Mesure de la distribution de charges.

La technique employée pour déterminer la distribution des charges est basée sur la mesure de la mobilité électrique des particules. Une particule électriquement chargée acquiert une vitesse \vec{V} sous l'action d'un champ électrique \vec{E} . La mobilité (Z), définie par le rapport entre la vitesse et le champ électrique ($\vec{V} = Z \cdot \vec{E}$), dépend du diamètre et de la charge de la particule. Dans le cas d'un aérosol monodispersé, la mobilité dépend seulement de la charge de la particule, on peut ainsi déterminer la distribution de charges à partir de la distribution en mobilités.

Pour la conception et la réalisation de telles expériences, trois difficultés ont été identifiées.

1 - Pour des raisons de sécurité nous sommes limités à la génération de particules faiblement actives. D'après la figure 3 on remarque que l'utilisation d'une faible activité spécifique implique de travailler à faible concentration d'aérosol, avec un temps d'évolution long, tout en limitant la production d'ions dans le milieu.

2 - Un long temps d'évolution de la charge pour atteindre l'état stationnaire implique d'imposer un faible débit d'échantillonnage dans le volume de vieillissement

3 - Un faible débit d'échantillonnage ainsi qu'une très faible concentration de l'aérosol impliquent des temps d'analyses conséquents si l'on souhaite une bonne précision statistique de nos résultats.

Afin de surmonter ces différentes contraintes nous aurons donc recours, autant que possible à la modélisation numérique, afin de dimensionner et d'optimiser chaque élément de notre dispositif expérimental.

Références bibliographiques

- Clement C.F., Harrison R.G. (1990) Electric charge effects on aerosol behaviour. Proc. Workshop on aerosol behaviour and thermal hydraulics in the containment. OECD/CSNI report n°176, 449-461.
- Clement C.F., Harrison R.G. (1992) The charging of radioactive aerosols. J. Aerosol Science. vol 23, n°5. 481-504.
- Dorrian M.D., Bailey M.R. (1996) Particulate size distributions of radioactive aerosols measured in the workplace and the environment. J. Aerosol Science. vol 27, Sup 1, S439-S440.
- Gunn R. (1954) Diffusion charging of atmospheric droplets by ions, and the resulting combination coefficients. J. Meteorology. vol 11, 339-347.
- Ivanov V.D., Kirichenko V.N., Petryanov I.V. (1969) Charging of alpha-active aerosols by secondary electron emission. Soviet Physics - Doklady. vol 13 n°9, 902-904.
- Kascheev V.A., Kolomeytsev G.Y., Poluektov P.P. (1991) Electric charging of radioactive aerosols. J. Aerosol Science. vol 22, suppl 1, S735-S738.
- Keefe D., Nolan P.J., Rich T.A. (1959) Charge equilibrium in aerosols according to the Boltzmann law. Proc. Roy. Irish. Acad., 60, A. 27-45.
- Liu B.H.Y., Piu D.H.Y. (1974) Electrical neutralization of aerosols. J. Aerosol Science. vol 5, 465-472.
- Mc Donald, B.H. (1988) Assessing physical models used in nuclear aerosol transport models, water-cooled reactor aerosol code evaluation and uncertainty assessment. Proc. Workshop, Brussels. CEC/OECD EUR 11351, 206-226.
- Reed L.D., Jordan H., Gieseke J.A. (1977) Charging of radioactive aerosols. J. Aerosol Science. vol 8, 457-463.
- Yeh H.C., Newton G.J., Raabe O.G., Boor D.B. (1976) Self-charging of ¹⁹⁸Au labelled monodisperse gold aerosols studied with a miniature electrical spectrometer. J. Aerosol Science. vol 7, 245-253.
- Yeh H.C. (1976) A theoretical study of electrical discharging of self-charging aerosols. J. Aerosol Science. vol 7, 343-349.
- Yeh H.C., Newton C.J., Teague S.V. (1978) Charge distribution on plutonium-containing aerosols produced in mixed-oxide reactor fuel fabrication and the laboratory. Health Physics. vol 35, 500-503.

Simulation numérique de la collecte des aérosols par un obstacle sphérique

N. Gauchet^(1,2), L. Del Fabbro^(1,2), D. Ducret⁽¹⁾, J. Vendel⁽¹⁾, A. Renoux⁽²⁾

(¹) Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire
Département de Prévention et d'Etude des Accidents
Service d'Etude et de Recherche en Aérocontamination et en Confinement
CEA/Saclay, Bâtiment 383 - 91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex, France

(²) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations
Université PARIS XII
Faculté des Sciences de Créteil, Avenue du 11 de Gaulle - 94010 CRETEIL Cedex, France

Abstract: A numerical simulation of aerosol capture by a solid sphere is presented. The particle impaction and interception phenomena have been predicted with both lagrangian and eulerian approaches. Aerosol deposition by brownian diffusion has also been performed. Results of the computations are compared with previous works and with experimental data.

Résumé: Une simulation numérique de la collecte d'aérosols par un obstacle sphérique est présentée. Une approche lagrangienne et une approche eulérienne ont été utilisées pour calculer la collecte par impaction et interception. Le dépôt par diffusion brownienne a été calculé. Les résultats des calculs sont comparés aux études antérieures et à des données expérimentales.

1 Introduction

La collecte des aérosols par des obstacles sphériques intervient dans des domaines d'applications très variés tels que le lavage de l'atmosphère par des gouttes de pluie en météorologie, le développement de systèmes d'épuration des gaz (tours de lavage, lits granulaires...) ou bien encore dans les systèmes d'aspersion des réacteurs nucléaires à eau pressurisée. Cette diversité d'applications a généré de nombreuses études théoriques et expérimentales au cours des dernières décennies afin d'établir des modèles d'efficacité élémentaire de collecte des aérosols. L'efficacité élémentaire de collecte est définie par le rapport entre la masse d'aérosols collectée et celle présente dans le volume balayé par l'obstacle sphérique.

Les données antérieures issues des approches expérimentales et théoriques sont présentées sous la forme de lois de corrélations de nombres caractéristiques adimensionnels exprimant l'efficacité élémentaire de collecte pour un ou plusieurs mécanismes en fonction du diamètre du collecteur, de celui de l'aérosol et des caractéristiques de l'écoulement.

Les premières études théoriques de Langmuir [1, 2], sont fondées sur un modèle lagrangien du comportement des aérosols en utilisant une description analytique du gaz vecteur (air), valide pour les régimes potentiels¹ ou visqueux² de l'écoulement autour de l'obstacle sphérique. Ensuite, le développement des moyens de calculs a permis à Beard [3], à Grover [4] et à McGann [5] de résoudre numériquement les équations de Navier-Stokes pour les régimes d'écoulement intermédiaires et de donner de nouvelles lois de corrélations pour l'impaction et l'interception.

Le dépôt par diffusion a été estimé théoriquement et validé sur des expériences par Pruppacher [6].

Dans notre étude, nous allons développer des modèles de collecte des aérosols par différentes approches théoriques et numériques. L'impaction tenant compte de l'effet d'interception est calculée

1. Nombre de Reynolds > 1000

2. Nombre de Reynolds $\ll 1$

par deux modèles : une approche eulérienne et une approche lagrangienne. La diffusion brownienne est prise en compte en assimilant les particules submicroniques à un gaz.

L'expérimentation à caractère analytique CARAIDAS³, réalisée au laboratoire afin de mesurer les coefficients élémentaires de collecte des aérosols et les efficacités d'absorption de l'iode par des gouttes indépendantes en chute libre, servira à valider nos calculs.

2 La collecte par impaction et interception

2.1 Hypothèses de base

Dans la suite du problème, nous utiliserons un repère cartésien lié à l'obstacle. L'air du milieu ambiant possède une vitesse ascendante de valeur U_0 . De même les particules sont ascendantes avec une vitesse égale à la différence entre U_0 et leur vitesse de sédimentation.

Quelques hypothèses sont faites de manière à simplifier les équations et pour réduire les temps de calcul : l'écoulement autour de l'obstacle est laminaire, incompressible, stationnaire et axisymétrique. D'après Tomboulides [10], ces hypothèses sont valides tant que le nombre de Reynolds de l'obstacle sphérique⁴ est inférieur à 210.

Dans ces conditions, les champs de vitesse et de pression de l'air sont donnés par la résolution des équations de Navier-Stokes simplifiées suivantes :

- Équation de conservation de la masse :

$$\frac{\partial U_i}{\partial x_i} = 0 \quad (1)$$

- Équation de conservation de la quantité de mouvement :

$$U_j \cdot \frac{\partial U_i}{\partial x_j} = \frac{-1}{\rho_f} \cdot \frac{\partial P}{\partial x_i} + \nu_f \cdot \Delta U_i \quad (2)$$

Où U_i ($i = 1, 2$) est la i -ème composante du vecteur vitesse de l'air et P la pression.

Ces équations sont utilisées pour les deux approches qui suivent.

2.2 Le modèle lagrangien

Dans ce modèle, chaque particule est suivie au cours de son mouvement tout au long de son parcours dans le domaine fluide. La trajectoire d'une particule cesse d'être calculée quand cette dernière quitte le domaine ou bien quand elle touche l'obstacle (condition de non rebond). L'équation à résoudre est donnée par l'application du principe fondamental de la dynamique à chaque particule qui est soumise à son poids, la poussée d'Archimède et à une force de traînée. On se place dans le cas où il n'y a pas de forces d'origine électrique, magnétique, phorétique...

$$m_p \frac{d\vec{V}_p}{dt} = m_p \frac{\rho_p - \rho_f}{\rho_p} \vec{g} + \frac{\pi}{8Cu} D_p^2 \rho_f C_D \|\vec{V}_r\| \vec{V}_r \quad (3)$$

Où m_p est la masse des particules, ρ_p leur masse volumique et D_p leur diamètre.

\vec{V}_p est la vitesse des particules.

Cu est le facteur de Cunningham, $Re_p = \frac{\|\vec{V}_r\| D_p}{\nu_f}$ est le nombre de Reynolds des particules.

$C_D = \frac{24}{Re_p} (1 + 0,15 Re_p^{0,687})$ est le coefficient de traînée valide pour $Re_p \leq 1000$ d'après Schiller [11].

3. CARAIDAS: CARactérisation du Rabattement des Aérosols et de l'Iode par un Dispositif d'ASpersion [7, 8, 9].

4. $Re = \frac{U_0 D_s}{\nu_f}$, U_0 est la vitesse du fluide, D_s est le diamètre de l'obstacle et ν_f est la viscosité cinématique du fluide.

$\vec{V}_r = \vec{U}_f - \vec{V}_p$ est la vitesse relative entre le fluide et la particule, \vec{U}_f est la vitesse du fluide au point où se trouve la particule.

Pour calculer les efficacités élémentaires de collecte pour l'impaction et l'interception, on analyse les trajectoires des particules. Typiquement, une cinquantaine de particules sont lâchées devant l'obstacle et sont réparties régulièrement depuis l'axe de symétrie de l'écoulement jusqu'à une distance légèrement supérieure à un rayon d'obstacle (R_s).

Une particule s'impacte quand son centre de gravité entre en contact avec la surface de la sphère. R_c est définie comme étant la position de la dernière particule collectée, c'est à dire celle qui possède la position la plus éloignée de l'axe de symétrie. Toutes les particules dont la position initiale est inférieure à R_c sont collectées car l'écoulement est laminaire. La masse d'aérosols collectée par impaction pendant l'intervalle de temps dt est égale à $\pi R_c^2 U_0 Y_{p,0} \rho dt$. $Y_{p,0}$ est la fraction massique des particules sous la sphère et ρ est la masse volumique du mélange. La masse d'aérosols présente dans le volume balayé pendant l'intervalle de temps dt est égale à $\pi R_s^2 U_0 Y_{p,0} \rho dt$. L'efficacité élémentaire de collecte par impaction est donc donnée par :

$$E_{imp} = \frac{\pi R_c^2 U_0 Y_{p,0}}{\pi R_s^2 U_0 Y_{p,0}} = \frac{R_c^2}{R_s^2} \quad (4)$$

L'efficacité totale de collecte E_{tot} est calculée en considérant l'effet d'interception des particules en plus de l'impaction. Une particule est collectée si sa surface, et non son centre de gravité comme précédemment, entre en contact avec celle de l'obstacle. Dans ce cas, la distance qui sépare son centre de gravité du centre de l'obstacle est égale à $R_s + R_p$ au moment de la capture. L'efficacité totale de collecte est calculée à partir de la position initiale R_{tot} de la dernière particule collectée par impaction et interception. E_{tot} est calculée comme suit :

$$E_{tot} = \frac{R_{tot}^2}{R_s^2} \quad (5)$$

On calcule l'efficacité élémentaire de collecte pour l'interception E_{int} comme suit :

$$E_{int} = E_{tot} - E_{imp} \quad (6)$$

2.3 Le modèle eulérien

Dans ce modèle, le gaz porteur et la phase dispersée (particules solides) sont considérés comme deux phases distinctes s'interpénétrant et interagissant l'une sur l'autre. Les équations du modèle bifluide sont obtenues à partir des équations locales instantanées de la conservation de la masse et de la quantité de mouvement de chacune des phases. Le couplage interphasique apparaît au travers du terme de transfert de quantité de mouvement et de la force due au gradient de pression du gaz sur les particules [12].

2.3.1 Les hypothèses

Les hypothèses sur lesquelles repose le modèle bifluide laminaire sont les suivantes :

- la phase dispersée est constituée de particules sphériques, de taille uniforme ;
- la fraction volumique α des particules est très faible devant 1 et donc devant la fraction volumique du gaz porteur. La suspension ainsi obtenue est de type « diluée ». Les collisions interparticulaires sont inexistantes ou négligeables. La viscosité du fluide particulaire peut donc être négligée ;
- les masses volumiques et les viscosités dynamiques moléculaires de chacune des phases sont supposées constantes ;
- la masse volumique des particules ρ_p est très supérieure à celle du fluide ρ_f ;

- macroscopiquement, les deux phases se comportent comme des continua. Microscopiquement, seul le fluide porteur peut être considéré comme un continuum. Les équations du modèle sont obtenues par moyennes volumiques, cela signifie que ces dernières sont basées sur un volume de contrôle bien plus grand que l'espace occupé par une particule et plus petit que le volume caractéristique du système fluide ;
- la concentration particulaire est supposée suffisamment faible pour pouvoir déterminer les termes de transfert de quantité de mouvement à partir de l'étude de la dynamique de la particule isolée.

2.3.2 Les équations du modèle bifluide

Les champs de vitesse et de pression de l'air sont donnés par la résolution des équations 1 et 2. Soient V_i la i -ième composante du vecteur vitesse des particules, α la fraction volumique des particules et ρ_p leur masse volumique. Puisque les aérosols représentent une phase diluée ($\alpha \ll 1$), le «fluide» particulaire est décrit par les équations suivantes :

$$\frac{\partial \alpha}{\partial t} + \frac{\partial (\alpha \cdot V_i)}{\partial x_i} = 0 \quad (7)$$

$$\frac{\partial V_i}{\partial t} + V_j \cdot \frac{\partial V_i}{\partial x_j} = -\frac{1}{\rho_p} \cdot \frac{\partial P}{\partial x_i} - K_p \cdot (V_i - U_i) + \left(1 - \frac{\rho_f}{\rho_p}\right) \cdot g_i \quad (8)$$

$$K_p = \frac{3}{4} \cdot \frac{\rho_f}{\rho_p} \cdot \frac{C_D}{D_p} \cdot \|\vec{V}_r\| \quad (9)$$

2.3.3 Calcul de l'efficacité élémentaire de collecte par impaction et interception

La résolution des équations précédentes permet de calculer le flux de particules pénétrant dans l'obstacle par impaction et par interception.

Pour l'impaction, il faut calculer le flux de particules entrant sur toute la surface de l'obstacle (S) :

$$\Phi_{imp} = \int_S \alpha_s \vec{V} \cdot \vec{n} ds \quad (10)$$

α_s est la fraction volumique des particules à la surface de l'obstacle.

L'efficacité élémentaire de collecte par impaction s'écrit :

$$E_{imp} = \frac{\int_s \alpha_s \vec{V} \cdot \vec{n} ds}{\alpha_e \pi R_s^2 V_0} \quad (11)$$

α_e est la fraction volumique des particules à l'entrée du domaine et V_0 est leur vitesse d'entrée.

Pour calculer l'efficacité totale de collecte, il faut déterminer le flux total de particules pénétrant dans l'obstacle en considérant l'interception et l'impaction des particules. Comme dans le cas du modèle lagrangien, une particule est collectée si sa surface touche celle de l'obstacle (phénomène d'interception). On définit une surface sphérique (S_{tot}) distante d'un rayon de particule de la surface de l'obstacle. Ce flux total sera donc la somme du flux local de particules sur cette surface.

$$\Phi_{tot} = \int_{S_{tot}} \alpha_{S_{tot}} \vec{V} \cdot \vec{n} ds \quad (12)$$

L'efficacité élémentaire de collecte par impaction et interception s'écrit :

$$E_{tot} = \frac{\Phi_{tot}}{\alpha_e \pi R_s^2 V_0} \quad (13)$$

$\alpha_{S_{tot}}$ est la fraction volumique des particules sur la surface S_{tot} .

De même que précédemment, l'efficacité élémentaire de collecte par interception est obtenue d'après l'équation 6 d'où :

$$E_{int} = \frac{\Phi_{tot} - \Phi_{imp}}{\alpha_e \pi R_s^2 V_0} \quad (14)$$

2.4 Les résultats de simulation

Les résultats des simulations sont comparés à ceux issus des données antérieures et aux résultats expérimentaux de CARAIDAS. Les paramètres utilisés pour les calculs avec les deux approches sont identiques : pression $P = 1$ bar ; température du fluide porteur $T_f = 20^\circ\text{C}$; taux de saturation $S = 1$; diamètre de l'obstacle sphérique $D_s = 100, 300, 500, 524, 800 \mu\text{m}$; diamètre des aérosols $D_p (\mu\text{m}) \in [0, 1 ; 14]$; masse volumique des aérosols $\rho_p = 4510 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$.

Le paramètre adimensionnel de l'impaction est le nombre de Stokes $Stk = \frac{\rho_p D_p^2 V_0 C_u}{9 \mu_f D_s}$, où μ_f est la viscosité dynamique de l'air. Ce paramètre se retrouve en adimensionnalisant l'équation 3. Les courbes donnant l'efficacité d'impaction E_{imp} sont donc présentées en fonction de Stk .

La figure 1 montre l'évolution de l'efficacité élémentaire de collecte par impaction pour une sphère de $300 \mu\text{m}$ de diamètre. Les courbes tracées sont celles que nous avons retenues de la littérature. Les efficacités correspondant au régime potentiel et au régime visqueux sont données par Langmuir [1]. Dans le régime d'écoulement visqueux, les forces visqueuses sont prépondérantes devant les forces d'inertie ($Re \ll 1$), alors que dans le régime d'écoulement potentiel, les forces d'inertie sont prépondérantes devant les forces visqueuses ($Re \gg 1000$). Ces deux courbes montrent l'enveloppe dans laquelle doivent se trouver les courbes pour des régimes d'écoulement intermédiaires. L'efficacité donnée par Langmuir [2] est une formule d'interpolation entre ces deux régimes qui a peu de justification physique ou expérimentale. L'efficacité donnée par Beard est issue d'un modèle lagrangien qui a été repris et amélioré par McGann. McGann [5] indique que les efficacités données par Beard, dans le cas où $S=1$, sont en général un ordre de grandeur trop élevées, mais ne donne pas comme Beard de formule donnant E_{imp} en fonction de Stk .

Sur la figure 2 une comparaison est faite entre nos modèles, les points de CARAIDAS et les efficacités tracées sur la figure 1. On constate que le modèle lagrangien est proche de la courbe donnée par Langmuir pour les gros aérosols ($Stk \geq 1$). Les résultats du calcul lagrangien sont en dessous des valeurs données par Beard, ce qui est en accord avec les indications de McGann. Les résultats du modèle bifluide sont par contre plus élevés et sont très rapprochés des points expérimentaux de CARAIDAS et de la courbe de Langmuir pour les petits aérosols ($Stk \leq 0, 2$).

Les figures 3 et 4 montrent différentes courbes d'efficacité obtenues en faisant varier le nombre de Reynolds. La première correspond aux résultats du modèle eulérien et la deuxième aux résultats du modèle lagrangien. La même tendance que précédemment est observée : les efficacités issues du modèle lagrangien sont plus faibles que celles du modèle eulérien. Dans les deux cas, on observe que l'efficacité augmente avec le nombre de Reynolds pour un nombre de Stokes donné.

La figure 5 montre l'efficacité d'interception donnée par Powers [13] et les valeurs de E_{int} calculées par nos modèles. On constate que les valeurs des efficacités données par le modèle lagrangien sont toujours plus faibles que celles données par le modèle eulérien mais que les différences sont plus faibles que pour l'impaction. Ces efficacités d'interception ne sont calculées que pour les particules les plus grosses ($D_p \geq 2 \mu\text{m}$) car des difficultés numériques ne nous permettent pas de faire les calculs pour des particules plus petites. On constate que ces efficacités d'interception sont 100 fois plus faibles que celles de l'impaction pour cette taille de particules.

L'efficacité d'impaction a été découplée de celle d'interception pour effectuer des comparaisons avec les corrélations de la littérature. Physiquement, on ne peut dissocier les deux mécanismes car ils ont lieu en même temps ; par contre, cet effet d'interception peut être négligé devant l'impaction proprement dite pour les particules de quelques micromètres car l'impaction domine dans ce domaine.

Il semblerait à première vue que les différences entre les deux modèles viennent du fait que les équations qui régissent l'écoulement de l'air au voisinage de l'obstacle (équations de Navier-Stokes) ne sont pas résolues de la même manière dans les deux codes de calcul. Le code dans lequel est implanté le modèle lagrangien utilise les volumes finis pour résoudre ces équations alors que le modèle eulérien utilise les éléments finis. On a en effet pu constater visuellement au moment de l'exploitation des résultats que la couche limite calculée avec le code utilisant les volumes finis est plus épaisse que celle

déterminée par celui utilisant les éléments finis. Ceci pourrait expliquer que le modèle eulérien prévoit une collecte plus importante que le modèle lagrangien. Des travaux sont en cours pour approfondir les explications.

3 La collecte par diffusion

3.1 Description du modèle

Le comportement des petits aérosols peut être décrit par une équation de convection/diffusion dès que ceux-ci suivent les lignes de courant de l'air au voisinage de l'obstacle. Les équations qui constituent ce modèle s'appuient sur les mêmes hypothèses que précédemment. On considère que l'écoulement est stationnaire, incompressible et axisymétrique pour les mêmes raisons. Le champ fluide est donné par la résolution des équations 1 et 2.

Le comportement des aérosols est pris en compte par une équation de convection/diffusion :

$$U_j \cdot \frac{\partial Y_p}{\partial x_j} = D \cdot \Delta Y_p \quad (15)$$

où Y_p est la fraction massique des particules et D leur coefficient de diffusion. On impose $Y_p = 0$ à la surface de l'obstacle car les particules y sont absorbées.

La partie délicate de ce calcul est de mailler suffisamment fin au voisinage de l'obstacle car les gradients de fraction massique des particules dans cette région sont beaucoup plus importants que les gradients de vitesse (Nombre de Schmidt $Sc = \frac{\nu_f}{D} \gg 1$). Afin d'optimiser le maillage, on utilise une estimation de l'épaisseur de la couche limite massique grâce à l'équation :

$$\frac{\delta_D}{D_g} = \frac{\delta_D}{\delta_u} \frac{\delta_u}{D_g} = Sc^{-\frac{1}{3}} \cdot Re^{-\frac{1}{2}} \quad (16)$$

donnée par [6]. On dispose ainsi plusieurs mailles sur l'épaisseur δ_D . On vérifie ensuite, après convergence du calcul, que le gradient de Y_p se situe bien sur plusieurs mailles avant d'exploiter les résultats.

Pour calculer l'efficacité de diffusion, on calcule le flux de particules pénétrant dans l'obstacle que l'on divise par le flux sous l'obstacle :

$$E_{diff} = \frac{\int_S D \frac{\partial Y_p}{\partial r} ds}{Y_{p,0} \pi R_s^2 V_0} \quad (17)$$

3.2 Les résultats pour la diffusion

La figure 6 montre les efficacités calculées, celles données par Pruppacher [6] et par Powers dans le rapport [13]. On constate que les résultats de nos calculs sont très proches de ces modèles et que le dépôt par diffusion brownienne est important pour les particules nanométriques. Pour des particules de $1 \mu m$ de diamètre (ce qui correspond à $Stk = 0,1$) et une sphère de $500 \mu m$ ($Re = 67,8$) l'efficacité de collecte par diffusion vaut $2 \cdot 10^{-5}$ alors que l'efficacité de collecte par impaction vaut 10^{-2} avec le modèle eulérien. On constate donc que pour des aérosols de $1 \mu m$ la collecte se fait principalement par impaction.

4 Conclusion

Ce travail montre un bon accord entre les résultats obtenus par la simulation numérique de la collecte des aérosols par un obstacle sphérique et les études antérieures (expérimentales ou numériques). Les deux approches, eulérienne et lagrangienne, donnent des valeurs d'efficacité élémentaire de collecte

pour l'impaction et l'interception proches, malgré quelques écarts résultant peut être des méthodes numériques mises en œuvre. Un bon accord est trouvé entre les efficacités données par le modèle eulérien et celles provenant de l'expérience CARAIDAS. La modélisation du dépôt par diffusion brownienne ne pose pas de problème particulier et est en très bon accord avec les résultats théoriques précédents. Ces approches numériques sont maintenant validées pour être appliquées dans divers domaines tels que le lavage de l'atmosphère par des gouttes de pluie, l'optimisation de systèmes d'épuration ou l'étude de l'influence de la densité spatiale de gouttes sur la collecte des aérosols.

Références

- [1] I. Langmuir et K. Blodgett. – Rapport technique n° 5418, U.S. Air Force, 1946.
- [2] I. Langmuir. – The production of rain by a chain reaction in cumulus clouds at temperatures above freezing. *Journal of meteorology*, vol. 5, n° 3, octobre 1948, pp. 175–192.
- [3] K. V. Beard et S. N. Grover. – Numerical collision efficiencies for small raindrops colliding with micron size particles. *Journal of The Atmospheric Sciences*, vol. 31, mars 1974, pp. 543–550.
- [4] S. N. Grover. – *A numerical investigation of the efficiency with which aerosol particles collide with cloud and small rain drops*. – Thèse de Doctorat, University of California, Los Angeles, 1980.
- [5] B. T. McGann et S. G. Jennings. – The efficiency with which drizzle and precipitation sized drops collide with aerosol particles. *Atmospheric Environment*, vol. 25 A, n° 3/4, juin 1990, pp. 791–799.
- [6] H. R. Pruppacher et J. D. Klett. – *Microphysics of Clouds and Precipitation*. – D. REIDEL, 1978.
- [7] D. Ducret, J. Vendel et D. Vigla. – *Etude préliminaire de l'aspersion*. – Rapport CEA n° SERAC/LECEV/93-22, IPSN/DPEI/SERAC, juin 1993.
- [8] Y. Billarand, D. Ducret et J. Vendel. – *Modélisation du comportement du banc d'essais CARAIDAS: absorption d'iode et condensation d'eau*. – Rapport CEA n° SERAC/LECEV/94-43, IPSN/DPEI/SERAC, décembre 1994.
- [9] J. B. Coreau, D. Ducret, D. Roblot et J. Vendel. – *Programme ASPERSION: Rapport d'essais de la campagne évaporation sur CARAIDAS*. – Rapport CEA n° SERAC/LPMC/97-07, IPSN/DPEA/SERAC, juillet 1997.
- [10] A. G. Tomboulides, S. A. Orszag et G. E. Karniadakis. – Direct and large-eddy simulation of axisymmetric wakes. In: *31st Aerospace Sciences Meeting and Exhibit*, éd. par AIAA. – Reno, NV, janvier 1993.
- [11] L. Schiller et A. Z. Nauman. – *Ver. Deut. Ing.*, vol. 77, 1933, pp. 318–320.
- [12] P. Armand. – *Analyse physique et modélisation du transport d'aérosols. Intégration dans un programme de calcul aux éléments finis. Validation expérimentale en écoulements laminaires et turbulents*. – Thèse de Doctorat, Université Pierre et Marie Curie (Paris VI), 1995.
- [13] D. A. Powers et S. B. Burson. – *A Simplified Model of Aerosol Removal by Containment Sprays*. – U.S. Nuclear Regulatory Commission, 1993.

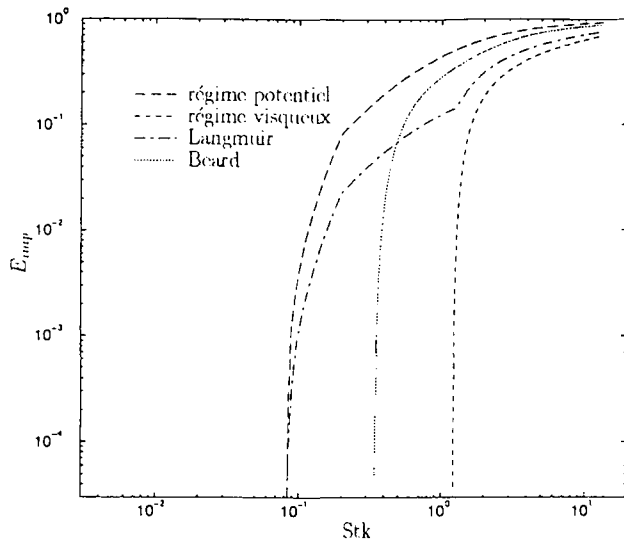


FIG. 1 - Efficacités d'impaction de la littérature pour $D_s = 300 \mu m$, $T_g = 20^\circ C$, $S = 1$, $P = 1 \text{ bar}$, $Re = 23, 4$

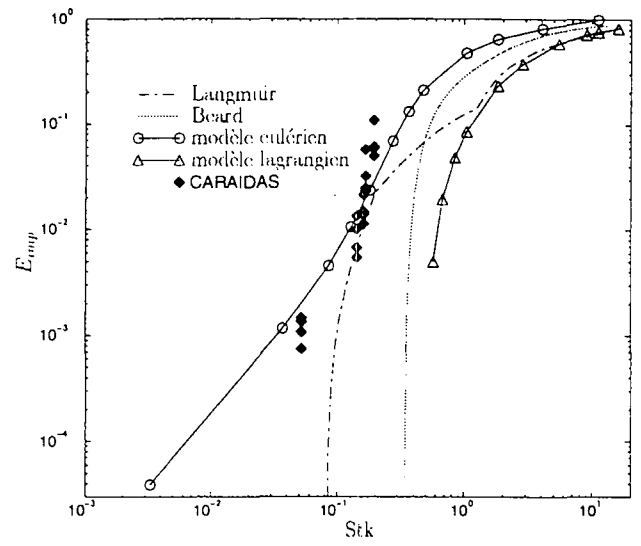


FIG. 2 - Comparaison des efficacités d'impaction pour $D_s = 300 \mu m$, $T_g = 20^\circ C$, $S = 1$, $P = 1 \text{ bar}$, $Re = 23, 4$

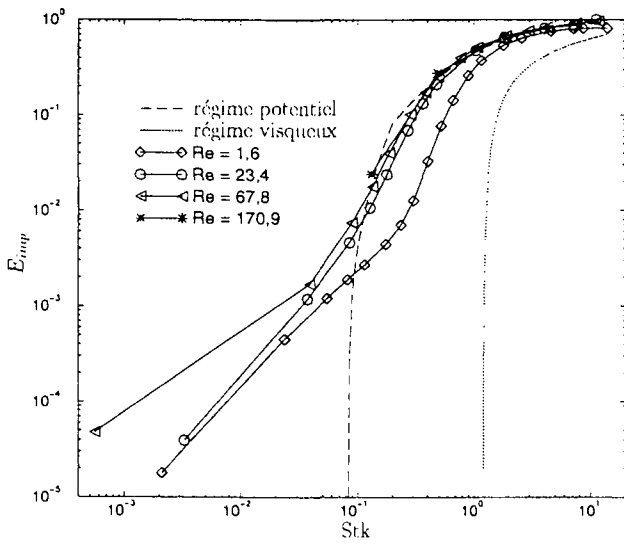


FIG. 3 - Efficacités d'impaction pour différents Reynolds, modèle eulérien, ($T_g = 20^\circ C$, $S = 1$, $P = 1 \text{ bar}$)

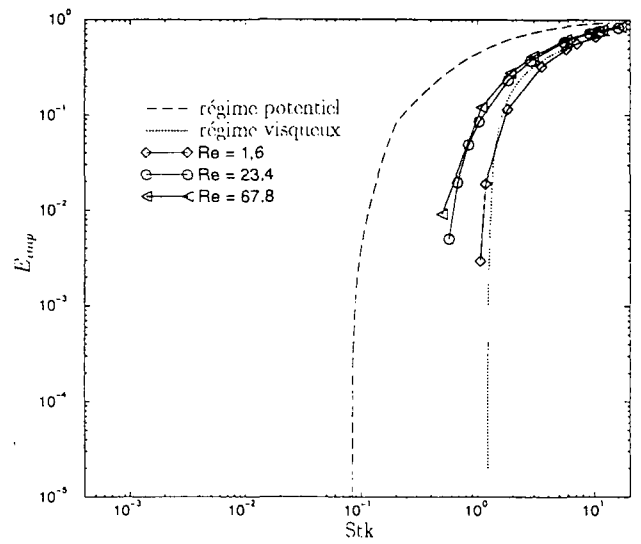
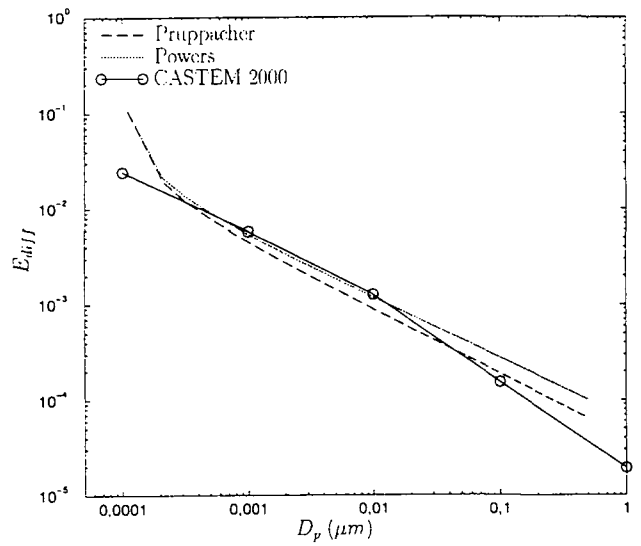
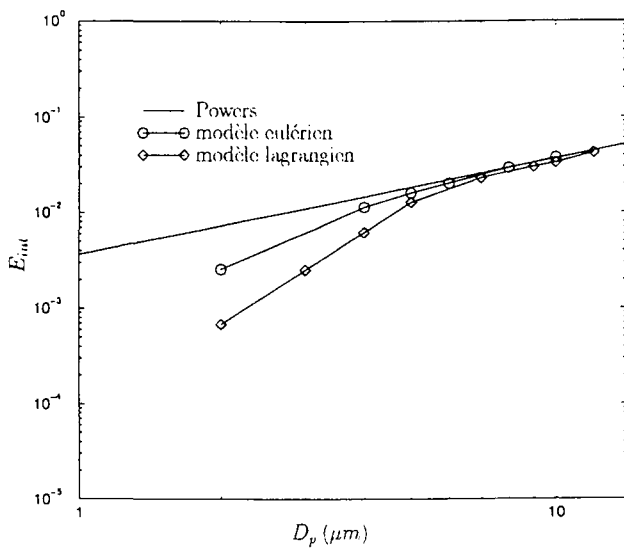


FIG. 4 - Efficacités d'impaction pour différents Reynolds, modèle lagrangien, ($T_g = 20^\circ C$, $S = 1$, $P = 1 \text{ bar}$)



INTERACTION D'UN SYSTEME D'ASPERSION DE TYPE REACTEUR AVEC L'ATMOSPHERE ENVIRONNANTE

W. Plumecocq V.D. Layly

Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire
Département de Recherches en Sécurité
CE Cadarache 13108 St Paul lez Durance Cedex France

Abstract : The objective of this paper is to study the interaction of a spray system with the containment atmosphere of a PWR reactor during a severe accident. The results of this interaction are the evolution of atmospheric conditions and the removal of fission products in aerosol and vapor forms, suspended in the gas. Performed at the Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN), this study was the target of a Ph.D. thesis. The efficiency of the spray system in removing aerosols is summarized by the decontamination factor, DF. The DF depends on the aerosol size distribution as well as the evolution of the spray droplet size distribution with the height in the containment, due to kinetic and thermal relaxation, gravitational agglomeration and mass transfer with the gas. A fine description of these phenomena leads to numerical problems due to the needed implicit coupling between the dynamic of droplets and the gas conditions. A numerical method which is able to solve these problems has been developed, giving a reasonable calculation time. By this method, DF predictions have been made, showing a significant dependence of the droplet size distribution on the DF evolution.

L'étude présentée dans ce papier porte sur la modélisation de l'interaction d'un système d'aspersion liquide avec l'atmosphère gazeuse dans l'enceinte de confinement d'un réacteur de type REP en situation accidentelle. Cette interaction a pour résultats l'évolution thermique de l'atmosphère (pression, température, humidité) et la captation des produits de fission en suspension dans l'enceinte sous forme d'aérosols et de vapeur. Réalisée à Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN), cette étude a fait l'objet d'une thèse de doctorat soutenue à l'Université de Provence le 6 juin 1997.

Captation des aérosols

La captation des aérosols par un nuage de gouttelettes est due à des interactions mécaniques et phorétiques. Les interactions mécaniques sont liées aux trajectoires autour de la gouttelette pour ce qui concerne l'impaction inertielle et l'interception, et à la couche de concentration d'aérosols autour de la gouttelette pour les effets diffusifs. Les interactions phorétiques sont liées à une vitesse de dérive provoquée par un gradient de concentration de la vapeur (diffusiophorèse) ou un gradient de température (thermophorèse) localisé autour de la gouttelette. Dans le cas d'un écoulement non sphérique autour de la gouttelette, on utilise le concept d'efficacité de captation. L'efficacité de captation est définie comme le rapport du nombre d'aérosols collectés sur le nombre d'aérosols présents dans le volume balayé par la gouttelette. Pour des aérosols et des gouttelettes de taille donnée, elle dépend a priori du nombre de Reynolds de la gouttelette, du nombre de Stokes, du nombre de Peclet ainsi que du rapport du diamètre de la particule au diamètre de la gouttelette. En pratique, il existe dans la littérature une formulation continue en fonction des nombres de Reynolds et Peclet pour les effets diffusifs et, en ce qui concerne les

effets inertiels, une formulation dépendant du nombre de Stokes pour les différents régimes d'écoulement. Dans la région d'écoulement visqueux ($Re_w \approx 1$) les lignes de courant divergent à des distances de l'ordre de 10 à 100 diamètres en amont de la gouttelette du fait de la faible diffusion de la quantité de mouvement transférée au gaz par l'obstacle. L'efficacité de captation est alors réduite. Dans la région d'écoulement potentiel ($Re_w > 500$), les lignes de courant divergent près de la gouttelette, ce qui contribue à augmenter l'efficacité de captation.

En atmosphère saturée, durant la phase de relaxation cinétique et thermique des gouttelettes, les transferts de masse et de chaleur avec l'atmosphère ont pour effet d'augmenter l'efficacité de captation des aérosols. En atmosphère non saturée, l'évaporation des gouttelettes qui intervient dès qu'elles atteignent leur température de saturation, tend à diminuer l'efficacité de captation.

Généralement, l'efficacité totale de captation est prise comme la somme des efficacités élémentaires des différents phénomènes contribuant à la captation des aérosols. Cela revient à supposer que les mécanismes élémentaires de captation sont indépendants, ce qui n'est pas totalement vrai. Pour les aérosols de taille correspondant au minimum d'efficacité (typiquement de $0.1 \mu\text{m}$ à $0.5 \mu\text{m}$), les mécanismes de captation mécanique devraient être décrits de façon couplée, mais ce problème serait excessivement complexe. Par ailleurs, l'additivité consiste à supposer que l'efficacité de captation mécanique n'est pas affectée par la condensation de vapeur. En ce qui concerne les effets inertiels, cette hypothèse est raisonnable car la vitesse de dépôt par diffusiophorèse (entre 2 et $4 \cdot 10^{-3} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$) est très inférieure à la vitesse de l'écoulement de l'ordre du mètre par seconde. En revanche, la vitesse de dépôt par diffusion est de l'ordre de $10^{-7} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Il faut par conséquent traiter les effets diffusifs et les effets phorétiques de façon couplée. De plus, l'addition algébrique des efficacités de captation peut conduire à une valeur négative en cas d'évaporation des gouttelettes. Dans ce cas, l'efficacité de captation est prise égale à zéro mais on voit bien l'intérêt d'une formulation continue.

La résolution du problème est complexe et nécessiterait un traitement numérique présentant des difficultés sérieuses. En effet, la simplification obtenue dans la formule de Schmitt et Waldmann¹ pour la diffusiophorèse repose sur le fait que la vitesse de l'écoulement et le gradient de concentration sont colinéaires, ce qui n'a aucune raison d'être dans le cas général. Néanmoins, nous proposons une formulation du couplage entre les effets diffusifs et phorétiques, développée dans le cas sphérique, en supposant qu'elle reste valable dans le cas non sphérique. Dans le cas de la condensation de vapeur, on écrit la conservation du débit massique d'aérosols :

$$J = 4\pi r^2 D_p \frac{dC_p}{dr} + 4\pi r^2 v_{\text{dir}} C_p \quad (1)$$

où D_p est le coefficient de diffusion des aérosols, C_p la concentration massique des aérosols et v_{dir} la vitesse de dépôt part diffusiophorèse.

Soit γ tel que, dans la formule de Schmitt et Waldmann : $4\pi r^2 v_{\text{dir}} = \gamma \frac{\dot{m}_w}{\bar{c}_g M_w}$ (2)

où \dot{m}_w est le débit massique de condensation de la vapeur d'eau, \bar{c}_g la concentration molaire du gaz autour de la gouttelette et M_w la masse molaire de l'eau.

Le débit massique d'aérosols s'écrit alors : $J = 4\pi r^2 D_p \frac{dC_p}{dr} + \gamma \frac{\dot{m}_w}{\bar{c}_g M_w} C_p$ (3)

L'intégration de (3) entre le rayon de la gouttelette, r_w , et ∞ donne : $J = 4 \pi r_w D_p C_p B(\chi)$ (4)

où χ est le paramètre sans dimension :
$$\chi = \frac{\gamma \dot{m}_w}{4\pi D_p \bar{c}_g M_w} \frac{1}{r_w}$$
 (5)

qui mesure le rapport entre la vitesse de dépôt par condensation de vapeur et la vitesse de dépôt par diffusion et $B(\chi)$, la fonction de Bernoulli :

$$B(\chi) = \frac{\chi}{1 - \exp(-\chi)} \quad (6)$$

$B(\chi) \approx 1$ quand $\chi \rightarrow 0$, on retrouve le dépôt par diffusion

$B(\chi) \approx \chi$ quand $\chi \rightarrow +\infty$, on trouve le dépôt par diffusiophorèse

$B(\chi) \rightarrow 0$ quand $\chi \rightarrow -\infty$, donc en cas d'évaporation la vitesse de dépôt globale tend vers zéro de façon continue.

Cette formulation, quoique non justifiée dans le cas non sphérique, permet de passer de façon continue de la condensation à l'évaporation avec les limites correctes.

Equation de bilan de la population des gouttelettes

L'efficacité du système d'aspersion à capter les aérosols est donnée par le facteur de décontamination, qui correspond au rapport entre la masse initiale des aérosols en suspension sur la masse actuelle en suspension. Il dépend de la distribution en taille des aérosols et de l'évolution du nuage de gouttelettes en fonction de la hauteur sous l'effet de la relaxation cinétique et thermique, de l'agglomération gravitationnelle et des transferts de masse atmosphère-gouttelette (en présence de condensation ou d'évaporation). La description précise de cette évolution pose des problèmes numériques à cause du couplage implicite entre la dynamique des gouttelettes et l'évolution de l'atmosphère gazeuse.

Pour décrire l'évolution de la population des gouttelettes dans l'enceinte de confinement, il existe deux méthodes de résolution simples. La première méthode consiste à considérer que les gouttelettes sont sans interaction les unes par rapport aux autres et qu'elles ne sont soumises qu'à la relaxation. Dans ce cas, on s'assure de la conservation du débit de gouttelettes à chaque noeud du maillage axial de l'enceinte. La seconde méthode consiste à ne prendre en compte que l'agglomération des gouttelettes à vitesse limite de chute. Ceci revient à considérer que les gouttelettes sont injectées à vitesse limite (cf. travaux de Powers⁷). Cette méthode ne permet pas de prendre en compte les échanges atmosphère-gouttelettes. Dans ce cas, on s'assure de la conservation du débit volumique de gouttelettes à chaque noeud du maillage. Pour une atmosphère saturée et homogène, on distingue trois zones dans l'enceinte : une zone en partie haute où a lieu la relaxation des gouttelettes et très peu d'agglomération du fait de la faible concentration des gouttelettes et du fait que celles-ci ont des vitesses voisines, une zone en partie basse où a lieu l'agglomération des gouttelettes à vitesse limite et une zone intermédiaire, de transition, dans laquelle il n'y a ni conservation du débit de gouttelettes, ni conservation du débit volumique. Ceci n'est plus vrai si les conditions ne sont pas homogènes ou si l'atmosphère n'est pas à saturation. Il est donc important de pouvoir traiter le problème de manière continue sur toute la hauteur quelles que soient les conditions dans l'enceinte. De plus, ceci est indispensable pour l'utilisation de ce module dans des calculs de séquences accidentelles.

L'équation de conservation de la population des gouttelettes, exprimée en fonction des valeurs nodales s'écrit :

$$\frac{d}{dz} (F_j(z) v_j(z) \Delta x_j) = \underbrace{\frac{dF_j(t)}{dt} \Delta x_j}_{\text{agglomération}} + \underbrace{\frac{dF_j(t)}{dt} \Delta x_j}_{\text{relaxation}} \quad (\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}) \quad (7)$$

où $F(z, x_j)$ est la valeur nodale de la fonction de distribution à la cote z et au noeud j , et $v(z, x_j)$ est la vitesse de la gouttelette de la classe j à la cote z . Δx_j est l'élément de volume de la classe j donné par :

$$\Delta x_j = \frac{x_{j+1} - x_{j-1}}{2} \quad (8)$$

La méthode de résolution rigoureuse consiste à traiter simultanément la relaxation et l'agglomération maille par maille. Dans ce cas, et en toute rigueur, on aurait à traiter dans une même classe de volume, des gouttelettes ayant des vitesses et des températures différentes. Cette difficulté peut être contournée en effectuant un bilan d'impulsion et d'énergie pour chaque classe, ce qui permet de définir une vitesse et une température propre à chaque classe. Cependant, afin de calculer l'évolution des conditions dans chaque maille, il faudrait ne pas se contenter d'impliciter le calcul de la dynamique des gouttelettes mais impliciter aussi celui de l'agglomération, ce qui dépasse le cadre de la thèse. C'est pourquoi nous proposons une méthode alternative.

Cette méthode consiste à résoudre dans un premier temps la relaxation des gouttelettes pour chaque classe de taille en considérant qu'il n'y a aucune interaction entre les gouttelettes des différentes classes (pas d'agglomération). Ceci permet de définir une grille mobile en fonction de la hauteur sur laquelle on résout l'équation de bilan (7) qui s'écrit alors :

$$\frac{d}{dz} (F_j(z) v_j(z) \Delta x_j) = \underbrace{\frac{dF_j(t)}{dt} \Delta x_j}_{\text{agglomération}} \quad (9)$$

Avec une grille fixe, le terme lié à la relaxation entraîne une dilatation et un déplacement de la fonction de distribution qui est difficile à traiter numériquement, les temps caractéristiques du transfert atmosphère-gouttelettes et de l'agglomération étant distincts. L'utilisation d'une grille mobile permet de s'affranchir de cette difficulté en faisant disparaître ce terme. En revanche, l'incrément Δx_j apparaît dans la dérivée du membre de gauche. Le prix à payer est la transcription de la distribution sur la nouvelle grille à chaque pas d'espace, qui est largement compensé par le gain obtenu sur le nombre de mailles. Cette méthode ne permet pas de conserver l'impulsion et l'énergie mais permet de traiter simultanément la relaxation et l'agglomération et par conséquent, d'avoir une description continue sur toute la hauteur de l'enceinte. Pour une atmosphère saturée, on réalise la conservation du débit numérique dans la zone de relaxation, du débit volumique dans la zone d'agglomération et une évolution continue de la distribution dans la zone intermédiaire.

Sur la figure I, on reporte l'évolution de la fonction de distribution des gouttelettes en fonction de la hauteur sous l'effet simultané de la relaxation et de l'agglomération pour une atmosphère saturée. La distribution en taille des gouttelettes à l'injection est caractérisée par une distribution log-normale ayant un diamètre médian en masse (DMM) de $500 \mu\text{m}$ et une déviation standard (σ) de 1.5. On constate initialement une augmentation de la concentration des gouttelettes due à leur ralentissement puis une diminution de celle-ci sous l'effet de l'agglomération qui s'accompagne d'un décalage de la distribution vers les grosses tailles.

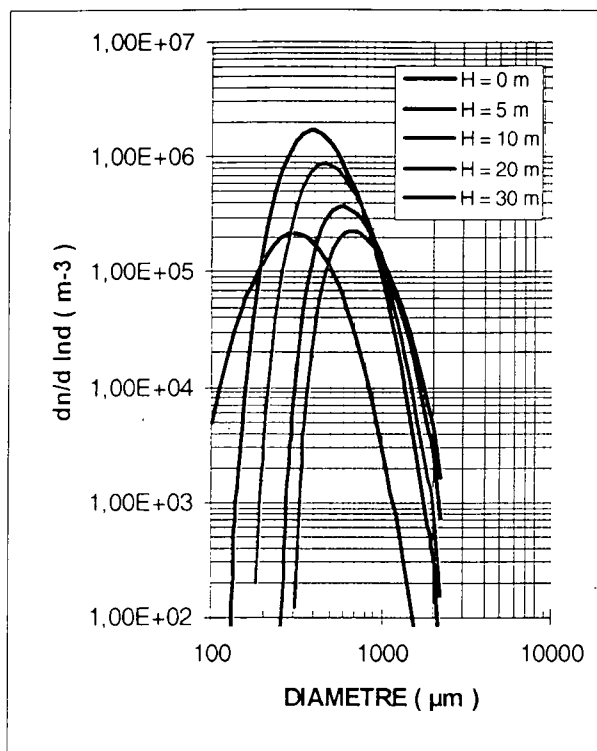


Figure I : évolution de la fonction de distribution des gouttelettes sous l'effet de la relaxation et de l'agglomération,

Facteur de décontamination

Le facteur de décontamination est donné par la relation suivante :

$$FD = \frac{m_0}{m(t)} = \exp \int_0^t \lambda_m dt \quad (10)$$

où λ_m (s^{-1}) est le taux de captation en masse des aérosols par aspersion. Nous avons réalisé un calcul du FD pour une atmosphère initialement à 5 bars, 140 °C et à saturation. Les gouttelettes sont injectées 20 °C, avec une vitesse initiale de 20 $m.s^{-1}$ et sont caractérisées par une distribution log-normale (DMM = 500 μm et $\sigma = 1.5$). On considère une population d'aérosols initialement log-normale (DMM = 2 μm et $\sigma = 1.8$). De plus, le calcul a été effectué successivement avec et sans agglomération des gouttelettes afin d'évaluer l'effet de ce mécanisme sur la captation des aérosols. Les résultats obtenus sont reportés sur les figures II.

Le calcul montre une assez grande dispersion du taux de captation et le fait que la prise en compte de l'agglomération diminue ceux-ci, l'écart augmentant en fonction du temps. Le calcul sans agglomération n'est donc pas conservatif. L'explication des résultats réside dans la variation de l'efficacité totale de captation en fonction de la taille des gouttelettes. Au début de la séquence, les effets inertiels dominent et sont peu sensibles à la taille des gouttelettes. Par la suite, le déplacement de la distribution vers les petites tailles fait que la diffusiphorèse puis les effets diffusifs dominent, d'où une plus grande sensibilité à la thermique de l'enceinte et à la granulométrie du nuage de gouttelettes.

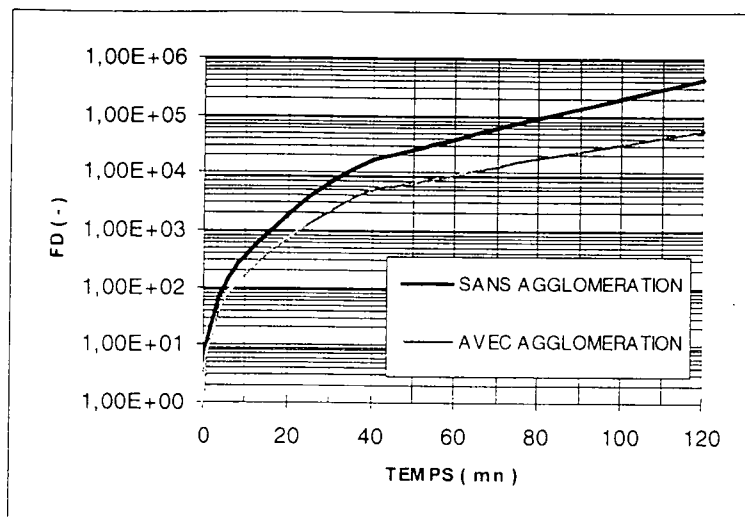


Figure II : évolution au cours du temps du facteur de décontamination.
 Gouttelettes : DMM = 500 μm ; $\sigma = 1.5$ Aérosols : DMM = 2 μm ; $\sigma = 1.8$

Pour mettre en évidence l'effet de la granulométrie des gouttelettes sur le FD, un calcul a été réalisé en fixant la distribution en taille des aérosols (DMM = 2 μm et $\sigma = 1.8$) et en faisant varier la distribution de taille des gouttelettes. Deux populations de gouttelettes ont été choisies, l'une ayant les caractéristiques : DMM = 500 μm et $\sigma = 1.5$ et l'autre : DMM = 700 μm et $\sigma = 1.5$. Les résultats sont reportés sur les figures II et III. On observe une forte influence de la taille des gouttelettes sur le FD. Pour la population de gouttelettes dont le DMM = 500 μm , on atteint un FD de 1000 sur une durée de 20 mn avec agglomération alors que pour la seconde population, ce facteur est égal à 20 pour la même période. A noter que pour cette dernière population de gouttelettes, le facteur 1000 n'est toujours pas atteint au bout de 120 mn.

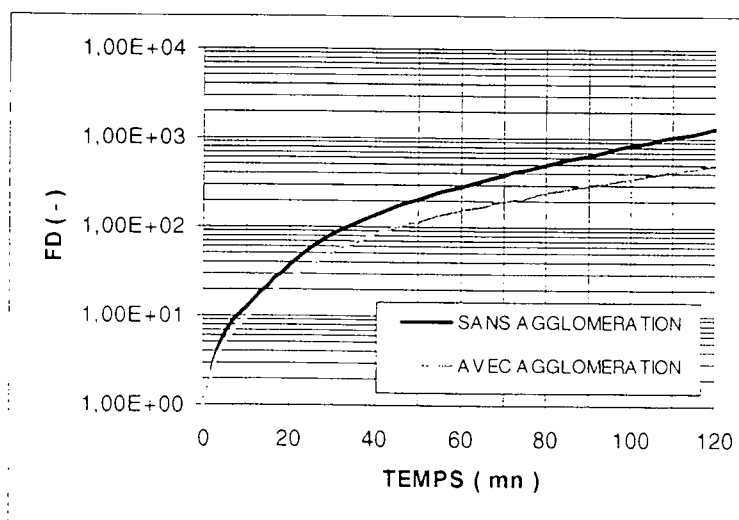


Figure III : évolution au cours du temps du facteur de décontamination.
 Gouttelettes : DMM = 700 μm ; $\sigma = 1.5$ Aérosols : DMM = 2 μm ; $\sigma = 1.8$

¹ K. H. SCHMITT, L. WALDMANN : Thermophoresis and diffusiophoresis of aerosols. Chap. 6 of Aerosol Science. Edited by C.N. Davies. Academic Press. New York (1966)

² D.A. POWERS, S.B. BURSON : A simplified model of aerosol removal by containment Sprays. NUREG/CR 5966. Sandia National Laboratories (1993)

CITEPA

CENTRE INTERPROFESSIONNEL TECHNIQUE D'ETUDES DE LA POLLUTION ATMOSPHERIQUE
10, RUE DU FAUBOURG POISSONNIERE - 75010 - PARIS

TEL. 01.44.83.68.83 - FAX 01.40.22.04.83 - e-mail : 100706.407 @ compuserve.com

LES EMISSIONS DE POLLUANTS PARTICULAIRES DANS L'ATMOSPHERE PAR LES ACTIVITES HUMAINES

R. BOUSCAREN, Directeur du CITEPA

13e Congrès Français sur les Aérosols - CFA 97

(PARIS, 2 et 3 décembre 1997)

I - INTRODUCTION

Depuis maintenant près de 50 années, une présentation des problèmes de pollution atmosphérique dus à la présence de poussières en suspension dans l'air ne saurait commencer que par ces mots : "*la pollution atmosphérique par les poussières d'origine humaine existe depuis la nuit des temps ou, plus précisément, depuis que l'homme a domestiqué le feu dans le fond des cavernes*".

Beaucoup d'appellations sont utilisées pour désigner ce type de polluants : poussières, particules, fumées noires, aérosols, etc. Les poussières constituent un mélange complexe de substances organiques ou minérales. Elles peuvent être d'origine naturelle ou anthropique. Leur distribution dans l'atmosphère est généralement considérée comme trimodale :

- les particules de mode "nucléation" de diamètre compris entre 0,005 et 0,1 μm , formées par condensation de vapeurs produites par les processus de combustion ou les réactions photochimiques,
- les particules de mode "accumulation", de diamètre compris entre 0,10 μm et 1 μm , issues de la coagulation et de l'agglomération de particules plus fines, par exemple des moteurs diesel,
- les "grosses" particules de plus de 1 μm , en provenance des processus de broyage, roulage des véhicules sur la chaussée, etc.

Les deux premières catégories sont généralement classées sous l'appellation "particules fines".

Les **sources naturelles** d'émission de poussières dans l'atmosphère sont nombreuses, mais généralement difficilement quantifiables. Il s'agit par exemple de phénomènes d'érosion éolienne, de fragmentation sous des effets thermiques, d'aérosols d'origine marine, de poussières d'origine volcanique, d'aérosols fins d'origine biologique, etc.

Il est un autre phénomène qui rend encore plus complexe et hasardeuse les estimations des rejets de poussières dans l'atmosphère, c'est celui du **réenvol de ces poussières** sous l'effet des mouvements de l'air. En effet, les poussières, par suite de leur masse, se déposent à la surface des objets et du sol et le vent peut les remettre en suspension dans l'atmosphère. Il y a donc continuellement **dépôt de poussières** (donc diminution de la quantité de poussières contenue dans un certain volume d'atmosphère) et, en même temps ou presque, **réémission de poussières** dans l'atmosphère (donc augmentation de la quantité de poussières contenue dans ce volume d'atmosphère).

Au milieu de toutes ces difficultés, on peut se demander quelle serait l'utilité d'un inventaire des émissions de poussières d'origine anthropique dans l'atmosphère. Dans tous les pays industriels, les experts se posent la même question.

Du point de vue strictement scientifique un tel inventaire présente fort peu d'intérêt dans l'état actuel de nos connaissances. En effet la chimie de l'atmosphère, qui est actuellement en plein développement, ne prend pour le moment en compte que les réactions chimiques monophasiques gaz/gaz. Un très petit nombre de travaux commencent à être initiés avec l'ambition d'introduire également des réactions chimiques diphasiques (gaz/solide et gaz/liquide).

Malgré l'incertitude qui entoure l'intérêt présenté par la réalisation d'un inventaire des émissions anthropiques de poussières, les techniciens spécialisés dans les problèmes de pollution atmosphérique n'ont pas attendu pour améliorer leurs connaissances dans ce domaine. Trois objectifs étaient visés :

- connaissance par des mesures in-situ des rejets de poussières par divers procédés industriels et détermination des caractéristiques physico-chimiques de ces rejets (granulométrie principalement) pour pouvoir dimensionner au mieux les installations de réduction des émissions de poussières (dépollueurs),

- définition de limites réglementaires de rejets de poussières dans l'atmosphère par divers procédés industriels. Cette initiative a évidemment pour but de réduire progressivement ces rejets pour maintenir ou améliorer la qualité de l'air,
- réalisation, malgré tout, d'inventaires d'émission avec surtout pour objectif d'observer l'évolution de ces émissions dans le temps et pouvoir apprécier l'effet, espéré bénéfique, des réglementations définies ci-dessus.

On voit donc finalement que la **modestie est de rigueur** lorsque l'on est confronté au problème de la quantification des émissions de poussières dans l'atmosphère. Toutes les tentatives actuelles ne peuvent donc qu'être considérées que comme ayant surtout un caractère expérimental.

Bien que les poussières soient un polluant dont l'homme a pris conscience de l'importance depuis très longtemps, on se retrouve actuellement dans une situation où l'on est beaucoup plus avancé dans le domaine des polluants gazeux que dans le domaine des polluants particuliers.

II – SOURCES D'EMISSION DE POUSSIERES ANTHROPIQUES

On distingue deux sources d'émission de poussières :

- **les combustions** : les poussières sont de deux natures, d'une part les imbrûlés carbonés qui résultent le plus souvent d'une combustion incomplète et, d'autre part, les cendres minérales qui constituent un résidu fatal que même une excellente combustion ne saurait détruire. Dans les combustions, il convient d'inclure les moteurs thermiques qui ne sont que des combustions un peu particulières.
- **les procédés industriels, agricoles, artisanaux** (avec ou sans combustion) qui sont une source importante de poussières, soit qu'ils impliquent des phénomènes de combustion tels que les fours de cimenterie, les convertisseurs sidérurgiques, les procédés de séchage direct, etc. soit qu'ils concernent d'autres opérations, tels la manutention et le transport des matériaux pulvérulents, l'extraction des minéraux, etc.

III – QUANTIFICATION DES EMISSIONS DE POUSSIERES TOTALES

La quantification des émissions de polluants atmosphériques est réalisée par le CITEPA depuis de nombreuses années (depuis les années 70). Pour distinguer l'inventaire CORINAIR, qui fait partie du programme CORINE (Décision du Conseil européen du 27 juin 1985) de l'inventaire CITEPA, nous avons appelé ce dernier "l'inventaire ITC" (Inventaire Traditionnel du CITEPA). Jusqu'à ce jour, l'inventaire CORINAIR étudie huit polluants (SO₂, NO_x, COVNM, CH₄, CO, CO₂, N₂O, NH₃) ; les poussières n'en font pas partie, elles en feront partie dans les années à venir.

La méthode d'estimation des émissions de poussières de l'ITC consiste à évaluer ces émissions en utilisant des facteurs d'émission appropriés, établis par exemple en fonction de la consommation des combustibles, de la production des produits manufacturés, de la quantité de matières premières utilisées, de la distance parcourue concernant le trafic automobile, etc. On admet généralement que la précision des estimations concernant les poussières est de l'ordre de $\pm 20\%$, bien que personne n'en ait encore apporté la preuve !

La quantification des émissions de poussières est difficile tant en ce qui concerne les sources fixes que les sources mobiles car on sait que de petites modifications de réglage de la combustion, du procédé, du système de dépoussiérage et des conditions opératoires peuvent conduire à de fortes variations des émissions de poussières.

IV - RESULTATS

Les graphiques IV.1, IV.1a et IV.1b présentent l'évolution des émissions de poussières de 1980 à 1995 par secteurs d'activité.

IV.1 - EMISSIONS DE POUSSIERS DUES A LA COMBUSTION

Les émissions de poussières sont estimées sur la base de la consommation des combustibles fossiles des secteurs suivants : résidentiel et tertiaire, industrie, centrales électriques, transformation d'énergie et transport routier.

Secteur résidentiel et tertiaire

La contribution du secteur résidentiel et tertiaire est faible, oscillant entre 5 et 8 % des émissions totales. Les émissions ont fortement régressé (- 68 % sur la période 1980-1995) du fait de l'utilisation de plus en plus importante de l'électricité et du gaz au détriment des combustibles minéraux solides et des produits pétroliers (fuel domestique).

Industrie

Les émissions de poussières dues à la combustion sous chaudière ont été divisées par un facteur de 7 environ au cours de la période 1980-1995. L'un des éléments qui a contribué à la diminution des émissions est la forte baisse de la consommation des produits pétroliers et, dans une moindre mesure, du charbon.

Centrales électriques

Les émissions des centrales électriques alimentées aux fuels oils et au charbon ont été divisées par 10 sur la période 1980-1995. Le programme électro-nucléaire contribue pour une large part à la diminution des émissions en provenance des centrales thermiques.

Transport routier

Au cours de la période 1980-1995, le transport routier a doublé ses émissions de poussières du fait de la croissance du parc des véhicules à moteur diesel (3,6 % du parc total en 1980, 15 % en 1990, 20 % en 1992 et 25 % en 1994) et de la consommation de gazole passant de 9 400 kt en 1980 à 21 303 kt en 1994, soit une augmentation moyenne de l'ordre de 9 % pendant 14 ans.

IV.2 - EMISSIONS DE POUSSIERS DUES AUX PROCÉDES INDUSTRIELS

Les émissions dues aux procédés industriels sont de loin les plus importantes ; elles sont responsables de l'ordre de 50 % des émissions totales de poussières en France. Une part importante des émissions de poussières provient de l'activité d'exploitation minière et de l'industrie sidérurgique.

Il faut souligner que les émissions de poussières dues aux procédés industriels représentés par le graphique IV.1b ne sont que le reflet de la production industrielle des diverses branches de l'industrie. On peut considérer, d'une façon générale, que les émissions de poussières dans les pays industrialisés tel que la FRANCE, ont considérablement baissé. Certains avancent qu'en quelques décennies, ces pays ont réduit de plus de 10 fois leurs taux d'émission de poussières grâce aux systèmes de dépoussiérage très efficaces.

Nous présentons ici les cas de l'industrie cimentière et des centrales thermiques EdF qui sont spécifiquement mieux connus (fig. 1 et fig. 2). On peut noter que les émissions de poussières provenant de ces sources ont diminué d'une façon considérable.

IV.3 - EMISSIONS PAR TYPES DE COMBUSTIBLES

Le graphique IV.3 illustre les émissions de poussières attribuées à chaque type de combustible.

L'efficacité des systèmes de dépoussiérage (centrales EdF) et une moindre consommation de combustibles minéraux solides et du fuel lourd ont fortement réduit les émissions de poussières provenant de l'utilisation de ces deux combustibles.

Il n'en n'est pas de même pour les "poussières grasses" provenant des fuels oils utilisés par le transport routier. Avec la diésélisation croissante du parc de voitures particulières (3,6 % du parc total en 1980, 15 % en 1990 et 25 % en 1994), la croissance du parc des poids lourds et des véhicules utilitaires légers diesel, on peut supposer que la situation des émissions de poussières dues au transport ne va pas s'améliorer très rapidement.

IV.4 - TENDANCE D'EVOLUTION DES EMISSIONS

Le graphique IV.1c présente le taux de variation des émissions de poussières durant la période de 1980-1995 (base 100 en 1980). Globalement, les émissions de poussières ont baissé de l'ordre de 50 % par rapport à l'année de référence 1980, bien que les émissions par le transport routier ait doublé sur cette période.

5 - PRISE EN COMPTE DE LA GRANULOMETRIE

Pour des raisons d'effets sur la santé, il est maintenant important, lorsque l'on mesure les concentrations de poussières en suspension dans l'atmosphère, de distinguer ces masses de poussières en fonction de leur taille. En effet, on estime que les particules de plus de 10 μm ont toutes les chances d'être arrêtées dans le système respiratoire supérieur de l'homme au niveau du nez. Par contre les poussières plus fines peuvent pénétrer plus profondément dans le système respiratoire, et ce, d'autant plus que le diamètre de ces poussières est faible.

Ainsi distingue-t-on actuellement :

- PM₁₀ : la masse de poussières dont le diamètre est inférieur à 10 μm ,
- PM_{2,5} : la masse de poussières dont le diamètre est inférieur à 2,5 μm .

Les experts de la pollution atmosphérique ont donc pensé qu'il pourrait être utile de réaliser des inventaires d'émission qui ne prennent en compte que les poussières dont le diamètre est inférieur à 10 μm ou à 2,5 μm .

En fait, il convient de tempérer cette initiative enthousiaste en se rappelant que, par suite des phénomènes bien connus en physique des aérosols (agglomération, condensation, fracture, etc.), il n'y a pas de relation simple (et peut-être même pas de relation du tout) entre le spectre granulométrique des poussières à l'émission d'une source et le spectre granulométrique de ces mêmes poussières que l'on est susceptible de respirer.

Que connaît-on des spectres granulométriques des poussières émises par les activités humaines ?

A vrai dire peu de choses.

Pour les moteurs thermiques, c'est seulement depuis une date récente que l'on dispose de distributions granulométriques pour les moteurs à essence et pour les moteurs diesel (diamètre médian de l'ordre de 0,1 μm) (fig. V.2).

La figure V.1 présente un certain nombre de distributions granulométriques de poussières en masses émises par des procédés industriels ou des installations de combustion avant dépoussiérage. Ces informations proviennent essentiellement de quatre références très classiques : Techniques de

l'Ingénieur, Mc Ilvaine Manual, Air Pollution Engineering Manual, Air Pollution IV de STERN. Un examen approfondi de ces distributions permet de distinguer deux familles :

- d'une part, des distributions correspondant à des procédés où les poussières proviennent de **phénomènes d'attrition d'origine mécanique ou thermique** (chaudières au charbon, enrobage de produits routiers, agglomération de minerais, incinération de déchets, cubilots, etc.),
- d'autre part, des distributions correspondant à des procédés dans lesquels les poussières proviennent de **phénomènes de condensation** à partir de vapeurs à haute température (fours à arc électrique, fours d'aciérie, fours électriques à silice, etc.).

La figure V.2 présente deux distributions moyennes en masse tirées de la figure V.1 : l'une (M) correspondant à la première catégorie (médiane : $20 \mu\text{m}$), l'autre (C) correspondant à la deuxième catégorie (médiane : $3 \mu\text{m}$). Bien entendu, ces deux distributions en masse ne sont que des distributions moyennes dont les caractéristiques ne peuvent être précisées que de façon très grossière.

On a également reporté sur cette figure V.2 la distribution granulométrique en masse des poussières émises par des moteurs diesel ou à essence (médiane : $0,2 \mu$) telle que l'on trouve cette information dans la littérature (distribution granulométrique D).

On connaît donc peu de choses sur ces spectres granulométriques, mais on risque de persévérer dans l'ignorance encore longtemps lorsque l'on sait que cette connaissance, voire cette expérience, est la base du "know-how" des constructeurs de matériels de dépolluage (électrofiltres, media filtrants, etc.) et que cette connaissance est, et c'est justifié, jalousement tenue cachée pour des raisons de concurrence commerciale.

6 - EXPLOITATION DES RESULTATS APRES DEPOUSSIERAGE

Les distributions granulométriques (M) et (C) sont présentées en amont de tout système de dépolluage. Or un bon système de dépolluage peut se caractériser par les efficacités de captation suivantes selon la taille des particules, par exemple :

- $0,1 \mu \Rightarrow 60 \%$
- $1 \mu \Rightarrow 90 \%$
- $10 \mu \Rightarrow 99,5 \%$

Après transformation due à la présence du système de dépolluage, les distributions granulométriques deviennent les distributions (M_1) et (C_1).

Finalement les distributions (M_1), (C_1) et (D) ne sont pas très différentes les unes des autres :

- (M_1) valeur médiane : $\# 1 \mu\text{m}$
- (C_1) valeur médiane : $\# 0,2 \mu\text{m}$
- (D) valeur médiane : $\# 0,2 \mu\text{m}$

La masse de poussières dont le diamètre est inférieur à $10 \mu\text{m}$ est respectivement :

- de 5 % pour la distribution (M_1)
- de 0,5 % pour la distribution (C_1)
- de 0,5 % pour la distribution (D)

Ceci confirme un fait connu depuis longtemps, à savoir que ce qui contribue le plus à la masse d'une certaine quantité de poussières, ce sont les particules les plus grosses ; les particules les plus fines sont très nombreuses mais elles interviennent de façon très négligeable dans l'expression de la masse. Les épidémiologistes ne s'y laissent pas prendre et savent que dans le domaine de l'étude des effets

des poussières sur la santé : la masse de poussières n'est sans doute pas le bon paramètre ; le bon paramètre serait plutôt le nombre de particules fines, ou peut-être même la surface de ces particules.

En allant plus loin dans le raisonnement, et en faisant observer que l'efficacité d'un dépoussiéreur diminue considérablement lorsque le diamètre des particules diminue, il n'est pas faux de conclure :

Un bon dépoussiéreur peut réduire la masse de poussières rejetées dans l'atmosphère de 99,99 % certes, mais le nombre des particules rejetées, lui, a diminué de façon quasi imperceptible ; or ce sont peut-être ces fines particules qui ont véritablement un effet sur la santé.

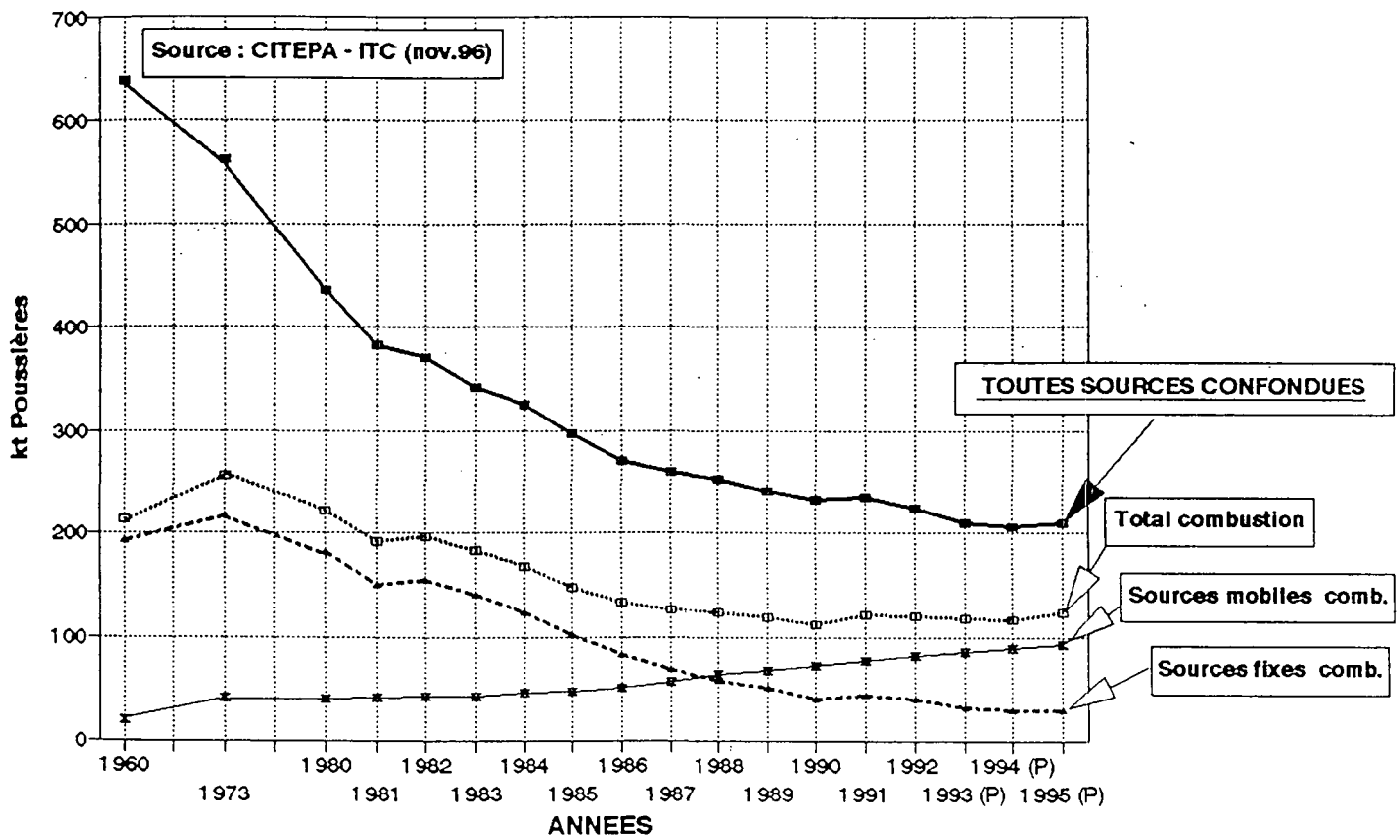
7 - CONCLUSION

On croyait le problème des poussières pratiquement résolu grâce aux progrès réalisés dans l'efficacité des dépoussiéreurs. Il n'en n'est rien. On se heurte donc maintenant, à propos d'un polluant que l'on pensait ultra-classique, à un gouffre d'ignorance, d'incertitude et de progrès technologiques encore à réaliser.

Les poussières sont bien le polluant du XXI^e siècle !

Graphique IV.1

EMISSIONS DE POUSSIÈRES EN FRANCE REPARTIES PAR TYPES DE SOURCES

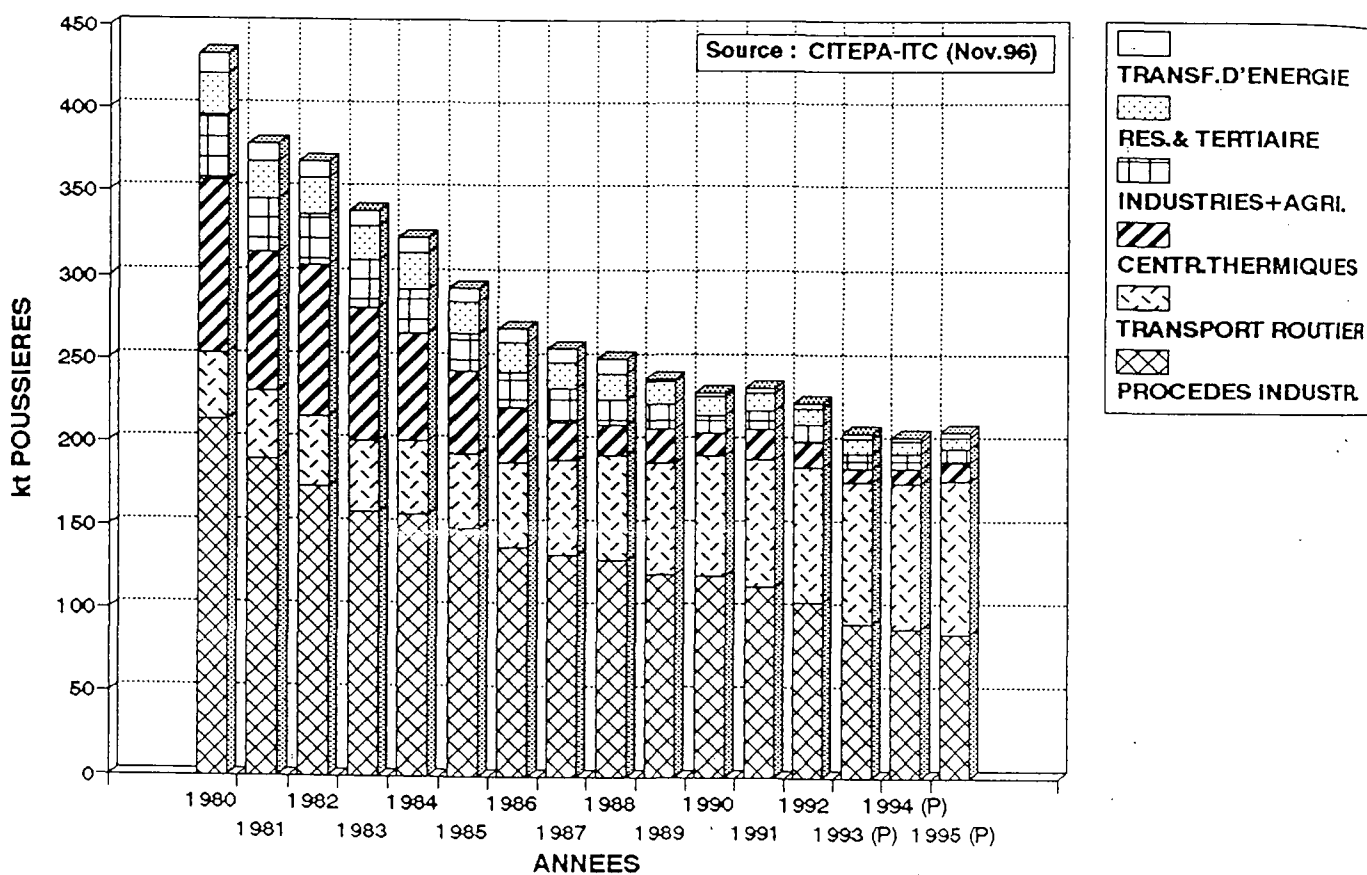


Sources mobiles = transport routier uniquement

(P) = provisoire

Graphique IV.1a

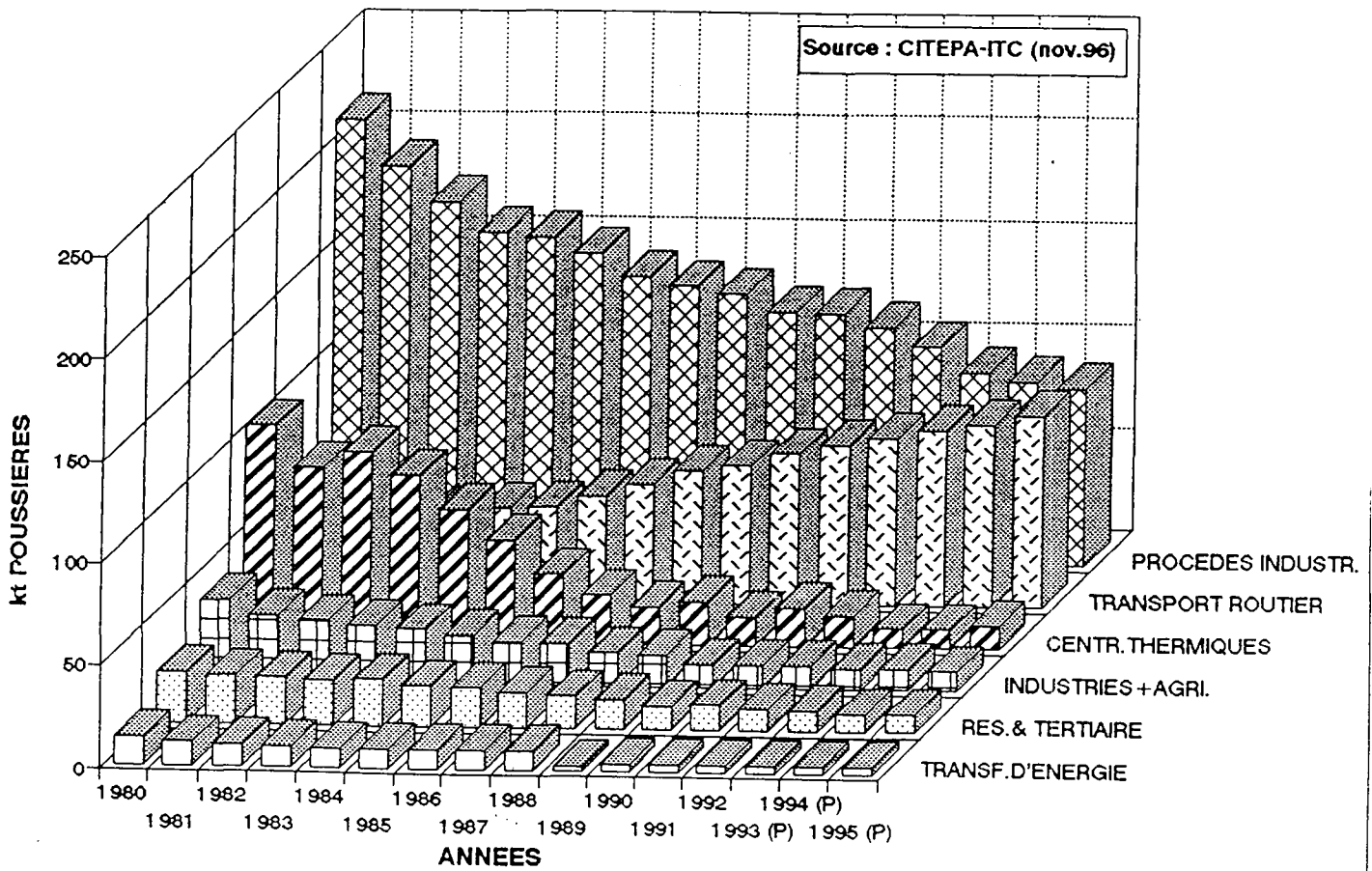
**EMIS.CUMULEES DE POUSSIERS EN FRANCE
PAR SECTEURS D'ACTIVITE**

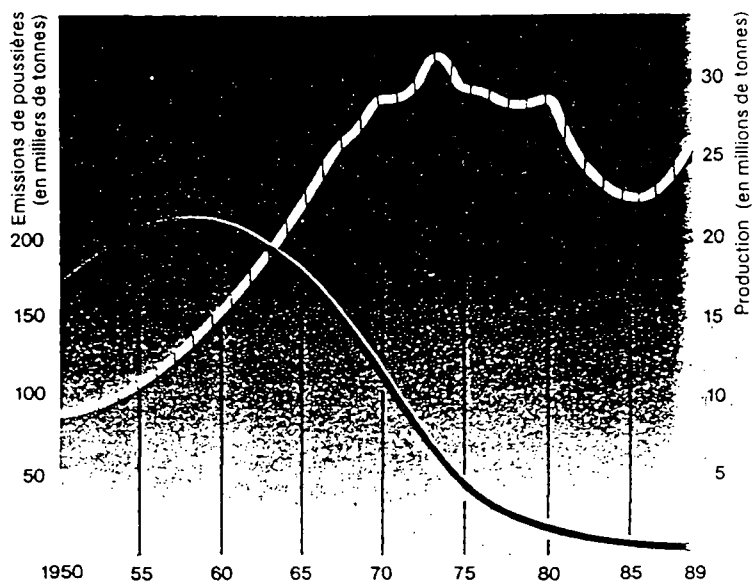


Graphique IV.1b

EMISSIONS DE POUSSIÈRES EN FRANCE PAR SECTEURS D'ACTIVITE

Source : CITEPA-ITC (nov.96)

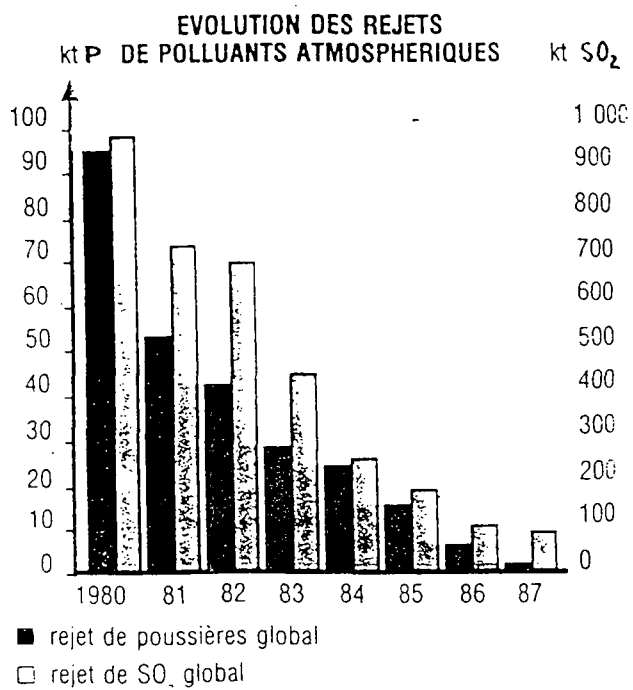




De 1950 à 1980, les émissions de poussières de la profession cimentière ont été divisées par 10 alors que la production se multipliait par 3,6.

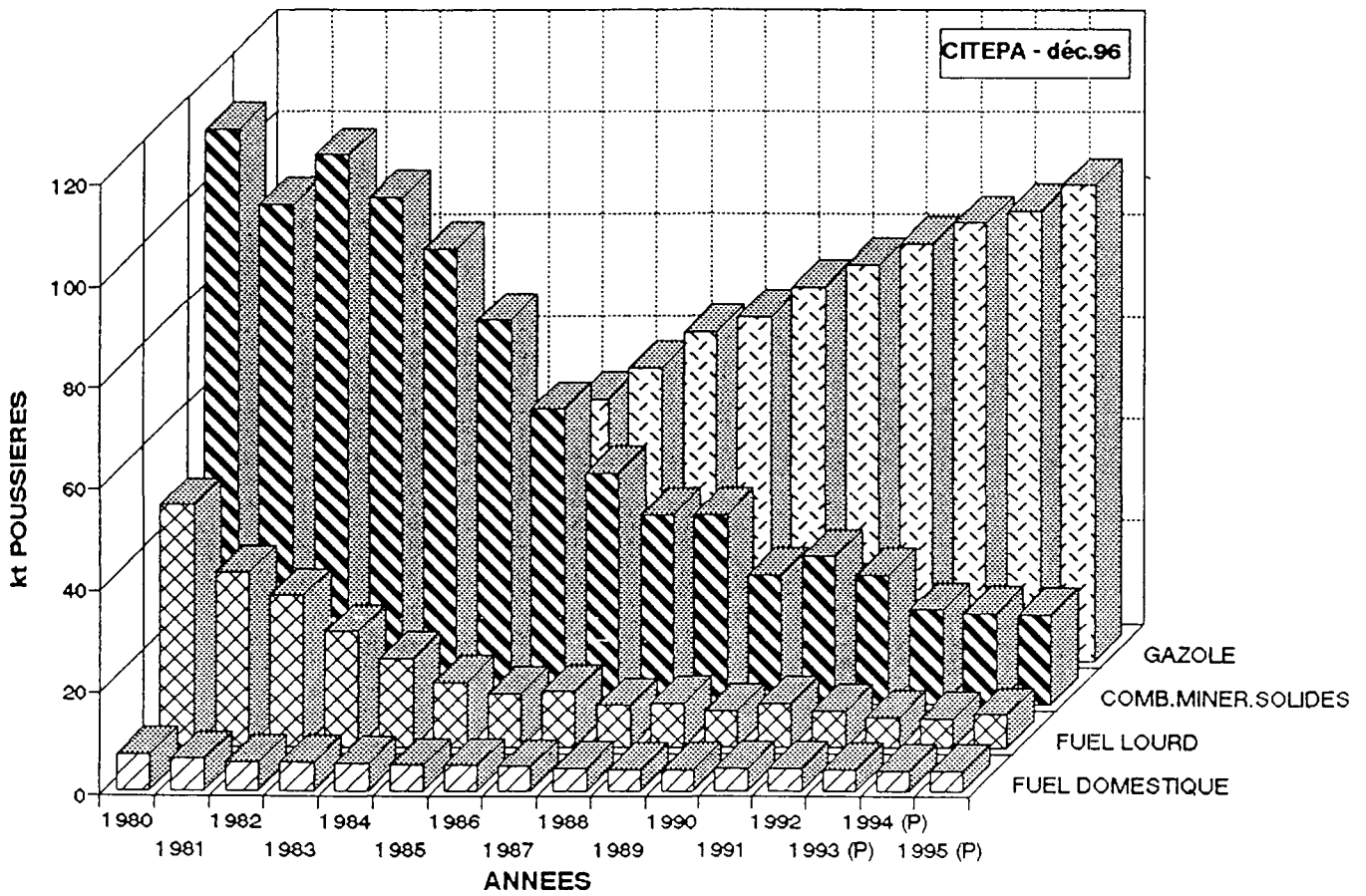
Fig. 1.- Cas de l'industrie cimentière

Fig.2.- Cas des centrales thermiques classiques EDF



Graphique IV.3

**EMIS. POUSSIERS PAR TYPE DE COMBUSTIBLE
(TOUS SECTEURS EXCEPT. TR. ENER. & PROCÉDES)**



Graphique IV.1c

EVOLUTION DES EMISSIONS DE POUSSIÈRES DE L'ENSEMBLE DES SECTEURS D'ACTIVITE

Indices

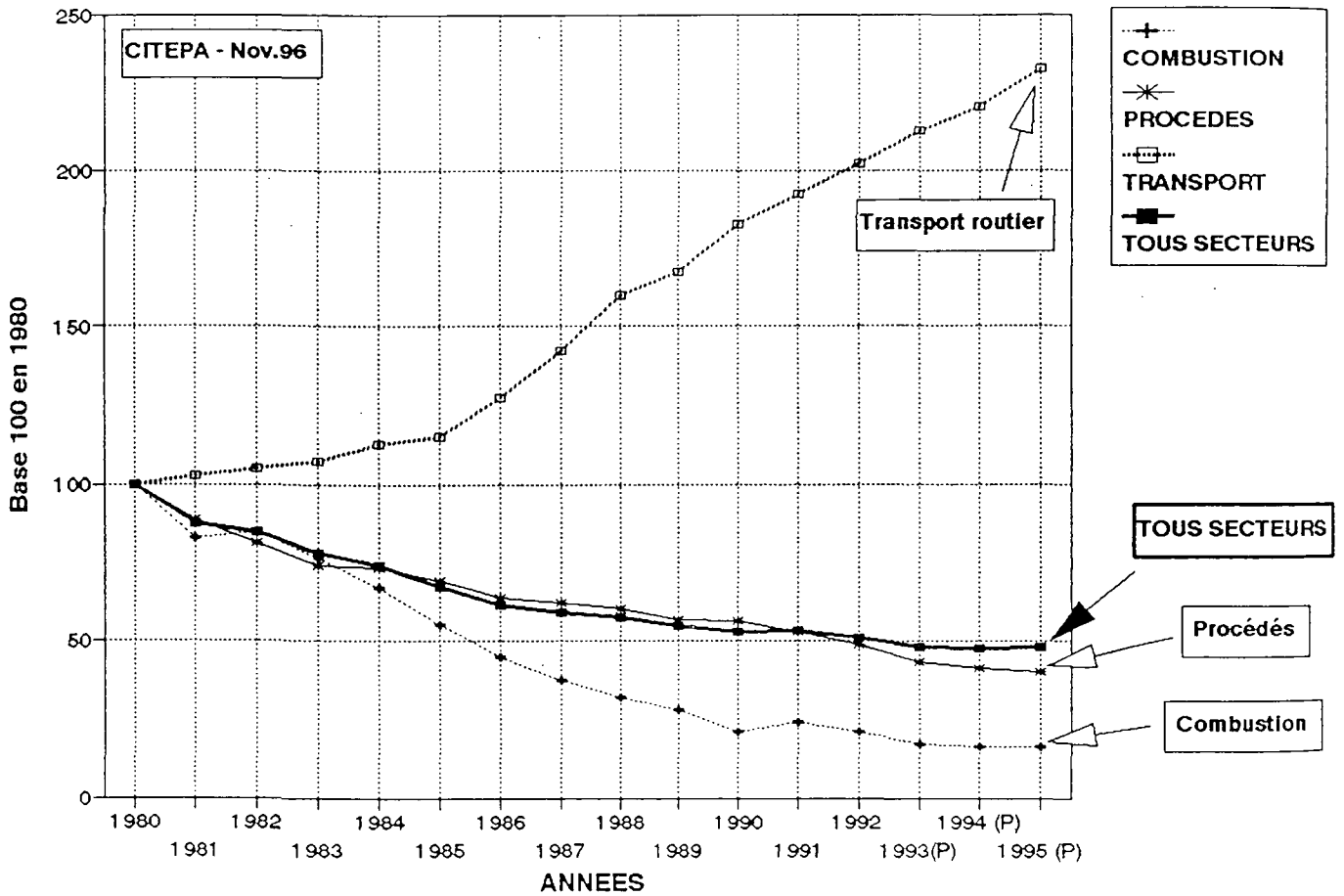


Figure V.1

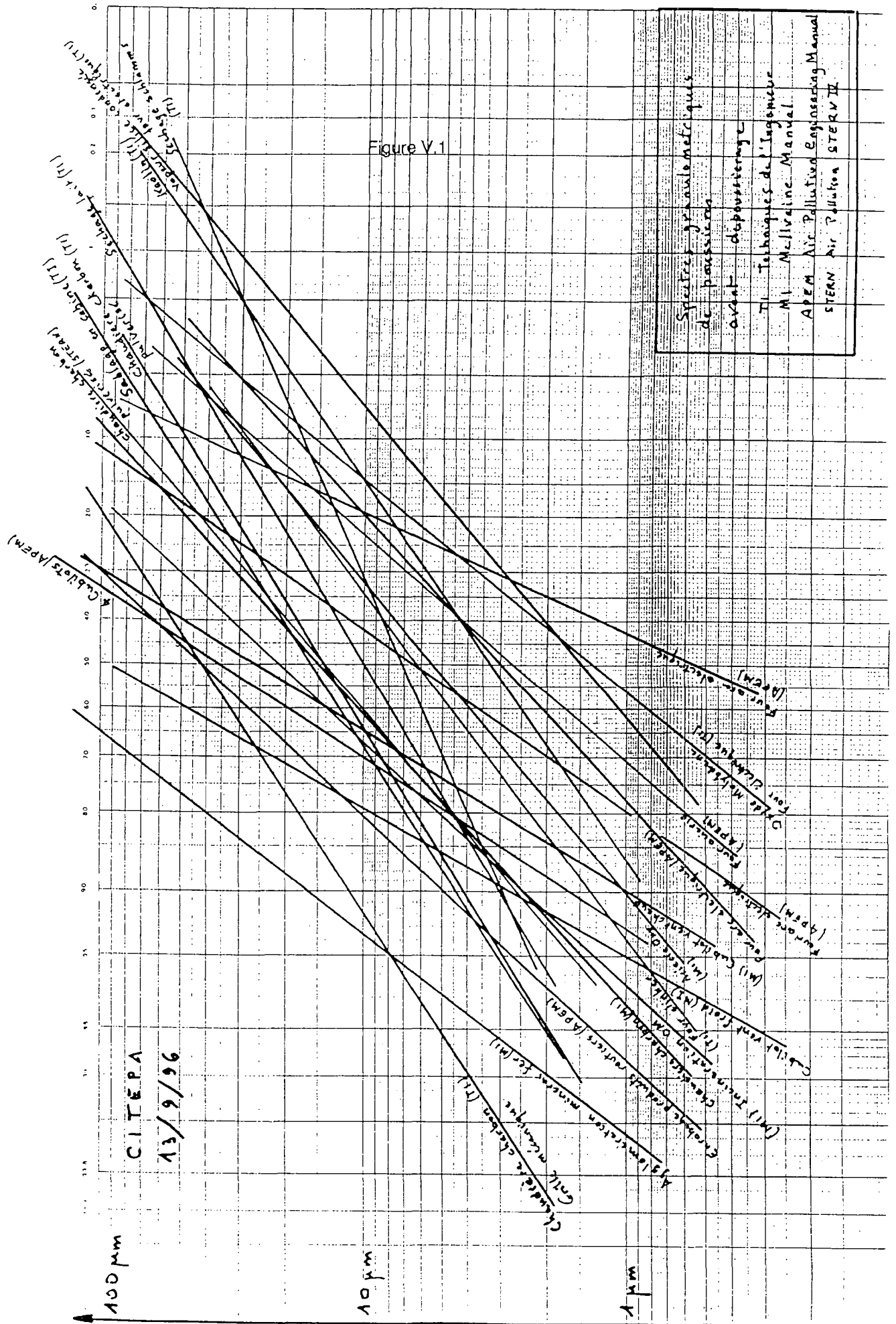


Figure V.2

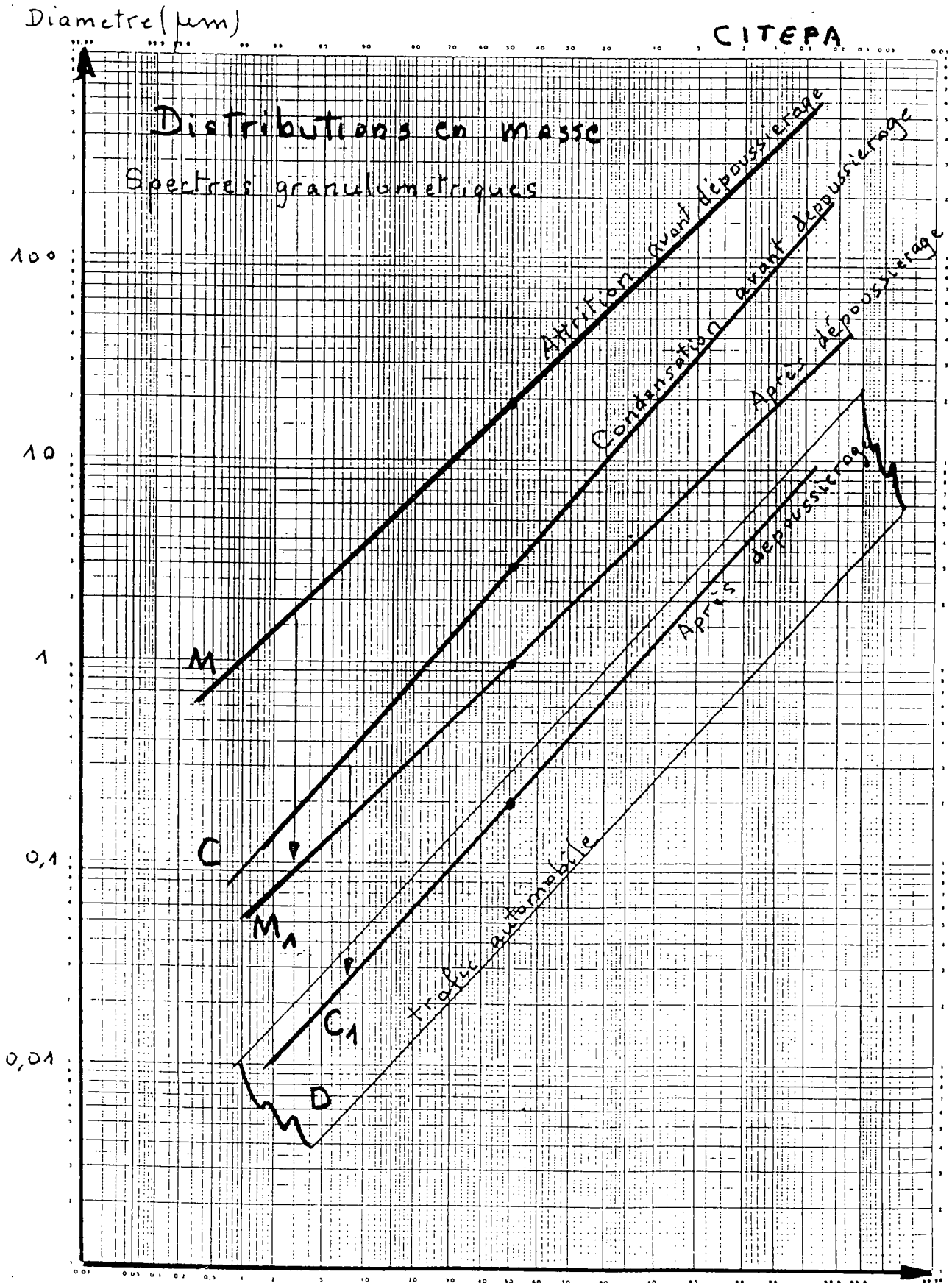


Tableau VI.1 - EMISSIONS DE POUSSIÈRES+B2

CITEPA - SEPT.1996

COMBUSTION SOUS CHAUDIERES	Poussières
ANNEE 1994 (Provisoire)	tonnes
RES./TERT. - CMS	2140
CHAUF.URB - CMS	1782
RES./TERT. - FOL	238
CHAUF.URB. - FOL	950
RES./TERT. - FOD	2977
CHAUF.URB. - FOD	5
TOTAL RES./TERTIAIRE (1)	8093
IND. - CMS	5325
IND. - FOL	3444
IND. - FOD	683
TOTAL INDUSTRIE (2)	9451
CT - CMS	8366
CT - FOL	792
TOTAL CENTRALES ELECTR. (3)	9158
TRANSF.D'ENERGIE (4)	3228
TOTAL (1+2+3+4)	29931

TRANSPORT ROUTIER (5)	93000
------------------------------	--------------

PROCEDES INDUSTRIELS	POUSSIÈRES
ANNEE 1994 (Provisoire)	tonnes
SID.& 1ère TRANSF.DE L'ACIER	
PROD.AGGLO.: US.MIN.	324
PROD.AGGLO.: US.NON MIN.	180
PROD.COKE PAR COK.MIN	612
PROD.COKE PAR COK.SID.	2262
PROD.: FONTES BRUTES	13008
PROD.ACIER : PROC.OXYG.PUR	4757
PROD.ACIER : PROC.ELECT.	3072
FONDERIES	
PROD.: FONTES BAT.& SUR MODELE	2693
METALLURG.DES NON FERREUX	
PROD.: ALU.1ère FUSION	3457
PROD.: Pb.doux 1ère FUSION	?
PROD.: ZINC 1ère FUSION	?
MINERAIS NON FERREUX	
PROD.: BAUXITE	
PROD.: MINER.DE PLOMB (galène)	
PROD.: MINER.DE ZINC (blende)	
PROD.: URANIUM	
EXPLOITATION MINIERE	
PROD. HOUILLE & LIGNITE	29880
PROD.MINERAJ DE FER	7236
CHIMIE MINERALE	
PROD.ENGRAIS AZOTES	2883
PROD.ENGRAIS PHOSPHATES	53
PROD.ENGRAIS COMPOSES	905
PROD.AMMONIAC en NH3	?
MATERIAUX DE CONSTRUCTION	
PROD : CHAUX & CEMENTS	6055
PROD.: MACADAM & BALLAST	?
PROD.: MAT.CERAMIQUES	?
INDUSTRIE DE LA PATE A PAPIER	
PROD.: PATES MI-CHIMIQUES	
PROD.: PATES BISULFITES	
PROD.: PATES A LA SOUDE	3810
INDUSTRIES AGRO-ALIMENTAIRES	
MANUTENTION CEREALES	?
ELIMINATION DES DECHETS	
INCINERATION DECHETS URBAINS	7242
INCINERATION DECHETS INDUSTRIELS	225
TOTAL EMISSIONS EN t (6)	88655

EMISSIONS DE POUSSIÈRES (1+2+3+4+5+6)	211585
--	---------------

Effets sur la santé des poussières en suspension dans l'air

Professeur F. GRIMALDI

Laboratoire de Toxicologie et Pharmacie clinique
et APPA Comité Marseille-Provence
Faculté de Pharmacie, 27 Boulevard Jean Moulin
13385 Marseille Cedex 5

RÉSUMÉ

Les poussières en suspension dans l'air constituent un vaste ensemble très hétérogène de polluants ; présentes depuis toujours dans l'air, elles constituent un des véhicules principaux de la pollution atmosphérique.

D'origine à la fois naturelle, mais surtout anthropique, elles sont présentes partout dans notre environnement à la fois à l'extérieur mais également à l'intérieur des bâtiments.

Leurs différentes définitions, leur granulométrie fort variée, leur mode d'expression en nombre ou en masse, le manque d'harmonie dans la métrologie, la diversité des polluants qu'elles supportent, expliquent les nombreuses controverses actuelles suscitées par le sujet.

En deçà de 10 μm les particules peuvent être inhalées par l'homme. Selon leur diamètre, elles parcourent successivement le compartiment extrathoracique puis intrathoracique et atteignent pour les plus fines ($d < 0,3 \mu\text{m}$) les alvéoles pulmonaires. Il faut également prendre en compte l'épuration des particules qui est différente selon leur site de dépôt dans l'arbre alvéolobronchotrachéal.

La toxicologie professionnelle a permis de bien cerner les effets sur la santé des particules grâce aux enquêtes épidémiologiques réalisées chez des populations exposées. Il s'agit de manifestations pathologiques tels que fibrose et cancer.

Pour l'environnement général la littérature scientifique laisse planer un doute quant à l'effet toxique direct de ces particules chez l'homme ; l'interprétation des résultats reste délicate car les toxiques présents dans l'air y sont mélangés et subissent des transformations physico-chimiques, ce qui favorise les synergies d'action.

Les derniers travaux portant en particulier sur les effets respiratoires des particules fines seront présentés. Une attention particulière sera accordée aux "particules diesel" d'autant que le Centre International de Recherche contre le cancer (CIRC, 1989) et l'Agence Américaine de l'Environnement (US.EPA, 1994) ont classé les émissions diesel comme étant probablement cancérogènes (classe 2A du CIRC) chez l'homme.

INTRODUCTION

Depuis ces dernières années, la communauté scientifique nationale et internationale porte un intérêt croissant sur la pollution particulaire et ses effets sur la santé.

Les poussières en suspension dans l'air constituent un vaste ensemble très hétérogène de polluants ; présentes depuis toujours dans l'air, elles sont le support essentiel de la pollution atmosphérique. Après avoir précisé les sources d'émission de ces polluants dans l'air et les paramètres de controverse qu'ils suscitent actuellement, leurs effets sur la santé seront présentés.

SOURCES D'ÉMISSION

Les poussières atmosphériques sont présentes partout dans notre environnement à la fois à l'extérieur, mais également à l'intérieur des bâtiments. Elles peuvent être d'origine naturelle, apportées par les volcans et l'érosion des matériaux (sols, bâtiments). Mais la plus forte contribution à ce type de pollution revient à la source anthropique : l'industrie, les différents modes de transport, le chauffage domestique et l'incinération des déchets en sont les principaux émetteurs.

PARAMÈTRES DE CONTROVERSE

Un certain nombre de paramètres de confusion expliquent les nombreuses controverses actuelles suscitées par le sujet.

- Ainsi, en terme de définition, ces composés sont indifféremment qualifiés de poussières, de particules, d'aérosols, de fumées noires, de cendres, de "particle matter" (PM_{2,5} ou PM₁₀).
- Leur granulométrie varie de 100 μm pour les plus grosses à moins de 0.005 μm pour les plus fines.
- Leur mode d'expression est présenté soit en nombre, soit en masse alors que les valeurs de référence élaborées par l'Organisation Mondiale de la Santé ou la Communauté Economique Européenne sont proposées actuellement en masse.
- Un manque total d'harmonie règne dans la métrologie. Soulignons l'effort actuel de standardisation des mesures.
- Enfin, parmi la diversité des polluants supportés, certains d'entre eux présentent un fort potentiel toxique (métaux lourds, hydrocarbures polycycliques aromatiques).

EFFETS SUR LA SANTÉ

Pénétration et épuration des particules dans l'appareil respiratoire

La pénétration des particules dans l'arbre respiratoire se fait en fonction de leur diamètre.

Au dessus de 10 μm , les particules sont en grande partie arrêtées par les cils vibratils au niveau nasal et ne pénètrent pas dans l'appareil pulmonaire. Cependant certaines d'entre elles échappent à ce premier filtre, sont dégluties et peuvent être absorbées par voie digestive, gagnant ainsi des cibles extrapulmonaires.

Les particules dont le diamètre est compris entre 10 μm et 3 μm vont pouvoir se déposer au niveau du compartiment trachéobronchique. Les plus fines ($d < 3 \mu\text{m}$) vont atteindre le compartiment alvéolaire et selon la nocivité du composé qu'elles supportent, elles pourront induire des lésions des macrophages alvéolaires.

L'épuration des particules est différente selon leur site de dépôt dans l'arbre alvéolobronchotrachéal.

Ainsi dans le compartiment trachéobronchique cilié, celle-ci est très rapide (quelques jours). A l'inverse dans la fraction alvéolaire profonde l'épuration est très lente.

Toxicologie professionnelle

La toxicologie professionnelle a permis de bien cerner les effets sur la santé des particules grâce aux enquêtes épidémiologiques réalisées chez des populations exposées. Deux manifestations pathologiques sont mises en exergue dans ces études.

Il s'agit tout d'abord du potentiel fibrosant, bien connu pour l'exposition à la silice, l'amiante, les poussières des mines de charbon ou de fer et également les poussières de beryllium. L'inhalation répétée de ces particules essentiellement d'origine minérale peut provoquer des pneumoconioses, reconnues en tant que maladies professionnelles.

La deuxième pathologie est l'effet cancérigène lié par exemple à l'amiante qui peut entraîner à la site d'expositions importantes un mésothéliome de la plèvre ou des cancers du poumon et du larynx. Cet effet a également été démontré pour les hydrocarbures polycycliques aromatiques (benzopyrène) et certains métaux adsorbés sur les particules solides.

En milieu professionnel, l'exposition est spécifique et l'outil épidémiologique est bien adapté pour mettre en évidence la relation entre l'exposition au produit et l'altération de la santé.

Toxicologie environnementale

Pour l'environnement général, la littérature scientifique laisse planer un doute quant à l'effet toxique direct de ces particules chez l'homme ; l'interprétation des résultats reste délicate car les toxiques présents dans l'air y sont mélangés et subissent des transformations physico-chimiques, ce qui peut favoriser les synergies d'action. Il faut tenir compte également de la polyexposition des populations, de la variabilité interindividuelle (groupes à risque) et des facteurs concomitants (tabac).

Néanmoins des progrès considérables ont été faits en matière de connaissances des effets pathogènes des particules fines et ce, grâce au développement de l'outil statistique (métaanalyse) et aux nouveaux protocoles en épidémiologie (étude écologique temporelle).

La compilation des nombreuses études portant sur les effets pathogènes de ces particules fines a permis de mettre en évidence des effets respiratoires. Ils se traduisent par des symptômes irritatifs aigus, une réduction des capacités fonctionnelles et un recours aux soins médicaux et hospitaliers. Une corrélation entre particules et apparition de bronchites et crises d'asthme a été observée en milieu urbain. Le groupe des enfants serait plus sensible à ce type de manifestations.

Plusieurs auteurs américains se sont intéressés à la relation "Poussières et mortalité". Ainsi une augmentation de $10 \mu\text{g.m}^{-3}$ en "Particles Matter" (PM_{10}) pourrait entraîner une augmentation de 3,4 % de la mortalité respiratoire et 1,4 % de la mortalité cardiovasculaire. Cette évaluation du risque encouru a été conduite chez des personnes souffrant d'affections respiratoires et cardiaques préexistantes.

Il devient alors bien difficile d'extrapoler ces résultats à la population générale d'autant qu'aucun seuil d'effet n'a pu être mis en évidence.

En terme de toxicité chronique, le cancer est une des causes de décès le plus souvent associée à l'exposition chronique aux particules. La responsabilité de la genèse du processus cancérogène serait due à plusieurs groupes de polluants, pris isolément ou peut-être en association ; la littérature cite le plus souvent les métaux (As, Cr, Cd), les hydrocarbures polycycliques aromatiques et les émissions Diesel.

Les " effluents Diesel " ont fait l'objet des plus nombreux travaux. Tous les outils nécessaires à une bonne évaluation d'un risque toxique (études *in vitro*, *in vivo* et épidémiologiques) ont été mis en oeuvre pour étudier la toxicité du Diesel. Ainsi toutes les études menées *in vitro* ont montré le caractère mutagène aussi bien des émissions Diesel que celles émanant de l'essence.

In vivo, des études de cancérogenèse ont été menées chez l'animal exposé aux deux types de carburant ; pour l'essence, tous les résultats sont négatifs. Pour le Diesel, il faut noter une variabilité interspèces ; ainsi chez le singe et le hamster les résultats sont négatifs, par contre chez la souris et le rat un cancer pulmonaire se développe par des concentrations supérieures à 2 mg/m³. En modifiant le protocole opératoire d'exposition des animaux, notamment en filtrant les particules de l'aérosol Diesel, aucune prolifération cancéreuse n'apparaît. Ces résultats sont fort intéressants mais restent difficiles à transposer à l'homme d'autant que le mécanisme d'action de la genèse de ces cancers n'est pas encore totalement élucidé.

Des études épidémiologiques ont été menées chez des populations professionnellement exposées aux émissions Diesel (employés de chemin de fer, taxis, dockers, mineurs, chauffeurs de bus et camion). Elles montrent une augmentation faible du risque de cancer pulmonaire et vésical.

Mais il est difficile de faire la part entre le Diesel et l'essence. En l'état actuel des connaissances, il n'y a pas de conclusion certaine mais le doute persiste.

Aussi, dès 1989 le centre international de recherche contre le cancer et l'agence américaine pour l'environnement en 1994, ont classé les effluents Diesel dans le groupe des agents probablement cancérogènes pour l'homme.

CONCLUSION

Les poussières en suspension dans l'air constituent la plus ancienne nuisance atmosphérique.

De nombreuses études ont montré le caractère pathogène des particules fines. Elles présentent un pouvoir irritant allié à la cancérogénicité de certains des polluants qu'elles supportent.

Il ne faut en aucun cas sous-estimer ce risque dans l'approche globale des effets sur la santé de la pollution de l'air.

Ce groupe de polluants est actuellement un des axes prioritaires de recherche.

Le trop grand nombre d'incertitudes sur le sujet mérite un développement accru des études à l'échelon expérimental (*in vitro*, *in vivo*, animal et homme) et également épidémiologique.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- La pollution atmosphérique d'origine automobile et la santé publique. Bilan de 15 ans de recherche internationale.

Collection Santé et Société, n° 4, mai 1996. Société française de Santé publique.

- Les poussières : un polluant du passé... et de l'avenir.

Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique (CITEPA). Journée d'études du 17 décembre 1996.

- D. LAFON

Toxicité des émissions issues des véhicules Diesel.

Les Entretiens de Ségur : "La Pollution Atmosphérique urbaine", Paris, 26 septembre 1994.

- C. VOISIN

Effet de la pollution atmosphérique sur la santé.

Les Entretiens de Ségur : "La Pollution Atmosphérique urbaine", Paris, 26 septembre 1996.

Élaboration d'une méthodologie d'évaluation d'une aérobiocontamination de surface : Survie d'un aérosol de *Pseudomonas fluorescens* déposé sur une surface inerte.

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.

RÉSUMÉ

De nombreuses particules biologiques aéroportées virus, bactéries (endotoxines), champignons (mycotoxines) sont retrouvées dans l'air intérieur des bâtiments. Ces polluants biologiques peuvent entraîner, selon les circonstances d'exposition et la réactivité des occupants, des pathologies infectieuses ou conduire à des manifestations immuno-allergiques.

La survie et le développement de ces biocontaminants dans l'air intérieur sont liés en partie à la colonisation des surfaces de matériaux de construction. Le rôle de ces matériaux et leur aptitude à favoriser ou non une croissance microbienne dans des conditions environnementales données sont méconnus. Le but du travail de recherche vise l'étude du développement de micro-organismes aéroportés sur les produits de construction et de décoration.

Un montage expérimental d'aérobiocontamination des surfaces a été conçu pour permettre de simuler une contamination microbienne aérienne des matériaux de construction. Les variables mesurables de la procédure d'aérocontamination ont été caractérisées. Une méthodologie d'évaluation directe du degré de contamination des surfaces, par microscopie à épifluorescence après deux marquages spécifiques des cellules bactériennes (utilisation du DAPI/CTC), a été également développée.

INTRODUCTION

La qualité de l'air à l'intérieur constitue une préoccupation croissante d'hygiène et de santé publique résultant de l'augmentation des plaintes liées à une mauvaise qualité de l'air et de l'importance désormais reconnue des facteurs environnementaux dans l'apparition de certaines affections pathologiques.

L'individu des sociétés industrialisées passe en moyenne 80 à 90 % de son temps à l'intérieur d'espaces clos, logement, transports, travail, loisirs. Les règles qui prévalent pour les locaux en matière de renouvellement de l'air s'appuient sur des critères énergétiques et tiennent compte de la présence humaine mais, faute de connaissances précises, ignorent généralement le rôle tenu par le bâtiment comme source possible de pollution de l'air par ses matériaux et ses équipements.

Omniprésents dans notre environnement, les micro-organismes (virus, bactéries, champignons...) peuvent dans certains cas avoir un rôle non négligeable sur la santé des occupants. Les micro-organismes de l'air extérieur ont trois principales origines : anthropique, aquatique et tellurique. Au sein d'un bâtiment, il faut tenir compte de deux sources. Une source exogène qui provient de l'air extérieur et pénètre dans le bâtiment par le biais des systèmes de ventilation ou par l'intermédiaire des occupants, et une source endogène qui est liée à la survie des micro-organismes dans les locaux.

La survie des micro-organismes dans les locaux est liée en partie à la colonisation des surfaces de matériaux, et si l'étude de la flore aérienne a fait l'objet de nombreux développements durant ces dernières années, une attention moindre a été apportée à la flore fixée sur les supports, compte tenu notamment de la difficulté à maîtriser les techniques d'évaluation des contaminations de surface. Cependant, de part les éléments nutritifs qu'ils procurent, les produits de construction et de décoration sont des milieux de choix pour la croissance de certains micro-organismes dans les environnements intérieurs. Le bois, la cellulose et le papier peint, les textiles ainsi que les colles et peintures sont autant d'environnements favorisant la fixation et/ou la croissance de micro-organismes. Au niveau de ces supports solides, leurs natures physicochimiques, leurs états de surface (hydrophobicité, porosité, rugosité) peuvent conditionner les phénomènes de fixation et de développement des micro-organismes.

La prévention de la contamination microbienne des bâtiments passe le plus souvent par l'optimisation de la conception et de la maintenance des systèmes de ventilation et de climatisation. Par ailleurs, la maîtrise de cette pollution dès la conception par le choix adapté de matériaux de construction et de décoration moins « réceptifs » est un élément important, rarement ou jamais pris en considération.

Quelques auteurs admettent le rôle des matériaux dans l'aérobiocontamination. Ainsi le rôle des moquettes comme réservoir de biocontaminants est reconnu depuis longtemps.

L'utilisation de matériaux adaptés à l'usage devient une préoccupation du secteur hospitalier, dans le cadre de la prévention d'infections nosocomiales. Actuellement, seules des spécificités relatives à l'usure, au poinçonnement, l'étanchéité et résistance chimique sont requises pour certains produits de construction. L'évaluation hygiénique de ces produits ne fait l'objet d'aucun référentiel. La spécificité des matériaux de construction à induire et/ou favoriser une prolifération microbienne et donc à jouer un rôle dans l'aérocontamination (avec par exemple la remise en suspension dans l'air de particules biologiques) est méconnue et doit être caractérisée.

L'objectif du travail entrepris vise l'étude de la fixation et de la survie de bactéries aéroportées sur les matériaux de construction. La démarche adoptée repose sur trois principaux points :

- * La mise au point d'un aérosol bactérien permettant de simuler une contamination microbienne aérienne des matériaux de construction,
- * Finaliser une méthode permettant d'évaluer le degré de contamination des surfaces et en particulier d'accéder aux bactéries fixées,
- * Évaluer le comportement des matériaux de construction face à la colonisation bactérienne en fonction des conditions environnementales.

La finalité de cette étude est la classification des produits de construction selon des critères de vulnérabilité à la survie et à la colonisation bactérienne.

MATÉRIELS ET MÉTHODES

Description du montage d'aérobiocontamination des surfaces

Le montage d'aérobiocontamination est constitué par un nébuliseur Collison 3 jets (A) [K.R.May, 1972] 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 coalesceur, un filtre charbon et un filtre à Très Haute Efficacité (THE).

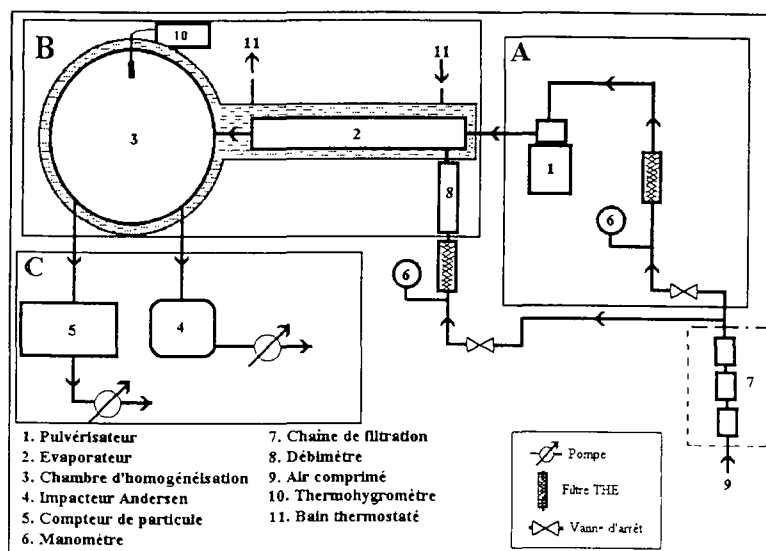


Schéma du montage d'aérocontamination

La partie (B) correspond à la chaîne de production de l'aérosol. l'aérosol humide est dilué et séché dans un évaporateur (2) avec un débit contrôlé d'air sec (8), puis pénètre dans une sphère 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 des bactéries cultivables et métaboliquement actives (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 48 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]. L'impacteur Andersen sera également utilisé pour contaminer les surfaces de matériaux. Un compteur optique (Laser-X, société Instrumat) mesure le diamètre optique (0.12 à 3µm) et le nombre des particules biologiques aérosolisées. Le débit de prélèvement du compteur est de 9.5 cm³/sec. L'ensemble du montage fonctionne en dynamique, les débits sont équilibrés de façon à effectuer des prélèvements isocinétiques. Enfin, par mesure de sécurité, l'ensemble du montage est placé sous une hotte à flux laminaire (Scupcrisis 1127, ESI Flufrance) [Robine E. et al. 1996]

Les micro-organismes utilisés

Les essais ont été réalisés avec une souche de Collection de l'Institut Pasteur *Pseudomonas fluorescens* 56.90, conservées à 4°C, sur gélose inclinée (trypto caséine soja). De façon à fixer l'effet des conditions de culture sur la viabilité des cellules aérosolisées, les souches subissent trois subcultures sur gélose avant chaque utilisation. Les colonies sont obtenues après 24 heures à 25°C. Les colonies bactériennes sont mises ensuite en suspension dans 20 ml d'une eau déionisée filtrée. La concentration finale est mesurée par dénombrement en microscopie à épifluorescence, automatisé par un système d'analyses d'images. Le fluorochrome utilisé est le 4',6-Diamidino-2-phényl-indole (DAPI, Sigma).

Évaluation de la contamination de surface

Après impaction des micro-organismes sur le matériau, l'évaluation de la contamination de surface s'effectue par une observation directe au microscope à épifluorescence.

Les bactéries fixées sur la surface inerte sont mises en contact avec le 5-cyano 2-3 ditolyl tetrazolium chloride (CTC). Les micro-organismes métaboliquement actifs forment un cristal de formazan visible au microscope. Dans un second temps, une coloration au DAPI est effectuée, elle permet d'évaluer la totalité des micro-organismes sur la surface (photo 1 et 2).

$$\% \text{ de bactéries CTC}(+) = \left(\frac{N_{\text{cristaux}}}{N_{\text{Dapi}}} \right) \times 100 \quad (1)$$

Le pourcentage des cellules métaboliquement actives s'évalue par comptage assisté par un système d'analyse d'image. Sur un même champ microscopique, les cristaux intracellulaires et les cellules colorées au DAPI (1) sont comptés [soumis à publication dans *Journal of microbiological methods*].



Photo 1 : contamination d'une surface inox par *Pseudomonas fluorescens*, coloration DAPI x100

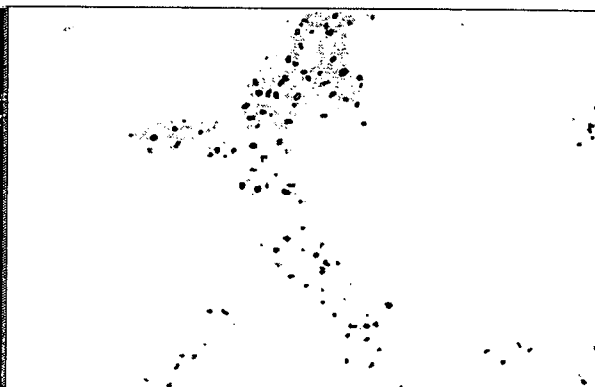


Photo 2 : même champs microscopique que la photo 1, utilisation d'un filtre permettant la visualisation des cristaux de formazan

RÉSULTATS ET DISCUSSIONS

Influence de la durée de nébulisation sur la viabilité des cellules bactériennes

Il s'agit d'évaluer la létalité occasionnée par l'action du nébuliseur en fonctionnement. L'activité métabolique de *Pseudomonas fluorescens* est évaluée avant et après 20 minutes de nébulisation. Un témoin de la suspension bactérienne gardé 20 minutes sur la paillasse a été également réalisé.

Après 20 minutes de nébulisation, près de 43% des cellules initialement introduites dans le flacon du nébuliseur ne sont plus métaboliquement actives. Le témoin paillasse donne un résultat similaire. La principale source de stress bactérien est donc lié à la pression osmotique du milieu (hypotonique) et non pas exclusivement à l'action mécanique du nébuliseur en fonctionnement. Afin de limiter cette létalité, la suspension est préparée extemporanément et utilisée sur une période n'excédant pas 5 minutes.

Influence de l'âge de la culture bactérienne

Nous avons recueillis, pour préparer l'inoculum initial, des colonies de *Pseudomonas fluorescens* sur différents milieux de 24h, 43h, 73h, 91h de culture. Nous avons observé, pour chaque suspension, le profil granulométrique de l'aérosol (figure 1) ainsi que l'activité métabolique des cellules sur la surface en verre (figure 2).

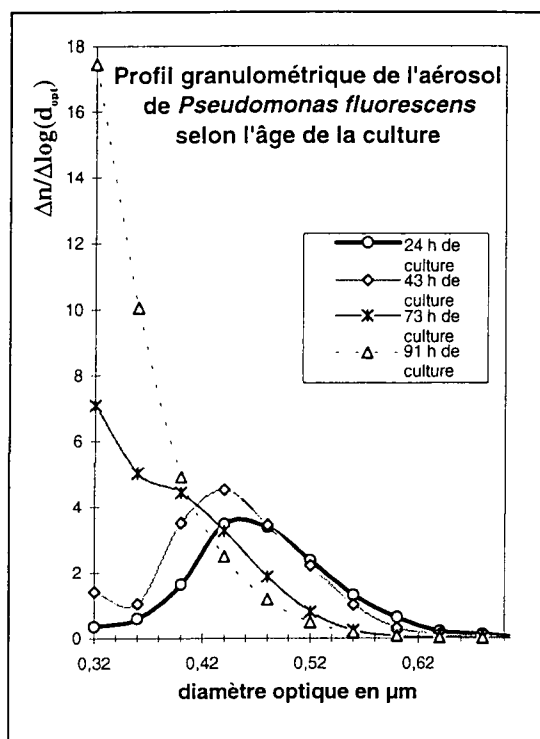


figure 1 : profil granulométrique de quatre aérosols de *Pseudomonas fluorescens* issus de quatre temps de culture différent.

Le diamètre optique moyen observé pour l'aérosol de *Pseudomonas fluorescens* issu d'une culture de 24 heures est de 0,47μm. Ce résultat semble s'accorder avec une étude réalisé sur cette même souche bactérienne par Terzieva *et al.* 1995.

Plus la culture est âgée et plus la proportion des particules comprises entre 0,32 et 0,40 μm augmente. Ces particules sont vraisemblablement des fragments bactériens. Les cellules bactériennes les plus âgées seraient les plus sensibles à la procédure de génération .

Ces différents aérosols bactériens ont été échantillonnés dans les mêmes conditions à l'aide de l'impacteur Andersen à 1 étage auxquels nous avons substitué le traditionnel milieu de culture par une lame de verre. Une fois les particules bactériennes déposées sur cette surface inerte, nous avons évalué l'activité métabolique des cellules déposées (figure 2).

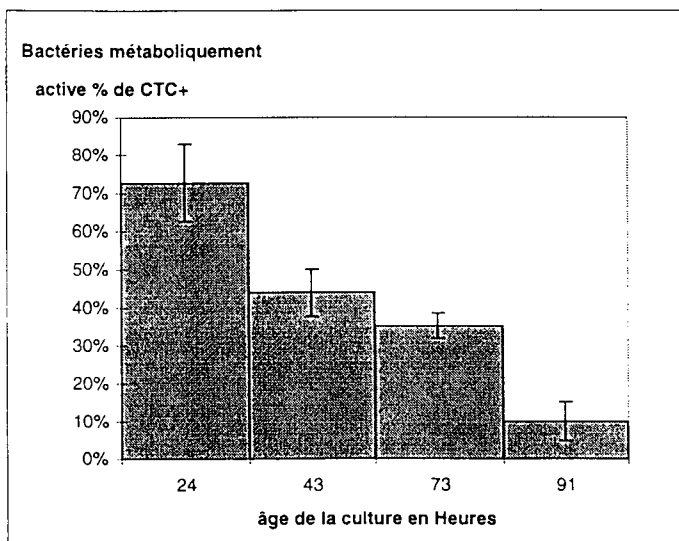


figure 2 : Évaluation de l'activité métabolique des cellules bactériennes sur une surface en verre selon l'âge de la culture bactérienne

L'activité métabolique des cellules sur le matériau baisse proportionnellement avec l'âge de la culture. La fragilité des cellules observée dans l'air à l'aide du compteur optique est en accord avec les résultats obtenus sur la surface en verre. La plus forte proportion de bactéries ayant une activité respiratoire (72% ± 10) est atteint avec la souche de 24 heures. Pour une souche de 91 heures, l'activité métabolique n'est plus que résiduelle avec 10% ± 5 de bactéries CTC(+).

Influence de la concentration bactérienne dans le nébuliseur et de la concentration particulaire en fonction de la contamination de surface

Afin de contrôler au mieux la contamination de surface nous avons relié les différentes variables observables du système. Ces variables étaient la concentration bactérienne initiale (Bact/ml), la concentration en particules biologiques aérosolisées (Part/cm³) et enfin la concentration bactérienne par unité de surface (Bact/cm²) pour un échantillonnage constant de 28.3 dm³ d'air au niveau de l'impacteur (figure 3). Nous avons constaté une relation linéaire entre ces différentes mesures. Il existe également une relation linéaire entre le volume prélevé et la contamination de surface et ceci jusqu'à un volume de 141.5 dm³ (figure non présentée). Ces différentes relations linéaires nous permettent un contrôle et un ajustement précis de la contamination de surface (schéma fonctionnel 2).

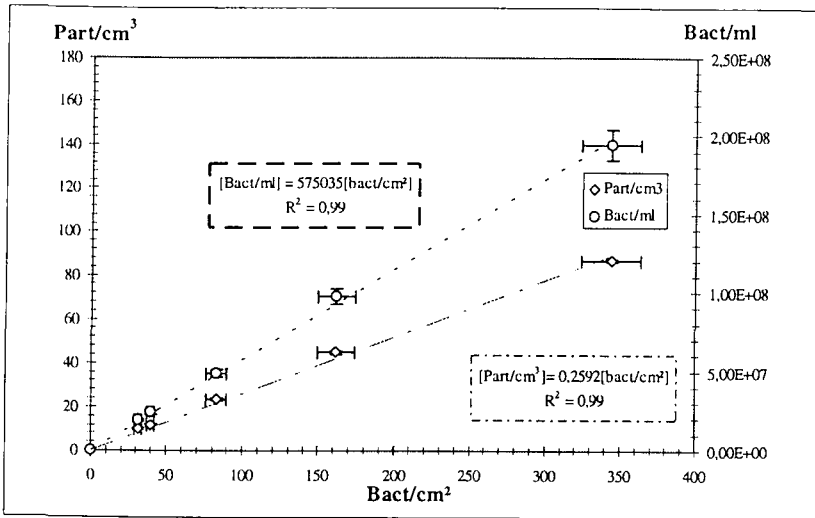


figure 3 : Particules bactériennes aérosolisées et concentration du *Pseudomonas fluorescens* dans le nébuliseur en fonction de la contamination de surface.

Le schéma fonctionnel (ci-dessous) reprend succinctement les différentes variables mesurables de la procédure d'aérobiocontamination.

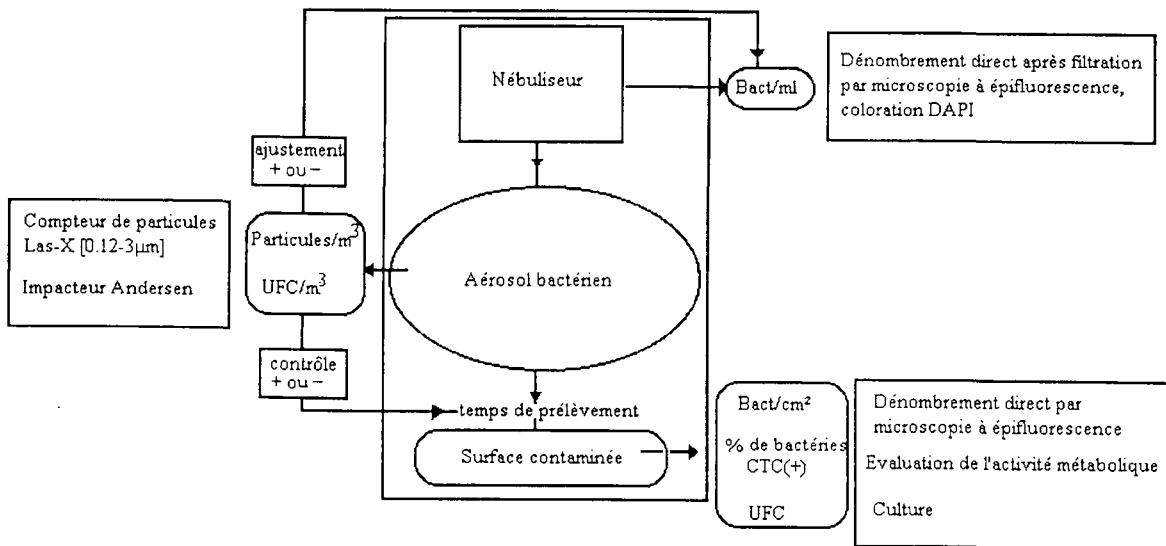


Schéma 2 : schéma fonctionnel et variables mesurables

Évaluation de l'activité métabolique des bactéries après aérobiocontamination

Afin de compléter la caractérisation de l'aérobiocontamination de surface nous avons évalué l'activité métabolique des cellules de *Pseudomonas fluorescens* fixées sur des surfaces en verre. Nous obtenons une proportion de 75,11% de cellules CTC(+) avec une incertitude de 14% (à $\alpha/2=1\%$). La procédure d'aérobiocontamination montre une bonne reproductibilité. La déshydratation des bactéries aéroportées, et l'impaction violente des cellules sur une surface solide entraîne l'inactivation de 28% des bactéries fixées.

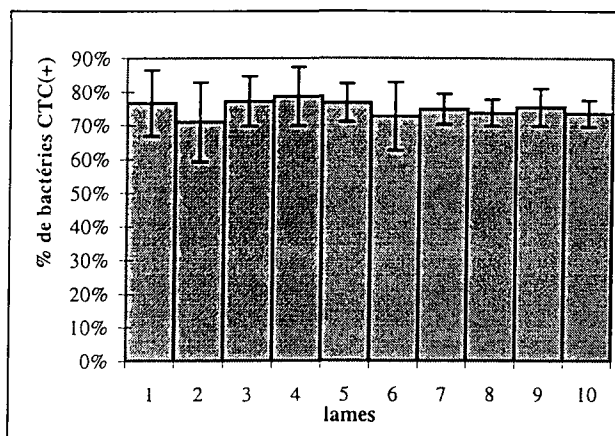


figure 4 : Etude l'activité métabolique d'un aérosol de *Pseudomonas fluorescens* déposé sur une surface en verre

CONCLUSION

Le montage expérimental permet une contamination contrôlée des surfaces par un aérosol de *Pseudomonas fluorescens*. Les variables mesurables sont reliées par des relations linéaires ce qui permet un contrôle et un ajustement précis de l'aérobiocontamination de surface. Nous avons également mis en évidence l'importance de l'état physiologique des souches avant aérosolisation. Plus la culture est âgée et plus l'activité métabolique des cellules diminue. Une culture de 24 heures présente les meilleurs résultats de survie sur la surface. L'ensemble de la procédure d'aérocontamination offre une bonne reproductibilité, les cellules de *Pseudomonas* fixées au temps zéro ont une activité métabolique de 75% avec une incertitude de 14%.

Le couplage du protocole d'aérosolisation contrôlée avec la technique de mesure de la contamination de surface pourra permettre la caractérisation de l'évolution des populations microbiennes sur les matériaux, en fonction des conditions expérimentales définies (température, humidité relative, durée d'exposition, ...). La finalité de cette vise la classification des matériaux de construction selon des critères de vulnérabilité à la colonisation.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

ANDERSEN A., « New sampler for the collection, sizing, and enumeration of viable airborne particles », *J. of Bact.*, Vol. 26, pp 481-484, 1958.

MAY K.R., « The Collison nebulizer : description, performance and application », *Aerosol Science*, Vol. 4, p. 235-243, 1973.

ROBINE E., ATTOUI M., DÉRANGÈRE D., MOREAU R., « Elaboration d'un protocole expérimental de contamination des matériaux de construction par un aérosol bactérien », Journées d'études sur les aérosols, ASFERA 1996.

TERZIEVA S., DONNELLY J., ULEVICIUS V., GRINSHPUN S.A., WILLEKE K., STELMA G.N., BRENNER P., « 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, 1996.

Application du comptage particulaire à la protection du personnel utilisant des enceintes de sécurité microbiologiques

J.C TEXTE (1), M. DESENFANT (1), M. MONTAMAT (1), M. ATTOUI (2), A. RENOUX (2)
(1) LNE Paris (2) LPATC Université Paris XII.

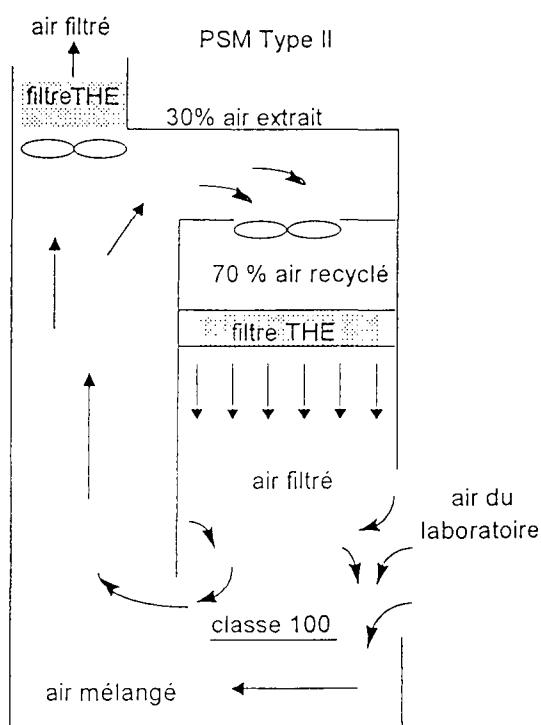
1. INTRODUCTION

De nombreux travaux de laboratoire doivent être effectués dans des enceintes de sécurité individuelles et ventilées. Parmi celles-ci figurent les postes de sécurité microbiologique (en abrégé PSM).

2. PRESENTATION DES PSM DE TYPE II

Ces PSM se répartissent en plusieurs types selon les objectifs de protection visés, mais tous doivent assurer la **protection du manipulateur**. Il est donc indispensable de disposer de méthodes fiables pour évaluer le facteur de protection du personnel.

L'un des modèles de PSM les plus répandus dans les laboratoires sont ceux de type II. Le projet de norme européenne (prEN 12469 : 1997) traitant des critères de performance pour les postes de sécurité microbiologique les décrit ainsi :

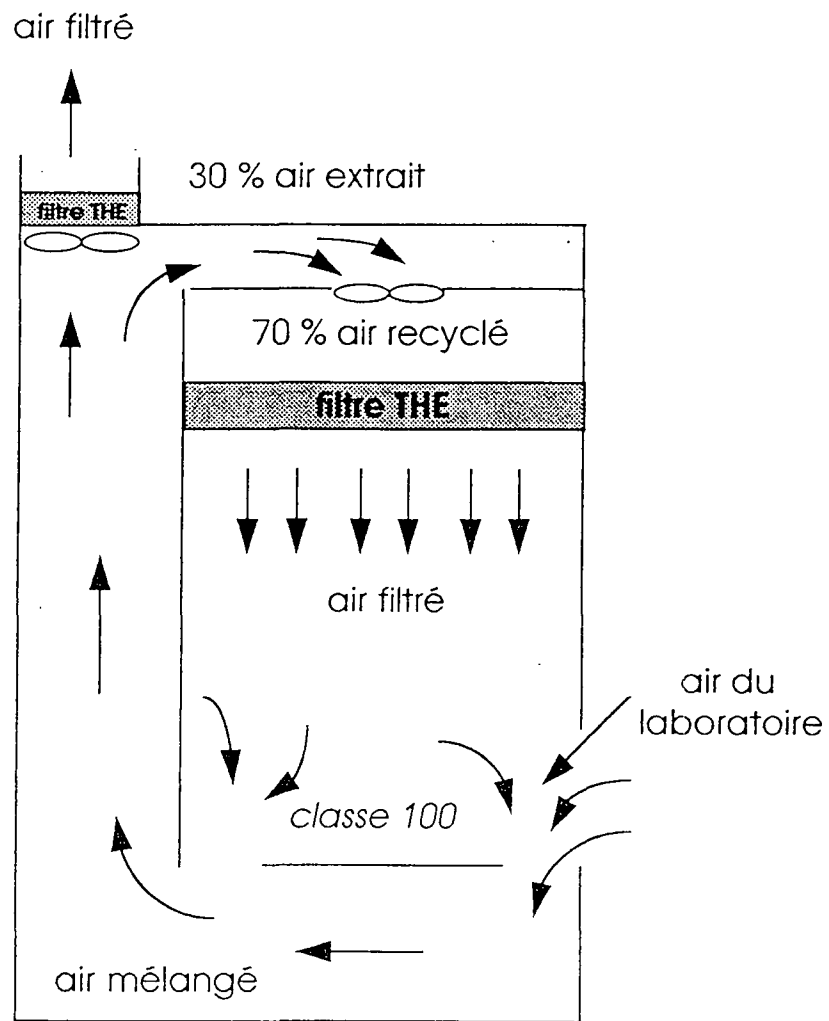


"poste de sécurité muni d'une ouverture par laquelle l'opérateur peut effectuer des manipulations à l'intérieur du poste, dans lequel le volume de travail est ventilé par un flux unidirectionnel (dit laminaire) dirigé vers le bas. Ce poste de sécurité est également construit de façon à minimiser la fuite de contamination due à des particules en suspension dans l'air, générée à l'intérieur du poste grâce à un flux dirigé vers l'intérieur du poste et passant par l'ouverture".

Ces PSM de type II sont donc caractérisés par un flux d'air filtré (EU 13 perméance compris entre 10^{-2} et 10^{-3}) de recirculation à l'intérieur du PSM qui assure la protection du produit manipulé et un apport d'air ambiant qui s'effectuant par une grille d'aspiration située sur le devant du plan de travail, crée une barrière aérodynamique entre le manipulateur et le produit qu'il manipule.

Poste de Sécurité Microbiologique

Type II



Très bonne protection du matériel,
du manipulateur et de l'environnement

Ces PSM assurent également la protection de l'environnement par la filtration de l'air extrait au travers d'un filtre du même niveau de classification (EU 13).

Ces PSM présentent, en outre, comme avantages d'être installés facilement et leur fonctionnement en recyclage ne nécessite pas obligatoirement leur raccordement à l'extérieur.

3. METHODES DE LA DETERMINATION DE L'EFFICACITE DE PROTECTION DU PERSONNEL

Les différentes méthodes de la détermination de l'efficacité de protection du personnel sont toutes basées sur la comparaison de résultats recueillis à l'extérieur du PSM, au niveau du poste de travail, avant, pendant et après la génération d'un aérosol polydispersé à l'intérieur du PSM.

La norme anglaise BS 5726 (1992) préconise l'utilisation d'un aérosol chimique d'iodure de potassium.

La norme allemande DIN 12950 (1993) prévoit la nébulisation d'une suspension de spores de bactéries non pathogènes, par exemple *Bacillus subtilis* variété *globigii* (germe banal de l'environnement).

La norme française NF X 44-201 (1984) propose la nébulisation d'une suspension bactérienne inactivée de *Lactobacillus acidophilus* (germe utilisé dans des fermentations lactiques).

4. FACTEUR DE PROTECTION

Pour que les PSM soient conformes aux méthodes anglaises et allemandes, retenues actuellement dans le pr EN 12469 il faut que le facteur de protection du personnel appelé facteur de protection d'ouverture (FPO) soit $>$ à 10^5 . Cela veut dire qu'une personne qui manipule dans un PSM de type II a un risque d'exposition 100 000 fois plus petit que si il manipule directement sur une paillasse de laboratoire.

Dans la mesure française, ce facteur de protection d'ouverture n'est pas défini. Il a donc fallu rechercher en laboratoire un critère permettant d'accepter ou de refuser un PSM en essai.

5. ANALYSE DES COMPTAGES REALISES SELON LA METHODE FRANÇAISE

5.1. DESCRIPTION DE LA METHODE FRANÇAISE (§ 8.1 DE LA NORME NF X 44-201)

L'essai doit s'effectuer dans une enceinte à empoussièremement contrôlé dont le niveau de propreté particulaire correspond à celui d'une classe 400 000 selon la norme NF X 44-101 (1981) correspondant à un numéro de classification compris entre 6 et 7 selon le pr EN 1633.1 (1993).

L'acquisition des comptages particuliers s'effectue au niveau du coude et du nez d'un mannequin placé devant le PSM (donc dans l'air ambiant) au moyen d'une sonde de prélèvement reliée à un compteur optique particulaire (COP), avant et durant et après la nébulisation de l'aérosol bactérien.

Ces comptages sont réalisés vis-à-vis des tranches granulométriques suivantes :

0,5 - 0,7 μm , 0,7 - 1,4 μm , 1,4 - 3 μm , 3 - 5 μm , > 5 μm .

On compare les moyennes particulières avant, durant et après nébulisation, afin, nous indique la norme sans donner plus de détails "d'observer éventuellement une élévation significative du taux particulaire" et sans en décrire les moyens.

Au début de l'étude, la comparaison des moyennes a été effectuée en considérant que les séries de comptages particulières, acquises au cours de l'essai, suivaient classiquement une loi Gaussienne.

5.2. EXPERIENCES SUR SITE

Les premiers essais ont été effectués sur site. Les PSM ne sont pas tous implantés dans des locaux à empoussièremement contrôlé dont le niveau est \leq à celui d'une classe 400 000, mais dans des locaux très divers, dont l'empoussièremement n'est pas forcément contrôlé et dont la concentration particulaire peut être beaucoup plus importante.

Pour que la moyenne des comptages dans l'air ambiant avant nébulisation puisse servir de référence, il faut que cet air soit d'une part le moins chargé en particules (moyenne faible) et d'autre part le plus stable possible (écart faible).

Nous avons donc été conduits à concevoir un milieu ambiant de référence en partant de l'hypothèse qu'une fuite sera d'autant mieux décelée que le milieu de référence sera plus propre. La fuite se matérialisant au cours de la nébulisation, les particules nébulisées à l'intérieur du PSM ne sont pas toutes reprises dans le volume de travail et sortent par l'ouverture de passage des bras.

5.3. REALISATION EN LABORATOIRE

Nous avons ainsi réalisé, au laboratoire, un volume d'essai d'environ 30 m³ dont le niveau de classification correspond à 2 selon le pr EN 1633.1 (1994) dans lequel nous plaçons le PSM.

La sonde du COP est installée au niveau du coude du mannequin. Nous réalisons 3 séries de comptage :

- une première avant nébulisation de l'aérosol bactérien,
- une seconde pendant la nébulisation de l'aérosol,
- la dernière après nébulisation de l'aérosol.

Nous obtenons des séries de comptages particulières avant pendant et après nébulisation de l'aérosol bactérien dont les répartitions en nombre ne suivent plus une normale mais une loi de Poisson (loi des événements rares). Les séries de comptages particulières sont donc comparées entre elles par un test statistique basé sur cette loi .

COMPARAISON STATISTIQUE DE 2 SERIES DE COMPTAGES



Hypothèse sur la répartition des valeurs.

1. Classique : loi normale



Ne convient pas pour les comptages en empoussièvements contrôlés de faibles niveaux

loi des événements rares



2. Hypothèse : loi de Poisson

Valider cette hypothèse pour le test du χ^2 sur chaque tranche granulométrique.

Exemple pratique d'adéquation des comptages à la loi de Poisson

Données

15 heures d'enregistrement au niveau du coude du mannequin pour les 5 tranches granulométriques suivantes :

C1	0,3 - 0,5 μm
C2	0,5 - 0,7 μm
C3	0,7 - 1,0 μm
C4	1,0 - 2,0 μm
C5	$\geq 2,0 \mu\text{m}$

Résultats

89 comptages rangés par classe d'effectifs C1 à C5.

* Une des propriétés de la loi de Poisson : la moyenne est égale à la variance $\bar{X} = \lambda$.

Statistiques descriptives des données

Tranches granulométriques	C1	C2	C3	C4	C5
Comptages	89	89	89	89	89
Moyenne \bar{X}	1,66	0,63	0,43	0,73	0,29
Variance λ	1,27	0,65	0,50	0,63	0,27

Test de Khi-deux d'adéquation des comptages à une loi de Poisson.

Le test est effectué pour chaque classe granulométrique.

Soient les effectifs observés (n_h obs) par classe,
La classe étant le nombre de particules par unité de volume.

Soient les fréquences calculées à partir d'une loi de Poisson de paramètre $\lambda = \bar{X}$ correspondant à un effectif théorique (n_h thé o) par classe.

On calcule

$$E = \sum_{h=1}^k \frac{(n_{\text{thé o}} - n_{\text{obs}})^2}{n_{\text{thé o}}}$$

Si les comptages suivent une loi de Poisson, on sait que E suit approximativement une loi de Khi-deux à $k-r-1$ degrés de liberté. Le nombre de degrés de liberté est égal au nombre de classes (k) diminué de $r + 1$ où r est le nombre de paramètres de la loi de Poisson c'est à dire 1.

Si E est inférieur à la valeur du Khi-deux donnée dans les tables, on accepte l'adéquation des valeurs trouvées à la loi de Poisson.

Le test d'ajustement du Khi-deux se pratique habituellement à un niveau de confiance de 95 %.

Tranches granulométriques	C1	C2	C3	C4	C5
E	4,57	0,04	2,84	0,40	*
$\chi_{0,95}^2$	7,82	3,84	3,84	3,84	*

* Impossible à mettre en oeuvre - le nombre de degrés de liberté est égal à 0.

L'adéquation des comptages particuliers à la loi de Poisson est ainsi vérifiée.

6. APPLICATION PRATIQUE DU TEST STATISTIQUE

Voici le tableau de résultats d'un essai de la détermination de l'efficacité de protection du personnel utilisant un PSM de type II non raccordé.

Les comptages ont été effectués au niveau du coude du mannequin à partir d'une ligne de prélèvements comprenant :

- un compteur optique particulaire dont le débit d'aspiration est de 1 pied cube par minute (28,3 litre/mn).
- une ligne d'échantillonnage en acétate de vinyle de 1,50 m de longueur et de diamètre intérieur 3/8 de pouce.
- une sonde conique dont le diamètre frontal de 30 mm, permet d'effectuer des prélèvements avec une vitesse de l'ordre de 0,6 m/s.

Chaque série est composée de 10 comptages d'une minute chacun dont les sommes sont indiquées dans le tableau suivant :

Déroulement de l'essai 3 séries de comptages	Tranches granulométriques en μm .					
	0,2-0,3	0,3-0,5	0,5-0,7	0,7-1,0	1-2	≥ 2
1ère série sans nébulisation S_1	12	28	10	7	10	1
2ème série avec nébulisation S_2	26	20	14	7	15	3
3ème série après nébulisation S_3	10	18	8	2	7	0

On utilise la table extraite de biométrie Tables for Statisticians (1966) E.S Pearson and H.O Hartley.

Soient a et b , deux comptages distribués indépendamment selon des lois de Poisson.

Appelons b , le plus petit des deux comptages relevés.

Notons r , la somme des deux comptages ($r = a + b$)

Pour r lu dans la table, si b est inférieur ou égal à la valeur critique associée, b est significativement différent de a avec un niveau de confiance de 95 %.

Dans l'exemple pratique on compare entre elles les sommes des séries de comptages effectués avant, pendant et après la nébulisation de l'aérosol bactérien.

Interprétation des résultats

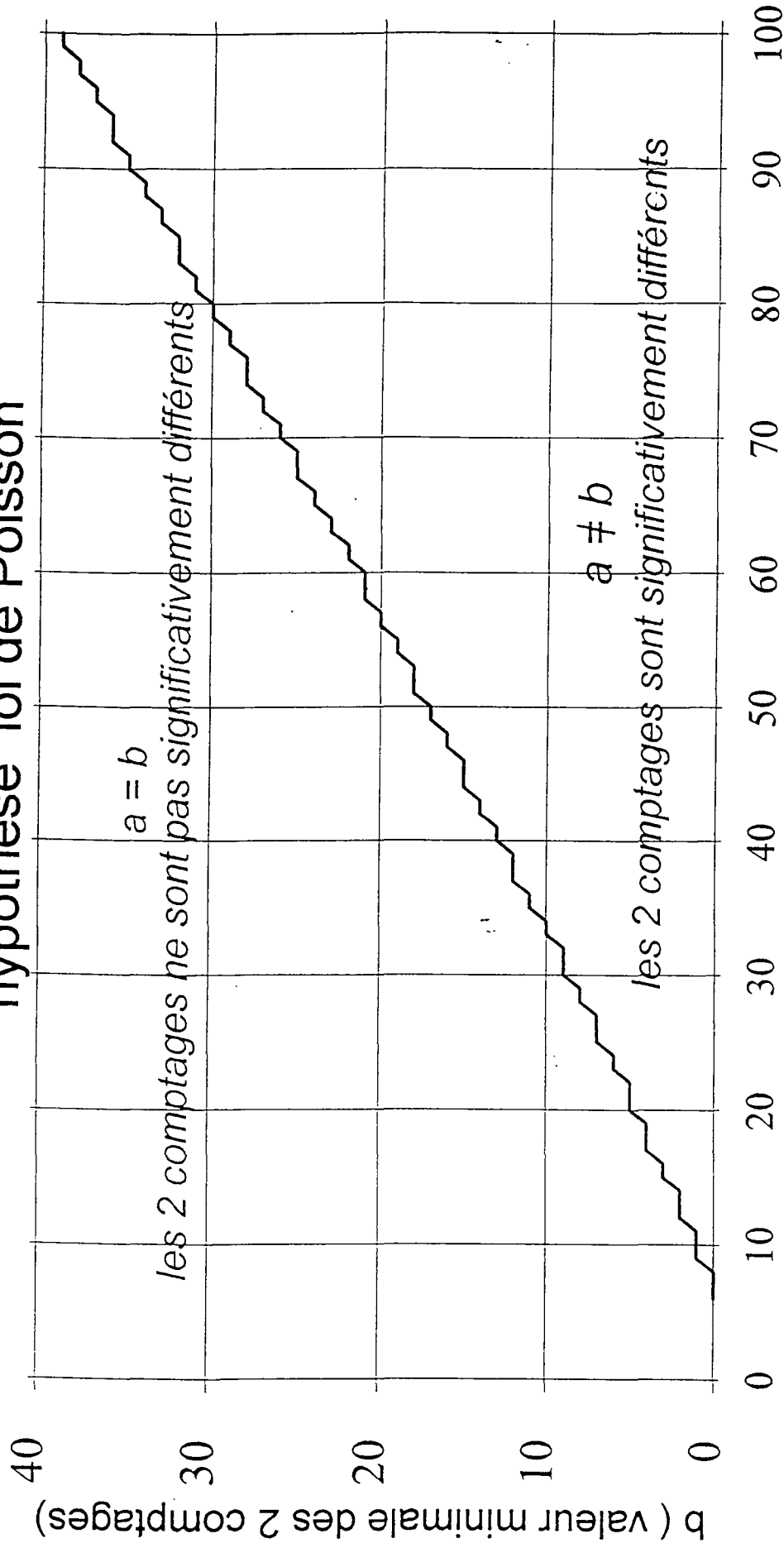
	Tranches granulométriques en μm .					
	0,2-0,3	0,3-0,5	0,5-0,7	0,7-1,0	1-2	≥ 2
<i>Avant et pendant la nébulisation de l'aérosol bactérien</i>						
$r = S_1 + S_2$	38	48	24	14	25	4
$b = \min . (S_1, S_2)$	12	28	10	7	10	1
Valeur critique de b	12	16	6	2	7	-
Conclusion	S	NS	NS	NS	NS	NS
<i>Pendant et après la nébulisation de l'aérosol bactérien</i>						
$r = S_2 + S_3$	36	38	22	9	22	3
$b = \min . (S_2, S_3)$	10	18	8	2	7	0
Valeur critique de b	11	12	5	1	5	-
Conclusion	S	NS	NS	NS	NS	NS

NS : non significativement différent

S : significativement différent

Valeur critique pour tester l'égalité de 2 comptages

hypothèse loi de Poisson



$r = a + b$ (somme des 2 comptages)

7. CONCLUSION

Le volume de travail des postes de sécurité microbiologique peut être assimilé à une enceinte à empoussièremement contrôlé dont la classe de propreté particulaire correspond à un niveau de classification compris entre 0 et 1.

Dans de telles enceintes la répartition particulaire ne correspond pas à celle-ci d'une distribution Gaussienne mais plutôt à celle d'une répartition de Poisson.

Nous avons appliqué le test statistique de la différence entre deux variables de Poisson à l'obtention de la marque NF/PSM pour laquelle nous avons parallèlement décalé le spectre granulométrique initialement donné dans la norme NF X 44-201 vers les fines particules (0,3 - 0,5 μm , 0,5 - 0,7 μm , 0,7 - 1 μm , 1 - 2 μm , > 2 μm).

Nous notons que nous pouvons encore décaler le spectre granulométrique vers les particules de plus faible diamètre encore. Ainsi, dans l'exemple pratique il apparaît une fuite pour les particules $\leq 0,3 \mu\text{m}$.

L'analyse statistique présentée ici, pourrait être étendue à d'autres domaines tel que des enceintes à empoussièremement contrôlé de faible volume pour la différenciation entre deux comptages particulaires.

**APPLICATION PRATIQUE D'UN TEST
PERMETTANT DE COMPARER 2 SERIES DE
COMPTAGES SUIVANT
UNE LOI DE POISSON**

**Données
comptages particulières**



Outils

Avant



Table statistique

Pendant } Nébulisation



Valeur critique

Après



Ce test met en évidence une éventuelle fuite du PSM en
essai dans un milieu propre.



Ce test pourrait être étendu à d'autres domaines.



Exemple : différenciation de 2 comptages particuliers dans
une enceinte propre.

Étude des transferts de contamination par voie aérienne lors d'opérations de nettoyage.

F. GIL¹, P. MULCEY², P. GARRY³, J.L. VENDEUVRE³

¹DESS Sciences des aérosols, Génie de l'aérobiocontamination, Université Paris XII CRETEIL.

²SEIP-CEA, 91400 SACLAY.

³CTSCCV, 7, avenue du général de Gaulle 94700 MAISONS-ALFORT.

Lors des opérations de nettoyage dans les I.A.A. des aérosols peuvent être générés. Ces aérosols peuvent être des vecteurs de transfert de contamination. Nous avons, au cours de ce travail, étudié la répartition de l'eau utilisée lors d'opérations de nettoyage réalisées.

Le local choisi pour cette étude est une salle de saumurage d'une entreprise de salaison dont les caractéristiques étaient les suivantes : volume 330 m³, surface au sol 106 m², hauteur 3,10 m, parois en inox et sol en résine. La distribution de l'eau dans le local a été suivie par marquage à la fluorescéine sodée (ou uranine). Nous avons par ailleurs réalisé des mesures thermométriques et hygrométriques.

Les vitesses de dépôt de l'eau sont globalement plus faibles pour le lavage que pour le rinçage et que le point de prélèvement est élevé. En ce qui concerne les appareils testés, il ne semble pas y avoir de différence significative sur le plan de la production d'aérosols entre les lances 45 et 30 bars. Ces deux appareils sont les plus importants générateurs d'aérosols. Par contre, la rampe multi-buses et l'autolaveuse ont des productions d'aérosols très faibles. De plus, l'atmosphère est rapidement saturée en humidité et la température augmente rapidement, surtout lorsque la ventilation est réglée à 5 renouvellements par heure. La plus grande partie de l'eau utilisée est retrouvée au niveau des égouts et des condenseurs des batteries de climatisation.

Les moyens mis en oeuvre au cours de cette étude ont donc permis de réaliser le bilan de la répartition de l'eau au travers d'un local. On notera notamment que la méthode de traçage à la fluorescéine sodée couplée avec le recueil de dépôts sur lames porte-objet est d'une très grande sensibilité pour un coût extrêmement faible et d'une bonne fiabilité.

Comparaison de l'évolution de la perte de charge d'un filtre à fibres lors de la filtration de particules solides et liquides. Modélisations.

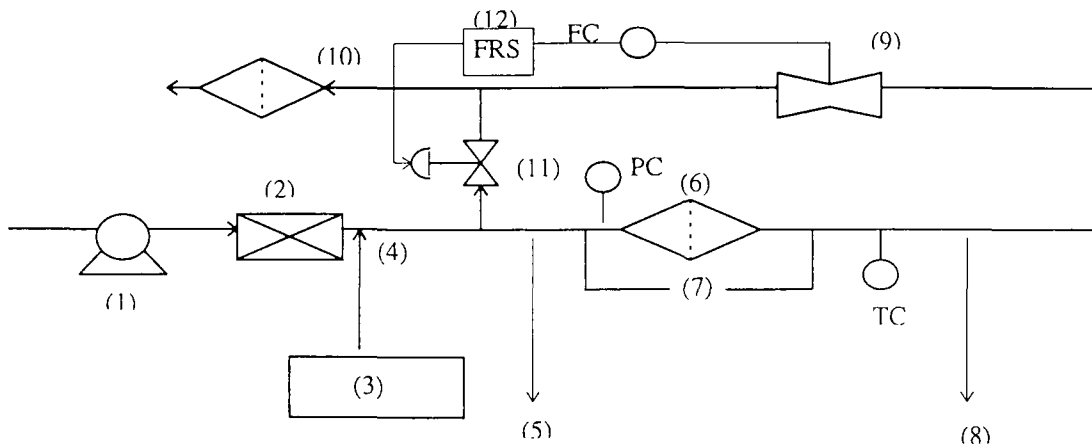
PENICOT P., THOMAS D., CONTAL P., LECLERC D.
 LSGC-CNRS / Université Henri Poincaré
 1, rue Grandville
 54000 NANCY

VENDEL J,
 CE Saclay-DPEI-SERAC
 91191 Gif-sur-Yvette

La lutte contre la pollution et la protection de l'environnement ont guidé les recherches vers la filtration des particules polluantes : le filtre à fibres est généralement le moyen le plus couramment utilisé afin de purifier les effluents industriels. Les questions soulevées par ce type de séparation sont relatives à l'évolution de la perte de charge à-travers le filtre et de son efficacité tout au long du colmatage par les particules. Quelques études ont déjà été menées [1], [2], [3] mais elles concernent surtout la filtration de particules solides, peu d'intérêt ayant été porté aux particules liquides [4]. Notre étude porte sur la filtration d'un aérosol solide et d'un aérosol liquide. Notre approche dans ces expériences a été dans un premier temps, de mesurer l'augmentation de la perte de charge puis d'observer au microscope électronique à balayage la façon dont les particules se déposent à différents instants du colmatage. Nous avons également étudié l'influence de différents paramètres tels que la vitesse de filtration, la granulométrie de l'aérosol et sa concentration. Un modèle prédictif a été établi pour chaque type d'aérosol. La modélisation de la filtration par un aérosol solide est fondée sur la distinction dans chaque tranche du filtre de deux types de collecteurs: les fibres vierges et les dendrites. La modélisation de la filtration par un aérosol liquide repose sur l'hypothèse du diamètre de fibre croissant au cours du colmatage.

1. Expériences réalisées

1.1 Montage expérimental



1. Compresseur	5. Système de prélèvement amont	9. Débitmètre massique
2. Sécheur d'air	6. Porte-filtre	10. Filtre de sortie
3. Générateur d'aérosol	7. Capteur de pression différentielle	11. Vanne électro pneumatique
4. Introduction de l'aérosol	8. Système de prélèvement aval	12. Système de régulation de débit

Figure 1 : Montage expérimental

Comme le montre la figure 1, le montage expérimental est constitué d'un générateur d'aérosol, un porte-filtre, un sécheur d'air, un débitmètre massique et deux systèmes de prélèvement en amont et en aval du filtre. La température et la pression sont contrôlées en différents points de l'installation. De l'air de dilution peut être introduit en amont du filtre afin de tester l'influence de la concentration. La vitesse de filtration peut être modifiée par dérivation d'une partie du débit à l'aide d'un by-pass. Celle-ci est maintenue constante grâce à un système de régulation de débit. La perte de charge à travers le filtre est mesurée par un capteur de pression différentielle. Un ordinateur permet l'acquisition des données.

L'aérosol solide généré est de l'uranine obtenu grâce à une solution de fluorescéine sodée de concentration 10 ou 100 g/l. L'aérosol liquide est du Dioctylphtalate (DOP). Les particules solides et liquides sont, dans les deux cas, générées par un système de nébulisation, l'aérosol solide nécessitant en plus une phase de séchage. La distribution granulométrique des particules a été mesurée par un Differential Mobility Particle Sizer et semble suivre une loi log-normale de diamètres médians massiques : 0,18 μm et 0,31 μm pour l'uranine et 0,6 μm pour le DOP. Le tableau 1 résume les caractéristiques de l'aérosol généré.

	Particules d'uranine		Particules de DOP
	10 g/l	100g/l	
Concentration de l'aérosol généré	3.5 mg/Nm ³	15 mg/Nm ³	3.5 g/Nm ³
Diamètre médian massique (μm)	0.18	0.31	0.6
Ecart type	1.78	1.8	1.46

Tableau 1 : Caractéristiques de l'aérosol généré

Le filtre utilisé pour nos expériences est un filtre Très Haute Efficacité (THE) constitué d'un enchevêtrement de fibres de verre. Ses caractéristiques sont détaillées dans le tableau 2.

Épaisseur (μm)	575 (± 50)
Compacité	0.0559 (± 0.0060)
d_{Davies} (μm)	1.14 (± 0.14)

Tableau 2 : Caractéristiques du filtre utilisé

Le diamètre de Davies d_{Davies} indiqué dans le tableau est une valeur calculée du diamètre obtenue grâce à l'équation de Davies [5] suivante:

$$\frac{\Delta P}{Z} = 16 \mu U_0 \frac{\alpha^{3/2} (1 + 56\alpha^3)}{r_f^2} \quad (1)$$

où Z , α , r_f et U_0 sont respectivement l'épaisseur, la compacité du filtre, le rayon des fibres et la vitesse de filtration en fût vide.

1.2 Description des expériences

La manipulation consiste donc à suivre en maintenant constante la vitesse de filtration, l'évolution de la perte de charge du filtre au cours du colmatage ainsi que celle de l'efficacité par le biais de différents prélèvements en aval du filtre. Nous ne discuterons pas ici de l'évolution de ce paramètre qui est de l'ordre de 99.99% dès le début des expériences. Nous avons, pour chaque manipulation, fait varier différents paramètres tels que la vitesse de filtration, la taille de l'aérosol, sa concentration.

Aussi, pour chaque manipulation, plusieurs essais sont réalisés. Un premier essai consiste à filtrer jusqu'à obtention d'une perte de charge relativement importante (de l'ordre de 7000 à 10000 Pa). Les essais suivants vont consister à reproduire la même manipulation mais avec des temps de filtration différents. Ceci va permettre d'une part de vérifier la bonne reproductibilité des résultats, d'autre part de faire des observations au microscope de chacun des essais (afin de visualiser l'évolution du dépôt au cours du colmatage) et enfin, par pesée du filtre de chacun des essais, d'obtenir l'expression de l'équation $m/s=f$ (temps de filtration) où m/s est la masse d'aérosol déposée par unité de surface du filtre.

2. Résultats

2.1 Evolution de la perte de charge et de l'allure du dépôt durant le colmatage

Dans le cadre de la filtration des particules solides, toutes les courbes $\Delta P=f(m/s)$ (figure 2) obtenues montrent dans un premier temps une lente progression de la perte de charge, puis une zone intermédiaire finalement suivie par une augmentation plus rapide et linéaire.

Les observations au microscope (figures 3 A-B-C) semblent indiquer un dépôt en profondeur dans la première partie de la courbe alors que dans la partie linéaire, le dépôt semble se faire plutôt dans les premières couches du filtre. En fait, lors du colmatage, le dépôt est tout d'abord formé de dendrites collées sur les fibres dans la profondeur du filtre (figure 4a). Puis, les dendrites vont constituer de nouvelles fibres capturant de nouvelles particules. Les dendrites vont alors se rencontrer les unes avec les autres jusqu'à former un tapis masquant les fibres initialement vierges. La filtration a alors lieu en surface et le dépôt est sous forme de gâteau (figure 4b).

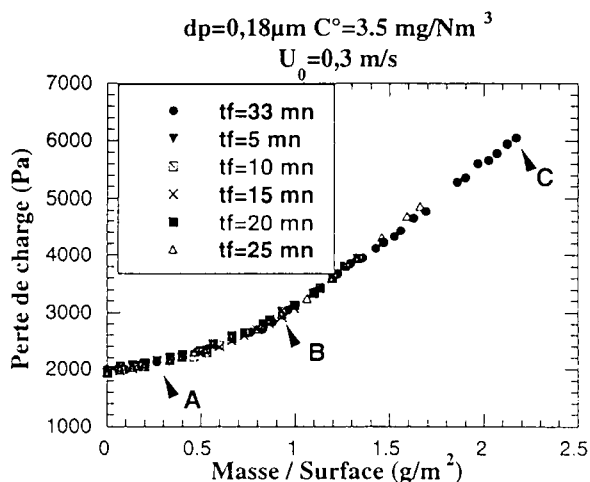


Figure 2 : Evolution de la perte de charge durant le colmatage par l'aérosol d'uranine

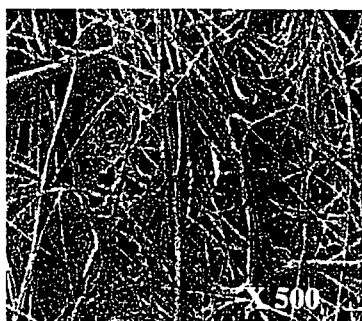


Figure 3A: Dépôt pour $t_f=5\text{mn}$



Figure 3B: Dépôt pour $t_f=15 \text{ mn}$



Figure 3C: Dépôt pour $t_f=33\text{mn}$

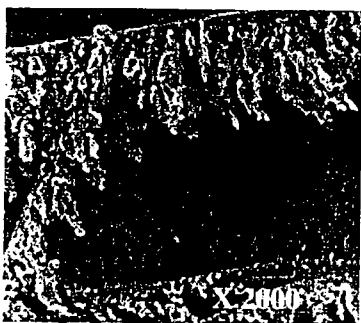


Figure 4A: Formation de dendrites

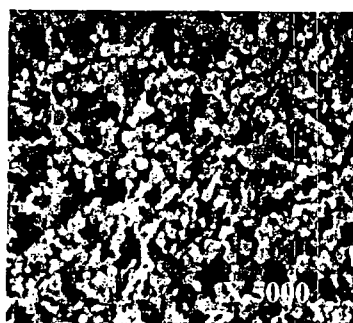


Figure 4B: Formation d'un gâteau de particules

Le colmatage par des particules liquides se fait un peu différemment. Cependant nous distinguons également deux étapes relatives à l'évolution de la perte de charge. Comme le montre la figure 5, la première phase est caractérisée par une lente augmentation linéaire de la perte de charge suivie d'une deuxième phase où la croissance devient exponentielle. Nous appellerons « point de colmatage » la valeur de la masse déposée correspondant à cette brusque montée de la perte de charge. Les observations au microscope électronique de filtres en début et en fin de colmatage nous montrent respectivement des perles déposées autour des fibres (figure 6A) et un film recouvrant l'ensemble des fibres (figure 6B). Ainsi en fin de colmatage, tous les interstices entre fibres sont comblés laissant peu de passage au gaz filtré ce qui explique la montée exponentielle de la perte de charge.

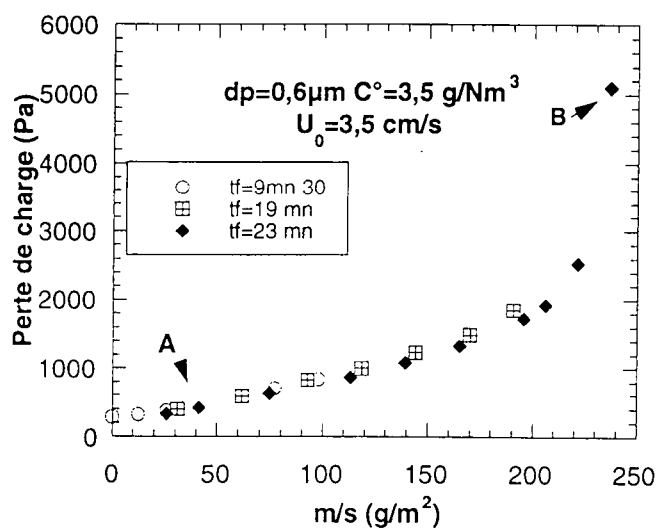


Figure 5: Evolution de la perte de charge durant le colmatage par l'aérosol de DOP

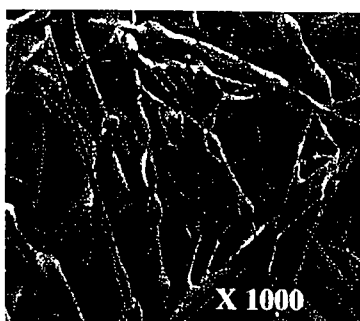


Figure 6A: Dépôt sous forme de perles

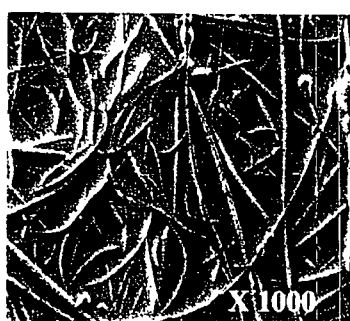


Figure 6B: Dépôt sous forme de film

2.2 Comparaison entre la filtration de particules solides et de particules liquides

Comme le montre la figure 7, pour une même masse déposée et des conditions opératoires identiques, la perte de charge engendrée par la filtration de particules solides est largement supérieure à celle engendrée par des particules, l'écart entre les courbes étant bien trop important pour être attribué uniquement à l'effet de la taille de l'aérosol. Ce résultat s'explique par le fait que les dendrites pouvant être considérées comme de nouvelles fibres offrent une résistance à l'air supérieure que des gouttelettes présentes dans le filtre.

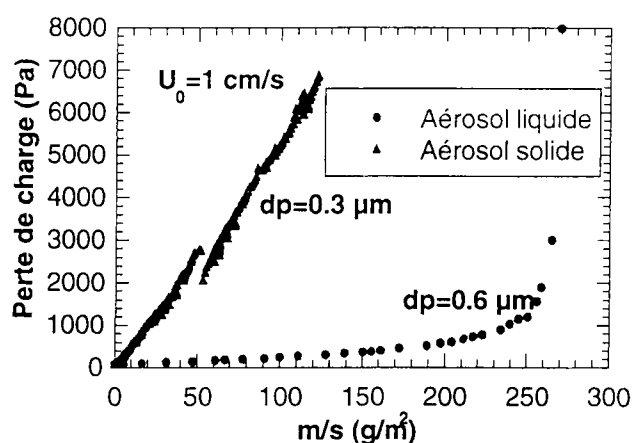


Figure 7: Comparaison de l'évolution de la perte de charge pour des particules solides et liquides.

2.3 Influence des conditions opératoires

2.3.1 Influence de la vitesse de filtration

Nous avons porté sur un même graphique le rapport $\Delta P/U_0$ en fonction de la masse déposée pour toutes les valeurs de vitesses testées. On constate (voir figures 8 et 9) que quel que soit le type d'aérosol, toutes les courbes sont superposées. Ce résultat indique que la manière dont les particules se déposent sur les fibres est indépendante de la vitesse de filtration (sur la gamme de vitesses testées).

2.3.2 Influence de la concentration de l'aérosol

Sur notre banc d'essais, la concentration varie dans la plage 5 mg/Nm^3 et 15 mg/Nm^3 pour l'uranine et dans la plage 0.3 g/Nm^3 et 3.5 g/Nm^3 pour les particules liquides. Dans cette gamme de concentration, aucune influence n'a été constatée aussi bien pour les particules liquides que pour les particules solides.

2.3.3 Influence de la taille moyenne des particules

Nous ne pouvons discuter à l'heure actuelle que de l'influence de la taille pour les particules solides puisque les deux granulométries centrées autour de $0.18 \mu\text{m}$ et $0.31 \mu\text{m}$ ont été comparées. Dans tous les cas, nous avons constaté une perte de charge moindre pour les plus grosses particules. Ce résultat peut s'expliquer par le fait que les plus grosses particules ont une surface spécifique moindre ce qui selon la loi de Kozeny entraîne une perte de charge plus faible.

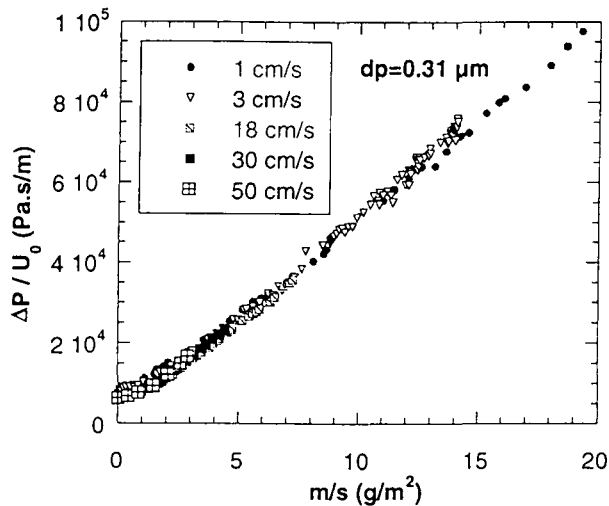


Figure 8: Influence de la vitesse lors de la filtration de particules d'uranine

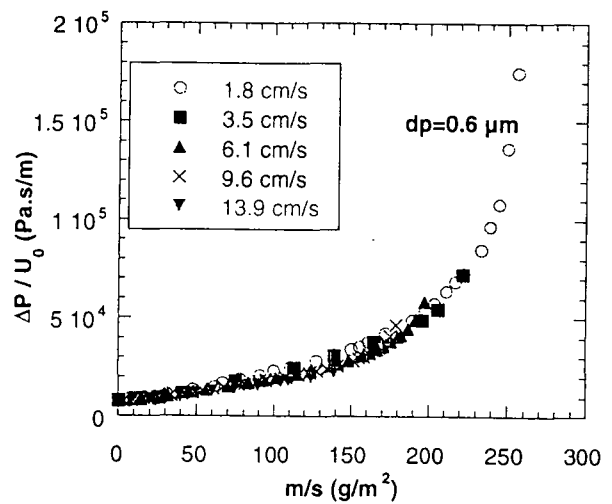


Figure 9: Influence de la vitesse lors de la filtration de particules de DOP

3. Modèles

3.1 Modèle de filtration des particules solides.

Ce modèle a été développé par Thomas et al.[6], [7] et repose sur l'hypothèse que toutes les particules collectées forment des dendrites pouvant être considérées comme de nouvelles fibres collectrices. Ainsi, le filtre est divisé en plusieurs tranches qui sont supposées être chargées uniformément par l'aérosol. Pour chaque pas de temps et chaque tranche, l'efficacité de collection des fibres et des dendrites est calculée selon des modèles existants. Connaissant la distribution granulométrique de l'aérosol en amont du filtre, on détermine la masse déposée dans chaque tranche, la compacité des particules déposées et le diamètre des nouvelles fibres. La perte de charge de chaque tranche est calculée selon le modèle de Bergman [8] et la perte de charge globale est obtenue en faisant la somme sur toutes les tranches. Le calcul est mené ainsi pour chaque incrément de temps. La figure 10 montre la comparaison de nos points expérimentaux au modèle pour différentes valeurs de la vitesse et les deux granulométries. On constate un très bon accord dans le cas des particules de $0.18 \mu\text{m}$ surtout dans la première étape de la filtration. Ce résultat est dû au fait que le modèle repose sur l'hypothèse d'une filtration en profondeur ce qui n'a été constaté qu'en début de colmatage. Dans le cas des particules de $0.31 \mu\text{m}$, l'accord est moins bon étant donné que l'aérosol est moins pénétrant et favorise une filtration plus en surface.

3.2 Modèle de filtration des particules liquides.

Le modèle repose sur l'hypothèse que le diamètre des fibres et la compacité du filtre augmentent au cours du colmatage. On calcule alors la perte de charge du filtre grâce à la loi de Davies en utilisant les expressions suivantes pour la compacité et le rayon des fibres du filtre colmaté:

$$\alpha = \alpha_0 + \frac{m_L}{\rho_L Z S} \quad \text{et} \quad r_f' = r_f \sqrt{1 + \frac{m_L}{\alpha_0 \rho_L S Z}} \quad [4]$$

Les points expérimentaux de différentes expériences ont été comparés au modèle comme l'illustre la figure 11. Nous pouvons noter un très bon accord pour le premier stade du colmatage.

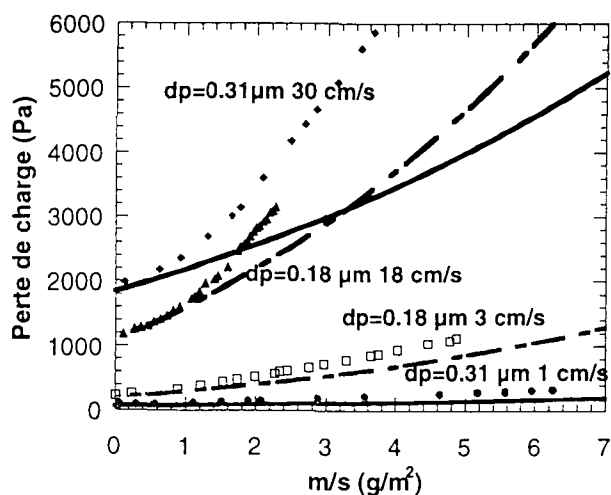


Figure 10: Comparaison modèle et expériences pour l'aérosol solide

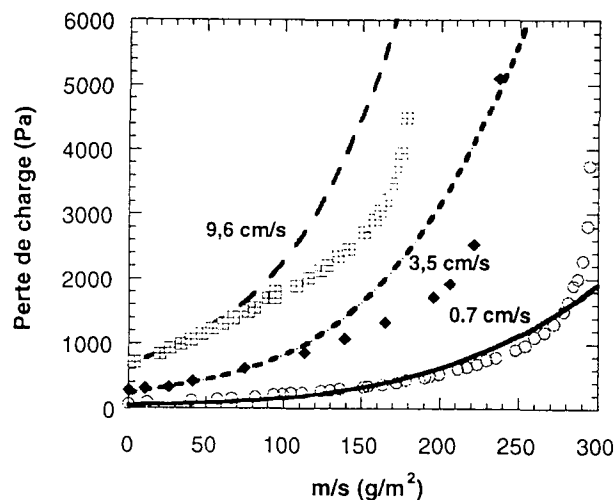


Figure 11: Comparaison modèle et expériences pour l'aérosol liquide

L'écart entre le modèle et les points expérimentaux devient en général plus important à partir d'une masse déposée correspondant à la moitié du point de colmatage. Ces résultats corroborent bien nos observations au microscope du filtre colmaté puisque uniquement en début de filtration, le dépôt est sous forme de gouttelettes. L'hypothèse du diamètre de fibre croissant n'est donc validé qu'en début de colmatage. Des tentatives de modélisations de la perte de charge lorsqu'un film recouvre la surface du filtre sont actuellement en cours.

Ainsi, nous avons étudié et comparé le colmatage d'un filtre à fibres par un aérosol liquide et solide. Nous avons également pour chacun d'eux, comparé les résultats expérimentaux à un modèle. Le modèle relatif à l'aérosol solide reposant sur l'hypothèse d'un dépôt en profondeur semble validé pour les premiers instants du colmatage. De même un bon accord a été constaté entre le modèle de filtration de l'aérosol liquide et les points expérimentaux pour le début du colmatage correspondant au domaine de validité de l'hypothèse du diamètre de fibre croissant. Nos efforts se portent actuellement sur la modélisation de la fin du colmatage.

Références

1. Lee-Liu, Aerosol Sci. Tech., 1 (1982) 147
2. Stechkina, Proc. Acad. Sci., 167 (1966) 263
3. Miecret, Gustavson, Publication ASPEC, Contaminexpert, Versailles (1989)
4. Gougeon, Thèse de l'Université de Paris XII (1994)
5. Davies, in Air Filtration, ed Academic Press, London, New-York (1973), p.36
6. Thomas, Renaudin, Contal, Leclerc, Vendel, 7th World Filtration Congress, Budapest (1996)
7. Thomas, Renaudin, Pénicot, Contal, Leclerc, Vendel, 6e Congrès Français de Génie des Procédés, Paris, (1997)
8. Bergman, Taylor, Miller, Progress Report, Lawrence Livermore Laboratory, California (1976)

Nomenclature

d_p	Taille des particules (m)	d_{Davies}	Diamètre des fibres calculé selon la loi de Davies (m)
G	Grammage du filtre (kg/m^2)	$m/s, m_L/S$	Masse par unité de surface (solide, liquide) (kg/m^2)
r_f	Rayon de la fibre (m)	r_f'	Rayon de la fibre du filtre colmaté (m)
S	Surface du filtre (m^2)	t_f	Temps de filtration (s)
U_0	Vitesse de filtration (m/s)	Z	Épaisseur du filtre (m)
α_0, α	Compacité du filtre vierge et colmaté	ρ_L	Masse volumique du liquide (kg/m^3)

Paris, le 13 Décembre 1997

13ème Congrès Français sur les Aérosols CFA 97

*PARIS Institut National Agronomique
2-3 Décembre 1997*

Texte complet de la communication résumée du 3 Décembre 1997, sous le titre: Epuraton de l'air Atmosphérique. Nouveau procédé basé sur le champ centrifuge

1) Situation générale de l'épuration de l'air en Décembre 1997

L'examen de cette situation démontre qu'aucune solution réellement nouvelle à l'épuration de l'air n'a été apportée depuis de nombreuses années. Les solutions fondamentales connues et appliquées restaient encore récemment les suivantes:

- Cyclones dits "statiques", car ne comportant aucune pièce mécanique, l'énergie de rotation du gaz étant prélevée sur sa vitesse tangentielle d'entrée. Le champ centrifuge est alors, **pour une vitesse d'entrée déterminée**, inversement proportionnel au rayon du cyclone. Le débit traitable est approximativement proportionnel au carré de ce rayon, donc inversement proportionnel au carré du champ centrifuge. Cette caractéristique conduit à l'emploi, pour la mise en oeuvre simultanée de champs centrifuges élevés et de débits importants de "multicyclones" en parallèle, nécessitant des circuits d'arrivée et de départ du gaz, ainsi que d'évacuation des produits, complexes et coûteux. Les cyclones sont par suite considérés essentiellement comme des "dégrossisseurs" "coupant l'aérosol au voisinage de quelques microns. Ils assurent l'évacuation continue des produits séparés.

- Appareils continus de lavage dits également "scrubbers", dans lesquels un mélange poussé du gaz avec de l'eau assure un transfert plus ou moins efficace de l'aérosol en phase aqueuse. Leur efficacité dépend de l'énergie de mélange mise en oeuvre, et il peut être nécessaire dans certains cas de leur adjoindre un épurateur supplémentaire pour éliminer le brouillard résiduel ainsi créé. Par ailleurs, ils génèrent évidemment une masse importante d'eau polluée qui doit subir un traitement d'épuration.

- Filtres dits "à manches" ou "à poches" mettant en oeuvre des media filtrants de divers types, à adapter aux problèmes à traiter. L'évacuation des produits récupérés sur les filtres s'effectue **périodiquement et non en continu**, par secouage, soufflage, déformation. Cette caractéristique est la faiblesse majeure de ce matériel, car il est en réalité difficile d'asservir la fréquence aux concentrations d'entrée. Par ailleurs, les filtres à manches sont limités en température à environ 150 °C. Par ailleurs, ils sont sensible au colmatage par des produits humides ou naturellement pâteux. Enfin, lorsque les performances de qualité sont, comme actuellement, plus élevées, la vitesse de passage doit être réduite et corrélativement la surface débitante accrue.

- Filtres dits électrostatiques, dans lesquels l'aérosols, initialement chargé électrostatiquement par des électrodes, est ensuite "dévié" latéralement par rapport au flux gazeux, et collecté en première étape sur des "plaques" réceptrices de polarité opposée. Sous réserve d'une vitesse de passage très faible, et donc d'une dimension accrue, ils peuvent atteindre des finesses de séparation largement inférieures au micron. Leur principal désavantage est le même que pour les filtres à manches, à savoir la discontinuité de l'élimination des produits collectés.

2) Comparaison avec le milieu liquide. Introduction de la séparation centrifuge en milieu gazeux.

Il est intéressant de comparer les procédés de séparation en milieu gazeux et en milieu liquide, particulièrement en ce qui concerne l'eau. Il est à noter que, dans ce cas, **la séparation centrifuge par rotor entraîné mécaniquement a pris une importance beaucoup plus grande que pour le milieu gazeux**. Toutefois, les cyclones statiques (Appelés dans ce cas hydrocyclones), les filtres à média, et les équipements d'électrolyse et d'électrophorèse (Rendus possibles par les anomalies de l'eau, dûes à la liaison hydrogène) y sont présents.

Cette anomalie n'a pas échappé à divers chercheurs; **depuis environ 1920**, et de nombreux dépôts de brevets ont été effectués pour l'application de la séparation centrifuge en milieu gazeux. Ils ont été initialement dérivés étroitement des centrifugeuses en milieu liquide déjà existantes, c'est à dire essentiellement:

- Les centrifugeuses dites "à bol tubulaire", développées en particulier par la SHARPLES CORPORATION à Philadelphie, pour de nombreuses applications industrielles et accessoirement l'épuration de l'eau.(

- Les centrifugeuses dites "à assiettes" ou "à empilages de cônes", développées par la Société Suédoise DE LAVAL, devenue ensuite ALFA-LAVAL.

Ces centrifugeuses en milieu liquide sont figurées sur la page ci-jointe (FOLIO 1) représentant, de gauche à droite, à la partie supérieure, le "Supercentrifuge" SHARPLES"; l'appareil à disques coniques ALFA LAVAL, et un rotor primitif utilisable pour certains cas simples. Dans le cas du rotor tubulaire, le liquide monte parallèlement à l'axe du rotor de la base au sommet. Dans le cas du rotor à disques, le liquide monte autour des disques, puis se rassemble près de l'axe en circulant entre les disques, sur la face interne desquels se déposent les produits à éliminer. Dans les deux cas, les produits lourds aboutissent sur la paroi du rotor. (Voir deuxième page complémentaire; FOLIO 2).

Toutefois, il est apparu dès cette étape qu'il y avait une différence fondamentale entre les centrifugeurs en milieu liquide et les centrifugeurs en milieu gazeux. En effet, dans le premier cas, le liquide traité est séquestré dans le rotor. Celui-ci tourne dans l'air, ce qui permet de maintenir un frottement réduit à la périphérie pour les vitesses les plus élevées. Par contre, la combinaison de la masse spécifique élevée du liquide et de l'importance du champ centrifuge conduit à la nécessité de rotors très étudiés pour des contraintes très élevées.

Pour les séparateurs centrifuges en milieu gazeux, et plus spécialement pour les épurateurs d'air, il apparaît alors comme évident que la paroi périphérique du rotor n'est plus nécessaire, puisqu'il n'y a plus à séquestrer un liquide en milieu gazeux. Les appareils ont donc été développés en faisant tourner un rotor totalement ouvert à la périphérie dans un stator. Ceci présente d'autant plus d'intérêt que le rotor peut alors rejeter sans obstacle les fractions lourdes sur la paroi du stator, comme le montrent les deux illustrations d'anciens brevets, ci-jointes. Ceci a été la première modification apportée; bien antérieurement à la la conception du TCG. Celui-ci a dès l'origine été conçu sous cette forme.

3) Développement final du TCG sur la base des éléments précédents et d'information complémentaire.

3.1) Problème N° 1: Descente des produits collectés. Problème de base

Sur les Extraits de Brevet Rupert Carter et Th Jansen (FOLIOS 3 et 4) apparaît un problème, qui se trouve ensuite Schématisé sur la Fig 1 de la Demande de Brevet 2720958.(FOLIO 5)

En premier lieu, pour que le rotor puisse tourner dans le stator, il faut évidemment un jeu périphérique entre eux.

En second lieu, ce jeu est également nécessaire pour que les produits séparés puissent descendre vers le bas de l'appareil.

Toutefois, comme, ainsi que montré par exemple sur les extraits de Brevets Rupert Carter et Jansen (FOILOS 3 et 4) si le gaz traité monte à travers le rotor, une partie montera par le jeu périphérique, c'est à dire en sens opposé à la descente des produits séparés. Il s'opposera par suite à la descente des particules les plus fines, ce qui limitera l'efficacité de l'appareil. L'adjonction d'un joint liquide périphérique est impossible, compte-tenu des vitesses tangentielles mises en oeuvre. Il serait donc préférable que le gaz descende, mais ne se recharge pas en particules à sa sortie inférieure

3.2) Inversion du sens de circulation du gaz:

Si le gaz descend dans la zone périphérique, il facilite la descente des particules. Toutefois, parvenu au base du rotor, il ne peut sortir sans se mélanger, dans la disposition initiale, à une partie des particules, et le rendement en est fortement réduit. Il faut donc qu'il puisse remonter vers le haut de l'appareil, non seulement sans se rémélanger à des particules, mais en se débarrassant de celles qu'il peut encore contenir. Pour cela, il est nécessaire de faire appel à une propriété des écoulements cycloniques, telle qu'elle est figurée par le Schéma FOLIO 6, extrait d'un ouvrage britannique sur les cyclones. On y voit que, lorsqu'un tourbillon descendant ne peut pas s'échapper vers le bas, il remonte sur un diamètre réduit autour du même axe que le tourbillon initial. Ceci suppose évidemment que la capacité contenant le tourbillon est aménagée dans ce but. C'est ce qui est obtenu dans le TCG, le gaz descendant dans le jeu périphérique et remontant à travers les fentes des "disques", qui peuvent avoir une légère conicité.

4) **Description du TCG tel que construit à cette date.**

Le Schéma du FOLIO 7 représente un TCG mettant en oeuvre toutes les constatations ci-dessus

4.1) Entrée du Gaz pollué et mise en vitesse initiale

Sur ce Schéma (FOLIO 7) extrait du dernier Brevet, le gaz pollué pénètre en E (N°30). Il se répartit dans une chambre périphérique circulaire, entourant une chambre centrale circulaire 34. Il pénètre ensuite dans un distributeur hélicoïdal 36, qui lui communique, comme dans un cyclone conventionnel, une vitesse tangentielle. Toutefois, en complément des données mentionnées ci-dessus, il est apparu que cette vitesse tangentielle était trop faible, même en tenant compte d'un effet d'entraînement par la périphérie des disques du rotor. Il a par suite été adjoint sur les réalisations les plus récentes d'une série de pales longitudinales N° 20, montées sur le rotor, et communiquant ainsi au gaz une vitesse tangentielle égale à la vitesse tangentielle du rotor.

4.2) Epuration primaire

Dans la zone ci-dessus, le gaz subit une première épuration, sous un champ centrifuge qui s'exprime par V_t^2/R , V_t étant la vitesse tangentielle, et R le rayon moyen de position des pales. Le "point de coupure" dépend seulement de R, V_t étant une constante dépendant de la résistance mécanique des éléments du TCG dans cette zone. Plus le rayon est faible, pour une même vitesse tangentielle, plus le champ centrifuge est élevé, et plus le point de coupure est bas (Comparer aux cyclones)

Toutefois, différemment des cyclones dits "statiques", la vitesse tangentielle maximum est très supérieure à la vitesse d'entrée, et permet d'atteindre des performances, bien meilleures

4.2) Epuration de finition.

En bas de rotor, le gaz se comporte comme dans un cyclone conventionnel (FOLIO 6) et remonte à travers l'empilage de disques, **qui sont percés de fentes radiales régulièrement réparties.** Plusieurs phénomènes doivent être pris en compte

4.2.1) Vitesse tangentielle et champ centrifuge

La loi de base des tourbillons dits "libres", ce qui est le cas dans cette zone, car il n'y a pratiquement plus d'échange d'énergie entre le rotor et le tourbillon, est que la vitesse tangentielle varie inversement proportionnellement au rayon, c'est à dire que $V_t = K/R$. En pratique, le rayon moyen de remontée du tourbillon est la moitié du rayon de descente. La vitesse tangentielle est donc sensiblement (Aux pertes par turbulences et frottements près) le double de la vitesse tangentielle de descente. Le rayon est, comme précisé ci-dessus, divisé par 2. Le terme exprimant le champ centrifuge, soit V_t^2/R est donc **théoriquement multiplié par 8**, par suite de l'intervention de V_t^2 . En réalité, le coefficient multiplicateur réel est mal connu, compte-tenu de tous les paramètres intervenant.

4.2.2) Effet COANDA et Forces de VAN DER WAALS

Le gaz remontant vers le haut **à travers les fentes** a une vitesse tangentielle beaucoup plus élevée que celle du rotor au même rayon. En effet, la vitesse tangentielle du rotor est divisée par 2, alors que la vitesse du gaz est multipliée par 2. Le gaz tourne donc, au moins théoriquement, 4 fois plus vite que le rotor au rayon moyen des fentes. Compte-tenu de la vitesse débitante relativement réduite, le gaz monte en spirale de fente en fente, suivant une loi mal connue, **cette spirale étant très aplatie.** Il y a donc un contact très étroit entre le gaz et la surface des disques et un **dépôt temporaire** de produits sur ceux-ci, suivi d'une extraction par la force centrifuge vers la périphérie. Ce contact est amélioré par le phénomène connu comme " Effet COANDA", qui est l'existence au voisinage du bord d'attaque des fentes, d'une dépression qui "colle" la veine au métal sur une certaine distance. Il semblerait donc que l'on ait intérêt à accroître le nombre de disques. Toutefois, cette conclusion n'est pas absolue, car l'augmentation du nombre de disques peut accroître les pertes de charge dans le rotor, et perturber l'écoulement du gaz. Par ailleurs, le poids et l'inertie polaire du rotor, ainsi que son coût, sont accrûs, ainsi que l'énergie d'entraînement.

4.3) Echappement du gaz épuré.

Le gaz épuré sort à la partie supérieure du rotor, puis par la sortie de goulotte S. Il est alors repris par le ventilateur d'extraction.

4.4) Evacuation des impuretés

Lorsque le gaz préépuré inverse son sens de circulation verticale, sous le rotor, il n'assure plus un débit descendant acheminant les particules (ou gouttelettes) séparées vers la (ou les) sorties N° 7, équipées d'écluses 24, **étanches aux gaz.**

La masse de gaz située dans cette zone, c'est à dire entre 64 et 62, conserve, par transfert partiel de quantité de mouvement, une rotation, mais aucune composante de vitesse verticale. Il a donc été installé dans cette zone une série de viroles co-axiales, utilisant la rotation résiduelle de cette partie du fluide pour récolter les particules ou gouttelettes par effet centrifuge. D'autre part, la rotation facilite la descente des particules déposées, par suite de la réduction du coefficient de frottement qu'elle entraîne. Cette disposition a été testée au cours des essais du 14 Novembre à la Fonderie des Tamaris (Fumées rousses de four électrique) et semble efficace.

4.5) Equipements accessoires.

Le principal équipement accessoire est constitué par une double paroi 70, destinée essentiellement à des refroidissements. L'application la plus importante est a priori la condensation forcée des C.O.V. (Composés organiques volatils), qui sont rejetés dans l'atmosphère sous forme de vapeur. Il est prévu une réfrigération à - 80 °C., par fluide frigorigène. La combinaison, au niveau du rotor, d'un champ centrifuge très élevé (> 10000 G. pour la dimension d'appareil prévue), et d'une "paroi froide" à très basse température devrait accélérer le rassemblement de molécules qui sont généralement lourdes.

5) Conclusion

Le but de la présente note était de montrer comment la séparation centrifuge en milieu liquide, largement explorée dès le début du siècle; a permis, au prix de nombreuses adaptations, non évidentes a priori, de mettre au point un séparateur centrifuge en milieu gazeux.

Il est toutefois préférable de signaler qu'il existe une deuxième filière de développement, dérivant des bols tubulaires du type "SHARPLES" mentionnés en début de Note (FOLIOS 1 et 2) Le premier appareil de ce type a été inventé et breveté par **Mr VON ZIPPE**. Comme le TCG, il a nécessité des adaptations très spéciales, dans son domaine particulier, celui de la concentration d' $U^{238}F_6$ dans un mélange de ce gaz et d' $U^{235}F_6$, ce dernier étant largement plus abondant. Le FOLIO 8 représente une dérivation des Brevets VON ZIPPE, tombés dans le domaine public. Le FOLIO 9 représente la disposition largement modifiée **que j'ai réalisée en 1962 pour le C.E.A.** On y constate les adaptations significatives suivantes:

- Comme pour les liquides, le rotor **fermé tourne dans une enceinte**, celle-ci étant toutefois en dépression poussée (gazeuse) pour réduire les frottements dûs à l'extrême vitesse tangentielle adoptée.

- La concentration en $U^{235}F_6$ s'effectue par un **RECYCLAGE continu interne au rotor**. Il est ainsi possible de sortir à la partie inférieure du mélange enrichi en $U^{235}F_6$ et à la partie supérieure du mélange enrichi en $U^{238}F_6$. L'emploi de nombreux appareils en parallèle et en cascade permet d'atteindre des concentrations satisfaisantes en $U^{235}F_6$.

Malgré des essais favorables à Saclay, l'appareil n'a pas été retenu par le Gouvernement, pour des raisons uniquement politiques et économiques. Le procédé par diffusion gazeuse a été préféré, malgré un prix de ce dernier apparemment plus élevé .

COMPLEMENT : Caractéristiques spécifiques du TCG.

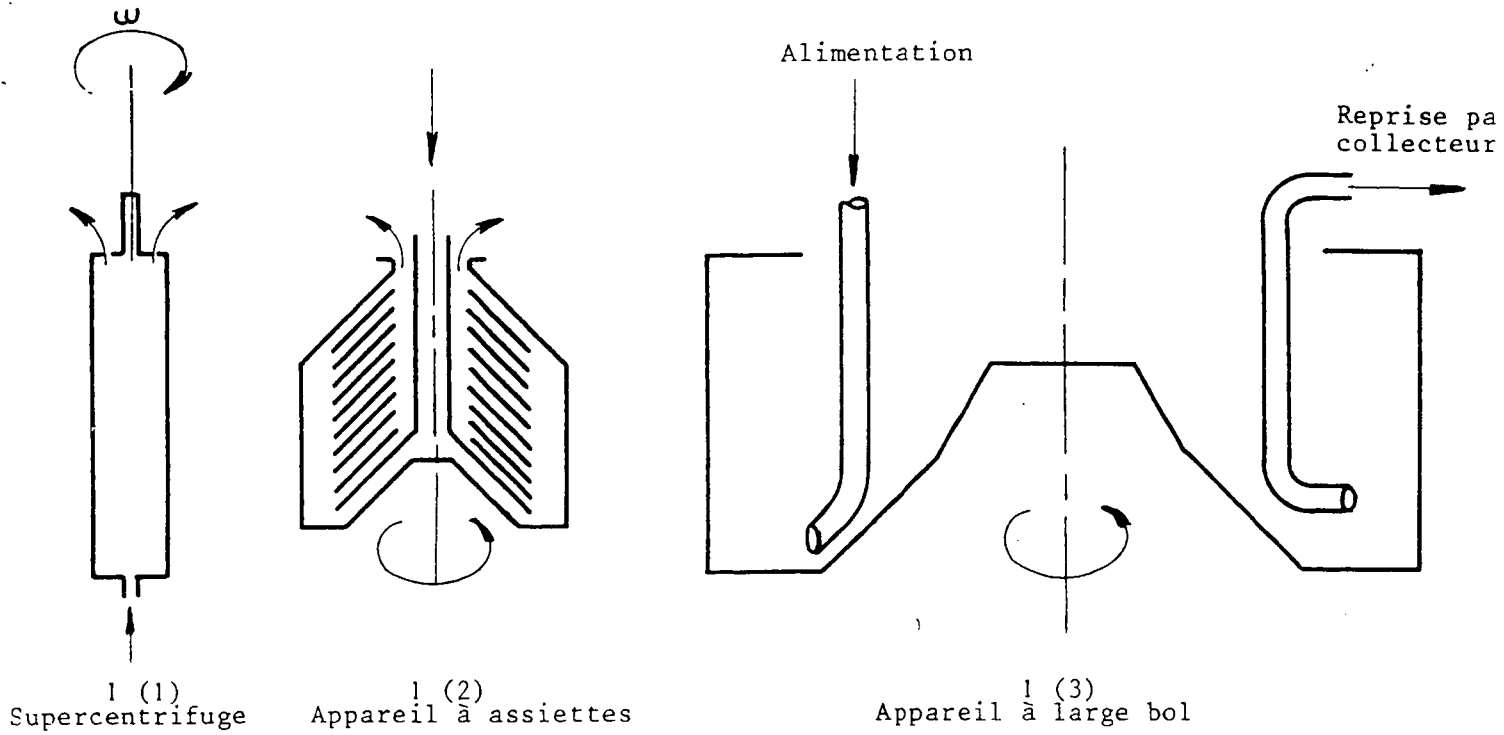
Il est intéressant de rappeler les avantages spécifiques du TCG, dérivant des diverses évolutions mentionnées ci-dessus

- Efficacité maximum adaptée aux normes les plus récentes
- Encombrement réduit par rapport aux dispositifs de performance comparable existants (Filtres à manches et Filtres électrostatiques).
- Absence de montage complexe sur place, l'appareil étant livré complet
- Insensibilité absolue à la nature de la phase dispersée: Solide; liquide, pâteuse, mélangée, etc...
- Emploi corrélativement possible en régime sec, légèrement humide, semi-humide, humide.
- Emploi comme réacteur déchargeant un produit chimiquement différent des composants introduits.
- Insensibilité à la concentration d'entrée; le premier étage d'épuration primaire éliminant les particules les plus grossières et les plus abondantes. La concentration d'entrée peut atteindre plusieurs grammes par m³.
- Invariance de l'efficacité dans le temps, par suite de l'évacuation continue et instantanée des produits séparés.
- Insensibilité totale aux phénomènes de colmatage, sauf exceptions extrêmement rares pouvant être traitées par des adaptations très simples (Revêtements anti-adhésifs par exemple).
- Entretien très réduit, se limitant en pratique au remplacement périodique des deux roulements
- Dispositif d'ajustement de température incorporé, en particulier pour maintenir des températures très basses, permettant de réaliser une cryo-condensation centrifuge des C.O.V.
- Possibilité de choix de matériaux de construction très divers: Acides à hautes caractéristiques, aciers inoxydables, aciers réfractaires, polymères résistant aux corrosions, produits "vitreux", constructions mixtes, etc...
- Fonctionnement possible sous pression élevée ou sous vide poussé, grâce à la forme cylindrique du corps, et à la possibilité de monter des joints tournants standard.
- Incorporation possible dans des "Procédés" **continus** chimiques ou physico-chimiques, la séparation ne concernant pas alors la pollution de l'air, mais la possibilité d'accélérer des réactions de séparation et la **productivité du procédé**.

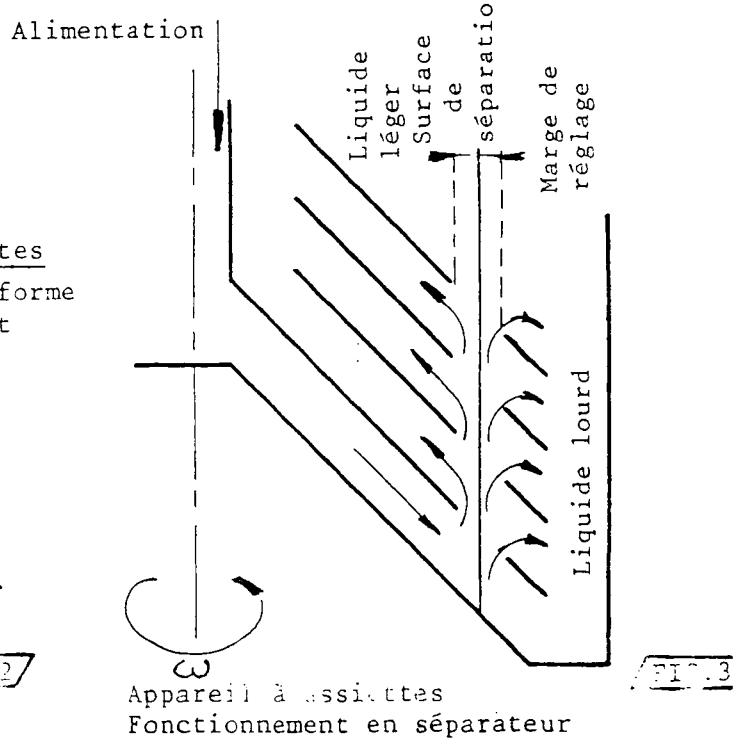
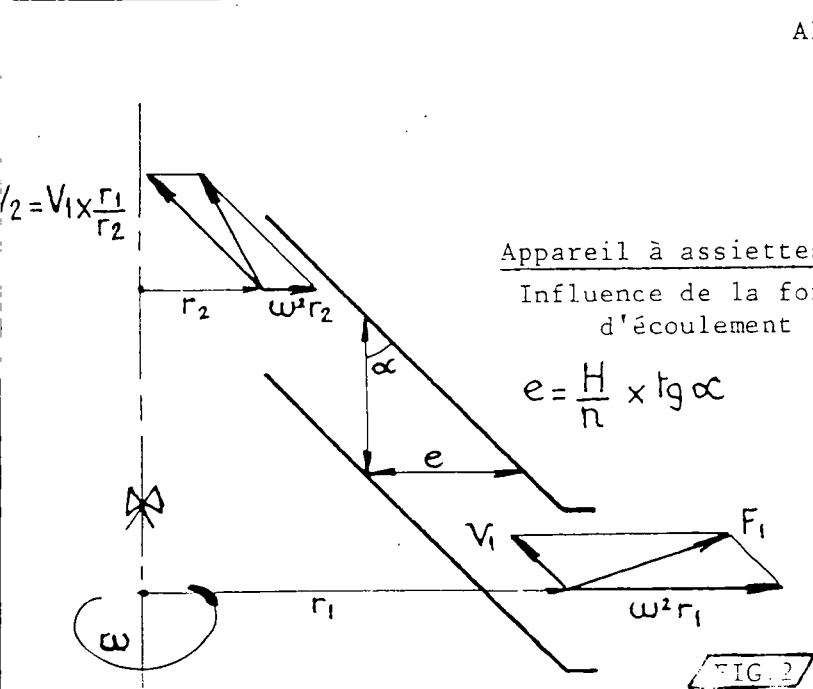
Pierre SAGET



FIG.1



	Diamètre Cm	Vitesse t/mn	Champ centrifuge c x g	Capacité sédiment dcm3	Puissance	Structure interne
1.1	8 à 20	1200-60000	12000-60000	1 à 6	10 ch	Cloisons radiales
1.2	20 à 80	3000-10000	3000-11000	3 à 20	100 ch	Assiettes coniques
1.3	20 à 250	500- 3000	500- 3000	10 à 500	200 ch	Généralement aucune



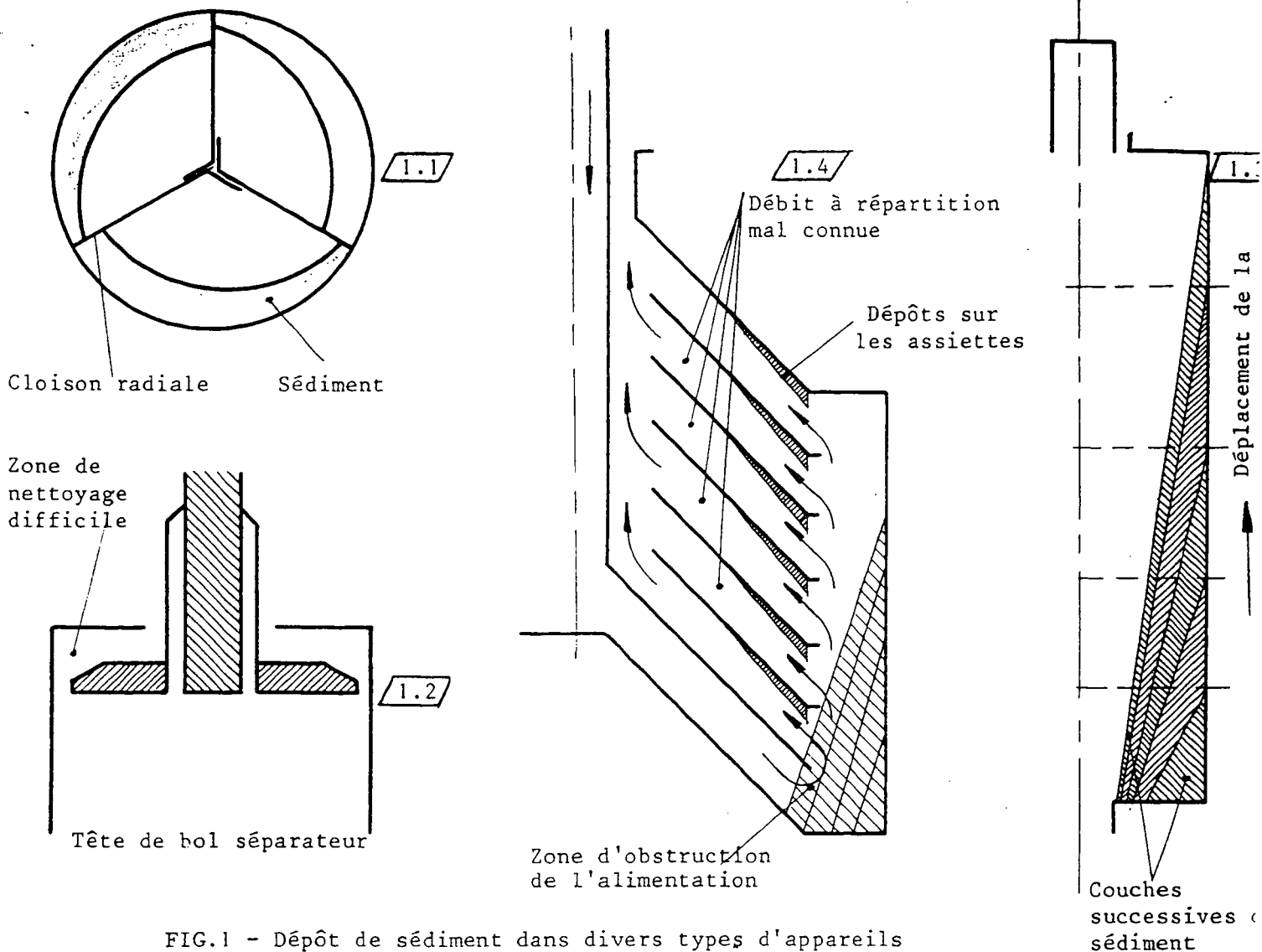


FIG.1 - Dépôt de sédiment dans divers types d'appareils centrifuges.

FIG.2 - Dépôt du sédiment et disposition de la surface de séparation dans l'appareil à double séparation.

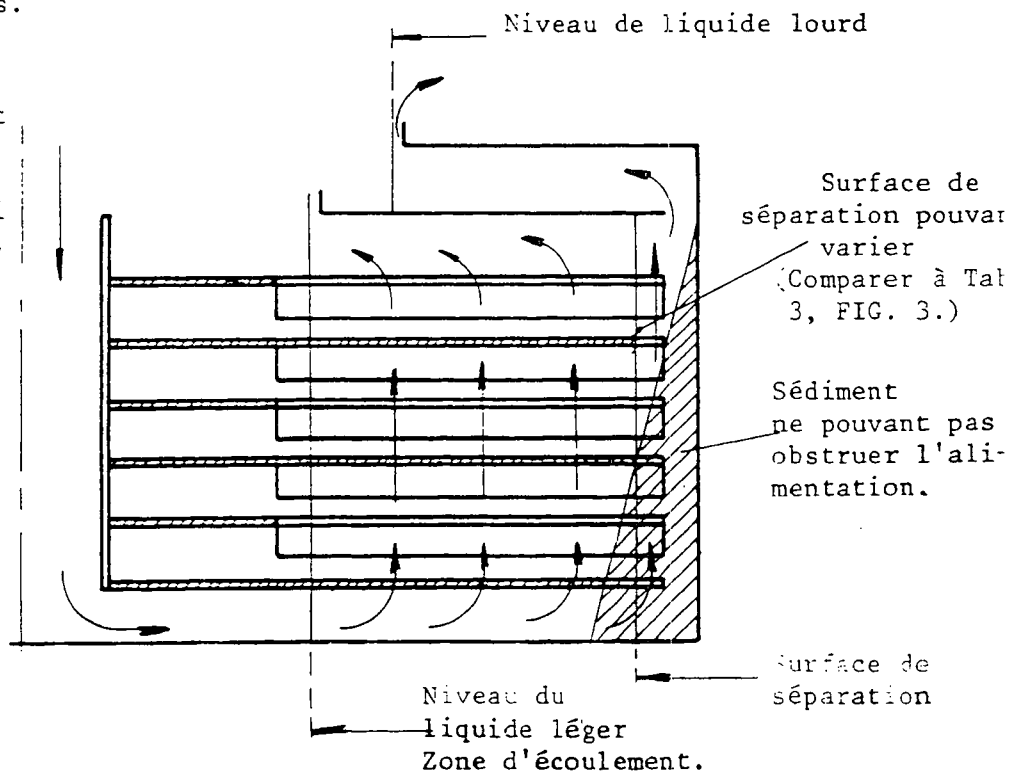


FIG. 6

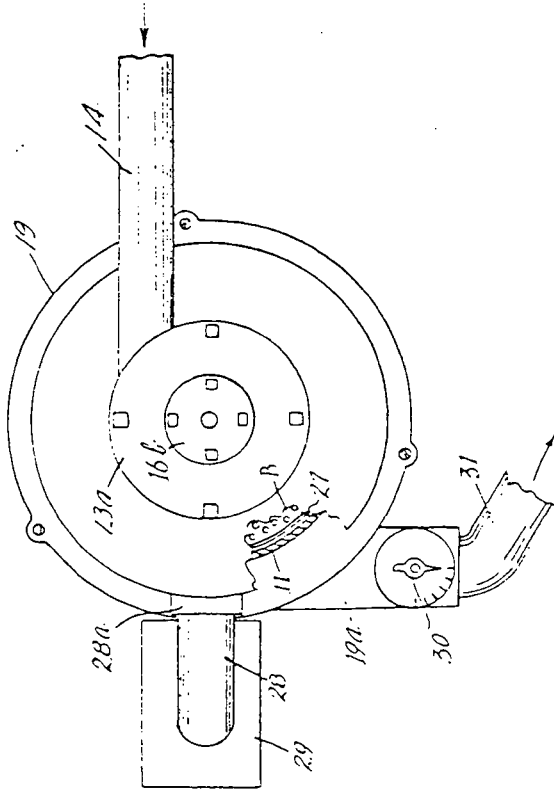


FIG. 3

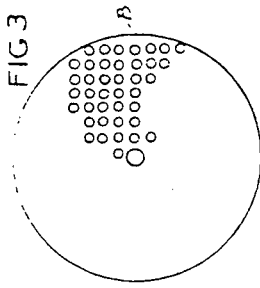


FIG. 2

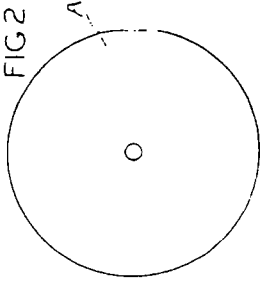


FIG. 4

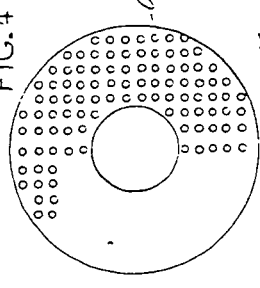


FIG. 5

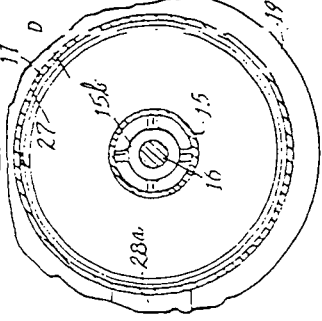


FIG. 7

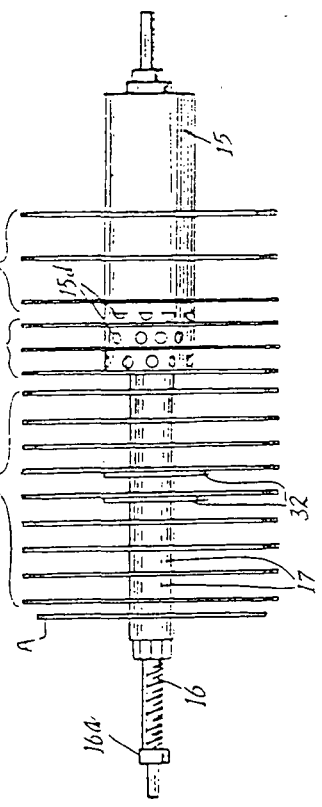


FIG. 12

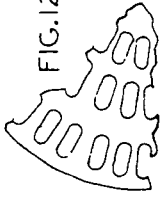
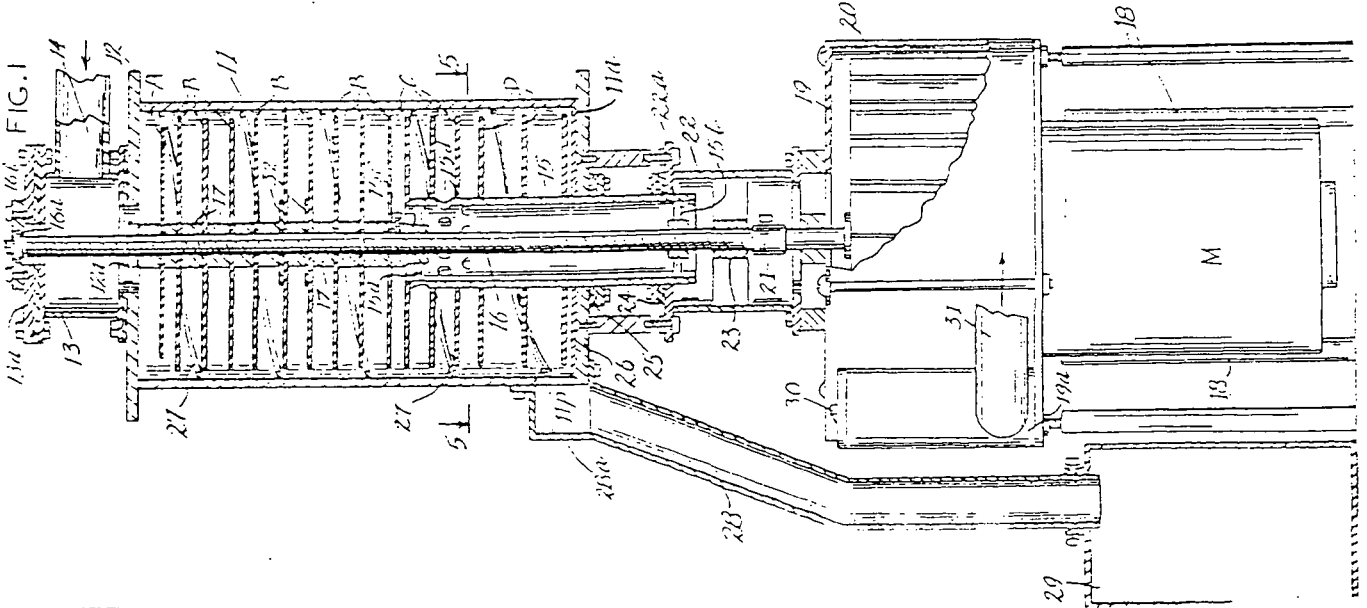
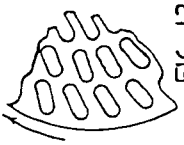


FIG. 11



FIG. 13



FOLIO 3

Fig.1

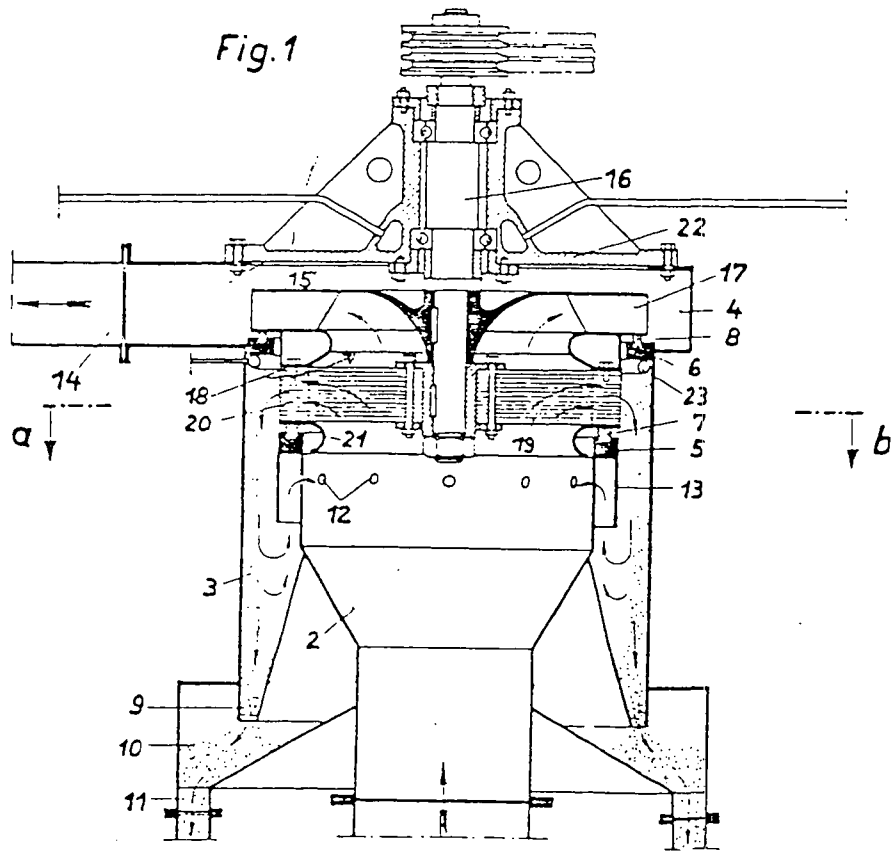
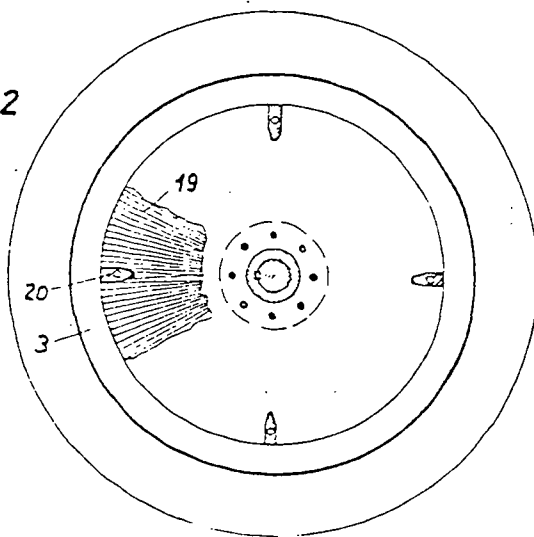
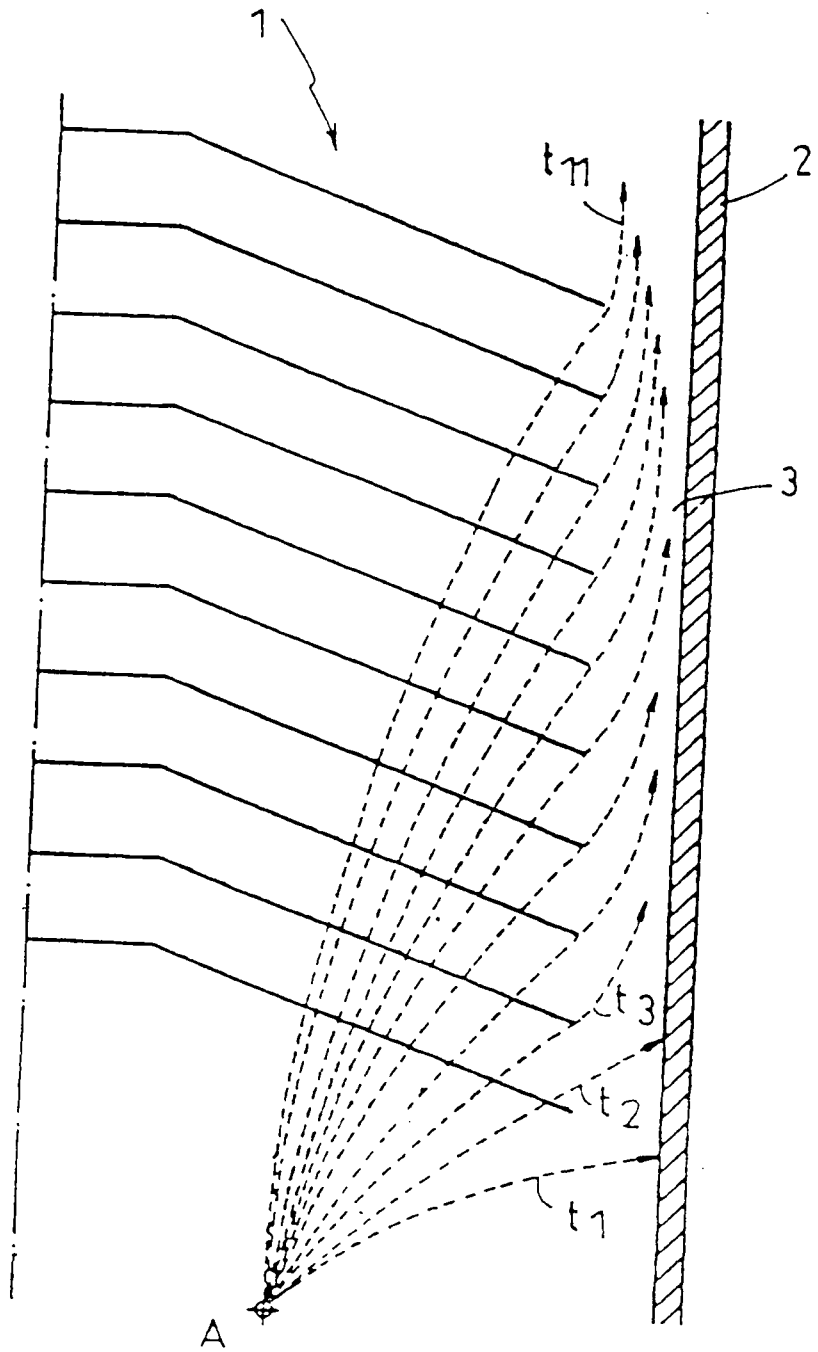


Fig.2



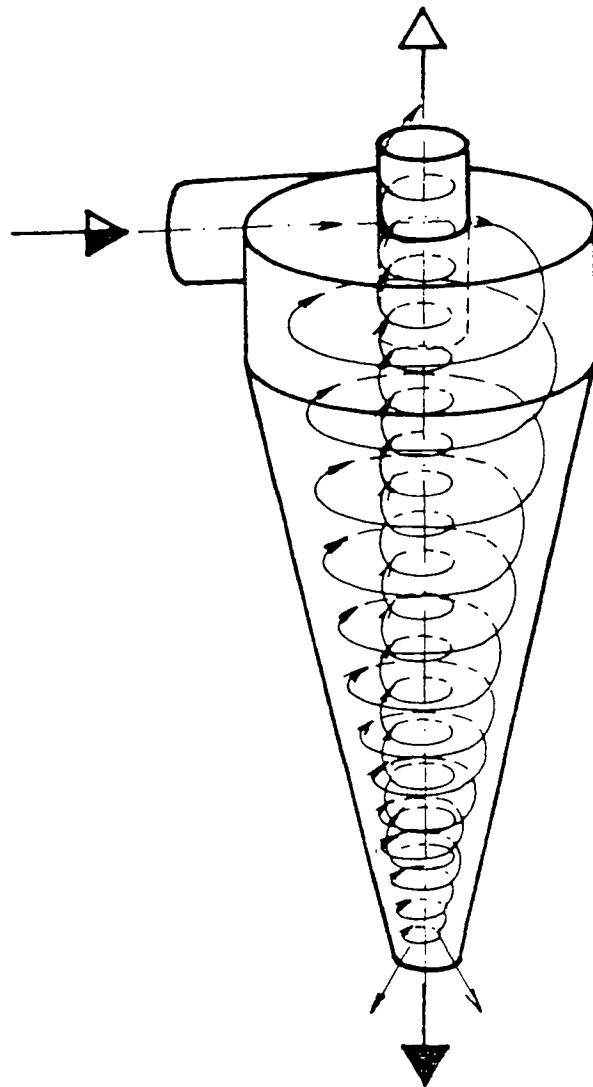


FOLIO 5

FIG_1

cross-section and located as near to the top cover as practical design limitations permit.

Except for the region in and just around the tangential inlet duct, the motion of the fluid within the cyclone body has circular symmetry and is shown schematically in Fig. 3.2. Most of the incoming fluid moves in an outer helical flow into the outer portion of the inverted cone where it begins to feed across towards the centre. Some of the downward flow leaves through the underflow orifice in the apex of the cone while the rest reverses its vertical direction and goes up via the inner helical flow and out through the vortex finder.



A 2

Fig. 3.2 Perspective view of a hydrocyclone showing the vortex flow inside schematically.

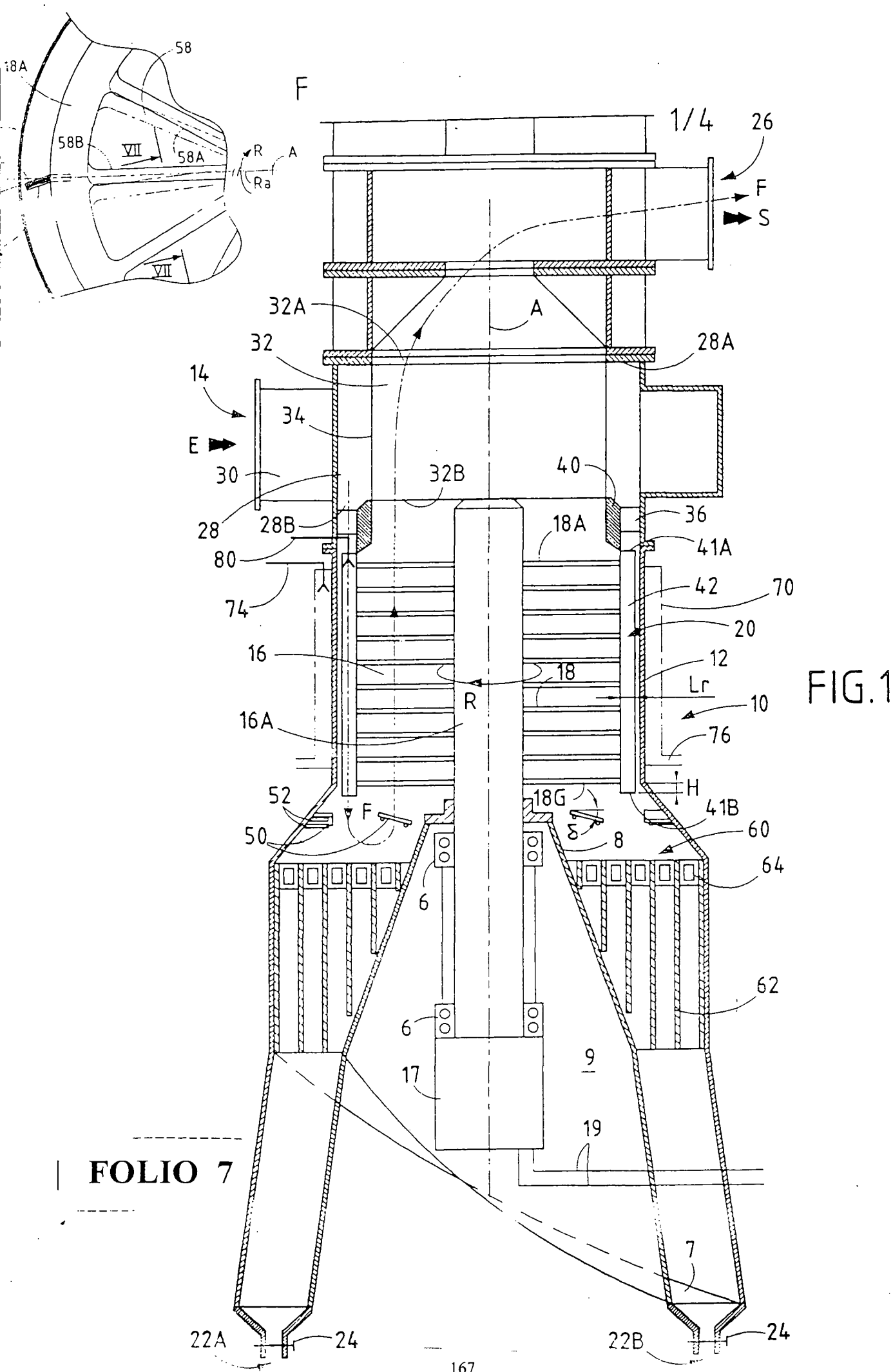
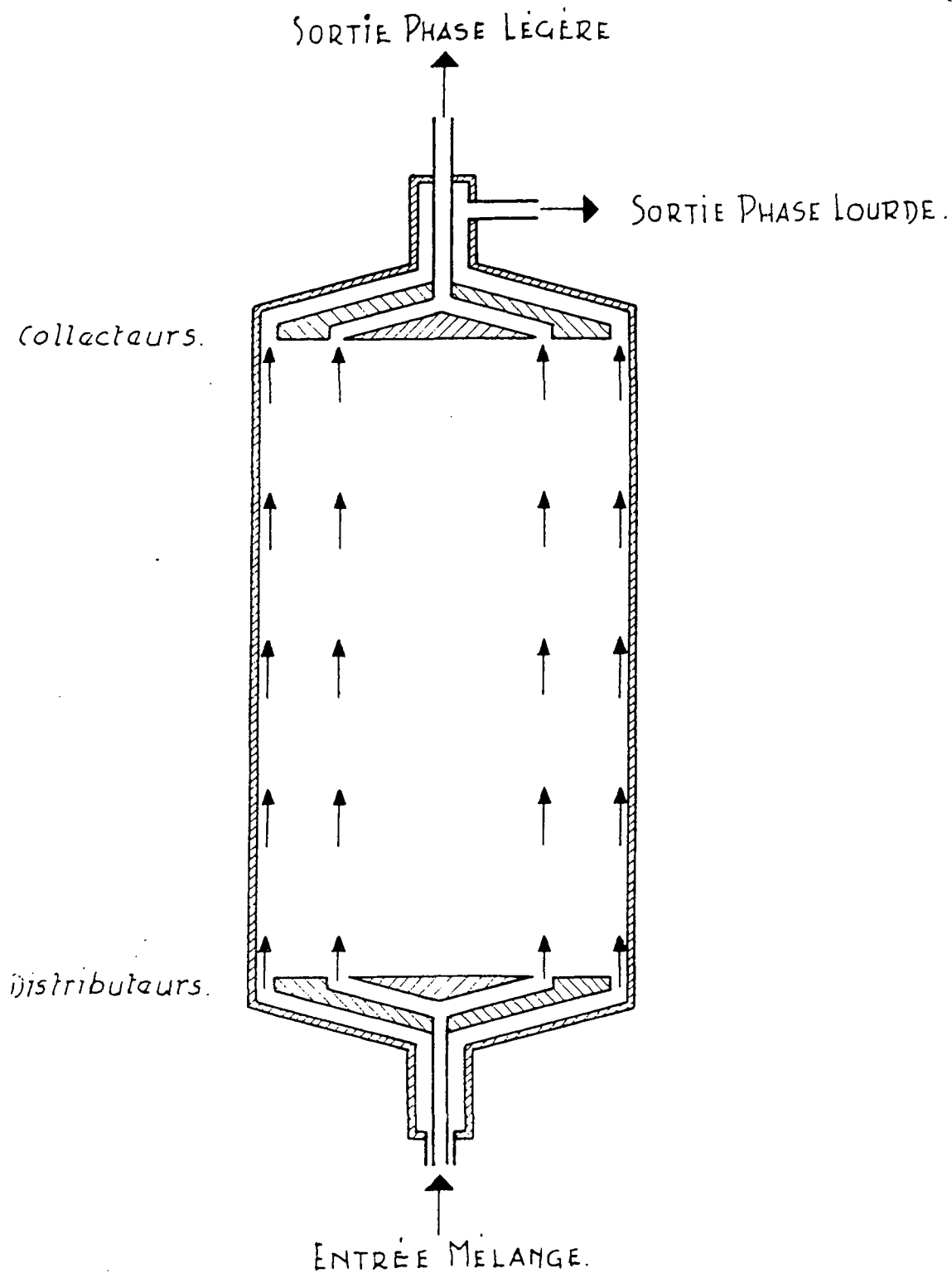


FIG. 1

FOLIO 7

Fig. 1



FOLIO 8

D.H.L SAGET

36. Av. de la Grande Armée
75017 - PARIS

Brevet

G. RANGER

D. SAGET

METHODE SIMPLIFIEE POUR L'EVALUATION DES PERFORMANCES DES ECHANTILLONNEURS INDIVIDUELS DE LA FRACTION INHALABLE.

Olivier Witschger

Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols, Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, DPEA/SERAC, CEA-Saclay bat 389, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France..

Klaus Willeke, Sergey A. Grinshpun et Vitaly Aizenberg

Aerosol Research and Exposure Assessment Laboratory, Department of Environmental Health, University of Cincinnati, Cincinnati, OH 45267-0056, USA.

Jerry Smith et Paul A. Baron

U.S. Department of Health and Human Services, Public Health Service, Centers for Disease Control and Prevention, National Institute for Occupational Safety and Health, 4676 Columbia Parkway, Cincinnati, OH 45226-1998, USA

Title

NOVEL AND SIMPLIFIED APPROACH FOR EVALUATING PERSONAL INHALABLE AEROSOL SAMPLERS.

Abstract

The suggested protocol for comparison of personal samplers with the CEN standard EN481 inhalable convention requires laboratory tests on a full-scale manikin with particles up to at least 90 μm and air velocities of 50 cm/s and higher. That requires a wind tunnel with a large cross section. The present study was initiated to simplify and reduce the cost of the performance testing protocol that has been recently found to be expensive, time-consuming, difficult and imprecise. The simplified test method consists of mounting several personal inhalable samplers on a static simplified torso instead of a rotating full-scale manikin. The simplified torso consists of a rectangular three-dimensional body with rounded corners (33 cm wide, 21 cm high, 21 cm deep) on which the personal samplers under test encounters the three principal sampling regimes (isoaxial sampling, 90° sampling and sampling in the wake of the manikin) during the same run. The air flow patterns approaching the samplers' inlets on the simplified torso were found to be similar to those near samplers worn by the full-scale manikin. Sampling efficiency measurements at particle size of 70 μm , wind velocity of 50 and 200 cm/s with the 3.5 L/min GSP personal sampler indicate that both test bodies give equivalent results at each of the sampling regimes. The advantage of the simplified test method is that fewer measurements need to be made, less expensive wind tunnel can be used for testing, encouraging too the development and improvement of new inhalable samplers. Moreover, if accepted as a conventional method, the between-laboratory variability of results may be reduced.

Résumé

L'évaluation des performances d'un dispositif de prélèvement de type individuel de la fraction inhalable d'un aérosol requiert des tests en laboratoire. Ils consistent à comparer à la courbe conventionnelle [EN 481 (CEN, 1993)] l'efficacité d'échantillonnage du dispositif de prélèvement lorsque celui-ci est positionné au niveau de la zone respiratoire d'un mannequin de taille humaine en rotation et exposé à des aérosols d'essais de diamètre aérodynamique allant jusqu'à 90 μm pour des vitesses d'air supérieures à 50 cm/s (CEN, 1997). Le protocole européen existant nécessite un tunnel aéraulique de large section, ce qui rend les tests difficiles et conduit à une large dispersion des résultats d'efficacité. L'objectif de cette étude était de simplifier la méthode existante d'évaluation des performances des échantillonneurs individuels de la fraction inhalable pour qu'elle soit applicable à de plus petites installations aérauliques. La méthode développée consiste à disposer plusieurs échantillonneurs identiques sur un torse de forme simplifiée en position statique plutôt que sur un mannequin de taille réelle en rotation. Le torse simplifié est un parallélépipède à bords arrondis (largeur 33 cm, hauteur 21 cm, profondeur 21 cm) sur lequel les échantillonneurs disposés sont exposés à l'aérosol d'essai suivant les trois principales orientations définies (échantillonnage isoaxial, à 90° et à 180°) durant le même test. L'étude aéraulique montre que les écoulements d'air au voisinage des dispositifs positionnés sur le torse simplifié, déterminés par vélocimétrie laser, sont similaires à ceux que l'on constate au voisinage du mannequin réel. Des mesures d'efficacité d'échantillonnage d'un dispositif de prélèvement de la fraction inhalable, le GSP 3.5 L/min., ont été effectuées pour un aérosol d'essai de diamètre aérodynamique de 70 μm et des vitesses d'air de 50 et 200 cm/s. Les mesures montrent que la méthode développée utilisant le torse simplifié donne des résultats statistiquement équivalents à ceux que l'on obtient en suivant le protocole européen existant. La généralisation d'une telle méthode simplifiée devrait encourager le développement et l'amélioration de nouveaux dispositifs d'échantillonnage de la fraction inhalable d'un aérosol.

Introduction

La prévention des risques professionnels liés à une contamination particulière de l'air exige une connaissance aussi précise que possible des caractéristiques des polluants présents et des niveaux d'exposition des individus potentiellement exposés. Certaines raisons comme la non homogénéité de la contamination dans l'environnement considéré et la mobilité physique des personnes conduisent à préférer aux dispositifs de prélèvement à *postes fixes (ou statiques)*, des dispositifs de type *individuel (ou personnel)*. Ils sont destinés à échantillonner une fraction désignée de l'aérosol ambiant. Les échantillonneurs individuels sont généralement positionnés sur la poitrine de l'individu, dans la zone respiratoire, afin d'être représentatifs de l'aérosol susceptible d'être inhalé.

Dans une optique de prévention collective du risque professionnel, on définit conventionnellement (CEN, 1993, ISO, 1995, ACGIH, 1996) trois fractions de l'aérosol ambiant (i.e., inhalable, thoracique et alvéolaire). La courbe relative à la fraction inhalable moyenne l'orientation d'une personne par rapport à la direction de l'air, et n'est valable que pour des vitesses inférieures à 4 m/s. Ces courbes importantes constituent des spécifications cibles pour le développement et la qualification de dispositifs de prélèvement d'aérosols destinés à l'hygiène du travail.

Différents échantillonneurs sont disponibles commercialement et utilisés en hygiène du travail pour la mesure de la fraction inhalable d'un aérosol. Ces instruments diffèrent généralement l'un de l'autre par leur géométrie et leur débit d'aspiration. C'est pourquoi il est primordial de pouvoir évaluer leurs performances respectives. Le développement d'une méthode d'évaluation adéquate et fiable est donc essentiel.

L'évaluation des performances (i.e., écart par rapport à la fraction conventionnelle et précision) d'un échantillonneur individuel de la fraction *inhalable* d'un aérosol ambiant nécessite d'effectuer des tests en laboratoire. Ils consistent à comparer à la courbe conventionnelle l'efficacité d'échantillonnage du dispositif de prélèvement lorsque celui-ci est positionné au niveau de la zone respiratoire d'un mannequin de taille humaine en rotation et exposé à des aérosols d'essais de diamètre aérodynamique allant jusqu'à 90 μm pour des vitesses d'air supérieures à 50 cm/s (CEN, 1997). Le protocole décrit impose donc de disposer d'un tunnel aéraulique de large section (généralement 2 m x 2 m), afin que le mannequin utilisé induise un faible blocage à l'écoulement. Ce protocole rend les tests difficiles et longs, ce qui conduit à une large dispersion des résultats d'efficacité attribuée principalement à la non homogénéité de l'aérosol d'essai dans l'installation. Une récente étude européenne sur le protocole complexe d'évaluation des performances des échantillonneurs individuels de la fraction inhalable a d'ailleurs souligné la nécessité de le simplifier et ainsi de l'adapter à des installations aérauliques de dimensions plus petites (Kenny *et al.*, 1997).

L'objectif de la présente étude était de mettre en place un dispositif test qui soit plus simple et plus petit, réduisant ainsi le coût des évaluations.

Il est clair que plus l'on souhaite simuler parfaitement les conditions réelles, plus le dispositif à mettre en place est compliqué. Ainsi, les détails de forme du mannequin ont été ignorés, de même l'influence de la température corporelle et de la respiration sur l'écoulement proche car non significative pour des vitesses de vent supérieures à 50 cm/s (Johnson *et al.*, 1996). Seuls les effets liés à la taille et à l'orientation par rapport à la direction du vent sur l'efficacité d'échantillonnage ont été pris en compte.

Méthode Simplifiée

L'écoulement de l'air au voisinage d'un échantillonneur individuel est influencé par la présence de l'individu qui le porte. Ainsi, il est communément admis que l'évaluation des performances d'échantillonneurs individuels de la fraction inhalable d'un aérosol doit s'effectuer en les disposant sur la poitrine d'un mannequin de taille humaine (voir Fig. 1A) (Buchan *et al.*, 1986, Vincent et Mark, 1990). De plus, en accord avec la convention inhalable, les effets de la direction du vent incident doivent être moyennés en mettant en rotation de façon continue le mannequin durant le test d'évaluation.

La méthode développée dans cette étude utilise un *torse simplifié* qui consiste en un parallélépipède (largeur 33 cm, hauteur 21 cm, profondeur 21 cm) représentant l'influence du corps humain sur l'écoulement (voir Fig. 1B). La simulation est donc effectuée à l'aide d'un corps à dimensions réduites de section horizontale rectangulaire et non elliptique. Toutefois, les bords du torse simplifié sont arrondis afin de minimiser les tourbillons créés par les bords et pouvant affecter l'écoulement sur les côtés du torse simplifié.

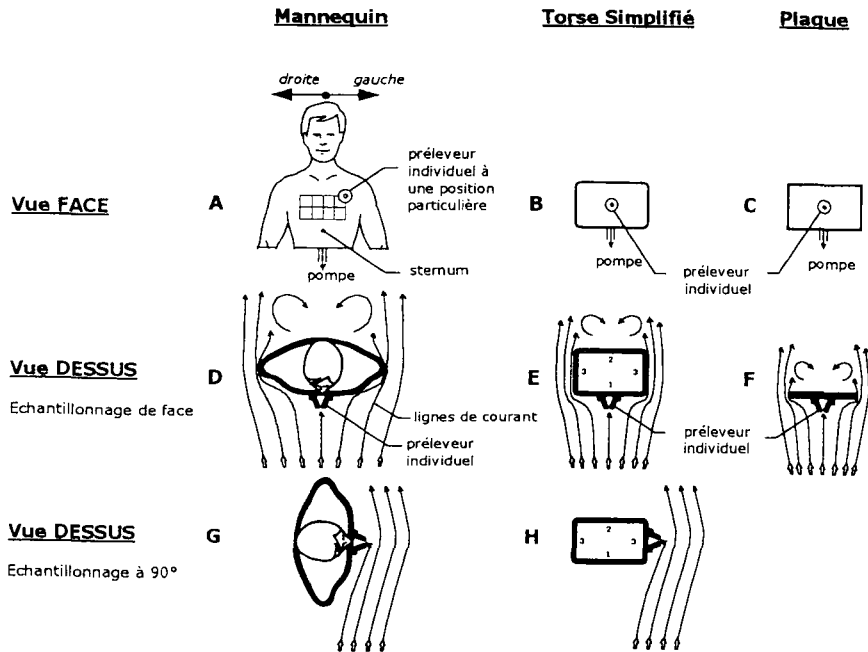


Fig. 1 : Description des différents torses, localisation des échantillonneurs et représentation des écoulements pour chacune des orientations par rapport au vent.

Afin de réduire le nombre des expériences, l'échantillonneur à étudier est testé sans procédure de rotation du torse pour les trois principales orientations d'échantillonnage définies (isoaxial, 90°, et 180°), pour chaque caractéristique de l'aérosol d'essai et plusieurs vitesses de vent. Ainsi, un échantillonneur est positionné sur chaque faces verticales du torse simplifié, chacune représentant une orientation d'échantillonnage par rapport à l'écoulement incident (Figs. 1E and H) : la position 1 simule l'échantillonneur et l'individu faisant face au vent, la position 2 les représente tournés de 180° (l'échantillonneur prélève dans le sillage de l'individu) et la position 3 lorsqu'ils sont tournés de 90°.

La position d'un échantillonneur individuel sur l'individu n'est pas spécifiée précisément, celui-ci doit se trouver à l'intérieur d'une zone dite *respiratoire* (ACGIH, 1995) et bien souvent la localisation dépend des pratiques de l'hygieniste en charge du prélèvement. Les tests menés avec le torse simplifié s'effectuent avec les échantillonneurs placés au centre de chaque face.

De plus, afin de déterminer si la méthode proposée dans cette étude peut être encore simplifiée, un plateau rectangulaire ayant les mêmes dimensions que la face avant du torse simplifié (i.e., 33 cm x 21 cm) a été testé. Ce dispositif s'applique à la situation spécifique où l'échantillonneur est face au vent.

Montage et Procédure expérimental

L'évaluation de la méthode simplifiée développée a été conduite en deux étapes qui sont :

- l'étude des écoulements pour chacune des orientations et pour les différents torses (mannequin, torse simplifié et plateau).

- la comparaison des efficacités d'échantillonnage d'un dispositif de prélèvement du commerce mesurées sur un mannequin de taille humaine et sur le torse simplifié.

Tunnel aéraulique

Les tests ont été effectués dans un tunnel aéraulique de large section (hauteur 1,22 m, largeur 1,83 m) au NIOSH, Cincinnati. La figure 2 montre une vue de dessus de la zone de travail de l'installation et des deux configurations expérimentales décrites ci-dessous. Lors des expériences, le mannequin et les torses (simplifié et plateau) ont été disposés successivement sur l'axe du tunnel à environ 2 m en aval du stabilisateur d'écoulement (voir Fig. 2). Ces derniers ont été montés sur des supports de façon à ce que les échantillonneurs testés soient positionnés à la même hauteur et ainsi exposés au même écoulement d'air et aérosol.

Visualisation des écoulements et mesure des vitesses

Les écoulements ont été visualisés et des mesures de vitesses effectuées pour les différentes orientations avec le mannequin, le torse simplifié et le plateau.

Une technique fumigène a été utilisée pour visualiser l'écoulement au voisinage des torsos. Cette technique est informative lorsque les écoulements sont complexes et permet une comparaison qualitative entre les différents écoulements.

La comparaison quantitative des écoulements pour les 3 torsos a été effectuée à l'aide d'un vélocimètre laser à effet Doppler (LDA, 3D Fiberflow System, Dantec Electronics Inc., Mahwah, NJ, USA). La LDA a l'avantage d'être une technique non intrusive et qui permet la mesure des trois composantes de la vitesse. La LDA était positionnée en dehors de l'installation sur un système de positionnement spatial précis, les mesures s'effectuant au travers d'une vitre (voir Fig. 2). Un aérosol liquide de gouttelettes d'huile d'inertie négligable (diamètre aérodynamique $d_a = 0,7 \mu\text{m}$) a été généré par nébulisation pour la mesure LDA.

Mesures des efficacités d'échantillonnage

L'échantillonneur individuel de la fraction inhalable utilisé pour la comparaison des torsos est le GSP 3,5 L/min (Stöhlein GmbH & Co., Kaarst, Allemagne). L'efficacité d'échantillonnage a été

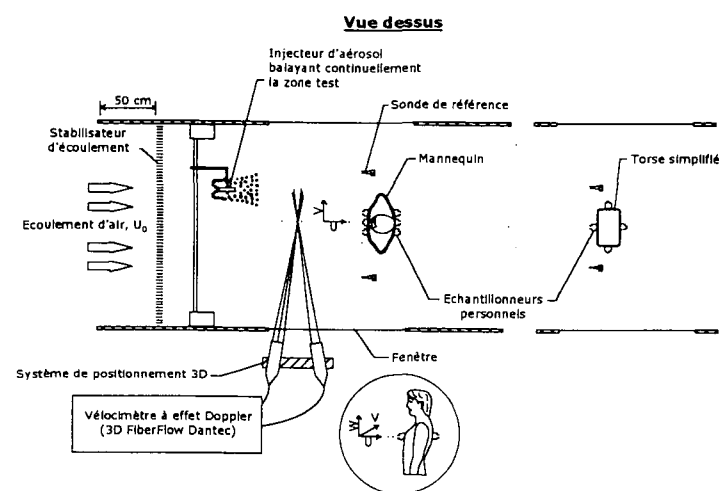


Fig. 2 : Schéma de la zone de travail du tunnel aérodynamique et configurations expérimentales utilisées.

déterminée par le rapport de la concentration massique de l'aérosol mesurée par le GSP sur la concentration massique moyenne de l'aérosol d'essai, mesurée par échantillonnage isocinétique isoaxial à l'aide de deux sondes de référence et en tenant compte du dépôt interne (Witschger *et al.*, 1997). Celles-ci ont été positionnées de chaque côté du torse de façon à ne pas être influencées par la présence de ce dernier. Une caractéristique essentielle de l'installation est le système de génération (générateur Palas modèle RBG-1000, Palas GmbH, Karlsruhe, Allemagne) et d'injection de l'aérosol d'essai balayant de façon continue la zone de travail (voir Fig. 2). Cette configuration a permis d'atteindre une bonne uniformité spatiale de la

concentration de l'aérosol d'essai et une bonne reproductibilité entre les expériences, les coefficients de variation respectifs étant inférieurs à 4% pour une vitesse d'air de 50 cm/s (2% pour une vitesse d'air 200 cm/s) et un aérosol de diamètre aérodynamique médian en masse, $d_a = 70 \mu\text{m}$ ($\sigma_g = 1,35$). Les expériences ont consisté à mesurer les efficacités des échantillonneurs individuels GSP placés soit sur le mannequin (3 sur le torse et 3 sur le dos), soit sur le torse simplifié (1 par face verticale) comme indiqué sur la figure 2 et décrit par Witschger *et al.* (1998). De ce fait, deux expériences étaient nécessaires avec le mannequin pour obtenir les efficacités d'échantillonnage pour les trois orientations définies. Une seule expérience était nécessaire avec le torse simplifié.

Résultats et Discussion

Écoulements et vitesses

Les mesures de vitesse d'air et les visualisations ont montré que l'écoulement approchant le torse du mannequin est complexe. Les courbes de décélération de la vitesse en amont d'un échantillonneur individuel apparaît s'avèrent dépendante de la position de l'échantillonneur sur la poitrine à l'intérieur de la zone respiratoire. Ces courbes sont également fonction des forme et position du torse et des extrémités du mannequin telles que les bras. Il a ainsi été décidé que pour assurer des conditions similaires d'échantillonnage, les écoulements approchant le torse simplifié (ou le plateau) doivent être caractérisés par des composantes de vitesse d'air comprises

entre celles des vitesses mesurées approchant le mannequin. La figure 3 compare les courbes de décélération de la composante horizontale pour les 3 dispositifs testés. Des résultats similaires ont été trouvés pour les composantes verticale et latérale de la vitesse de l'air.

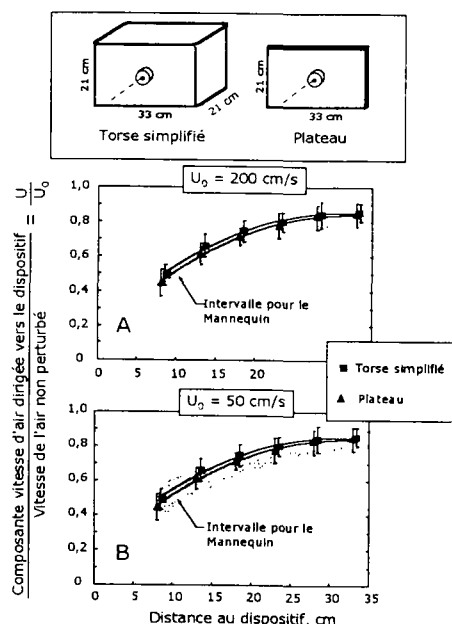


Fig. 3 : Composante normalisée horizontale de la vitesse d'air approchant les différents dispositifs pour l'orientation face au vent (0°).

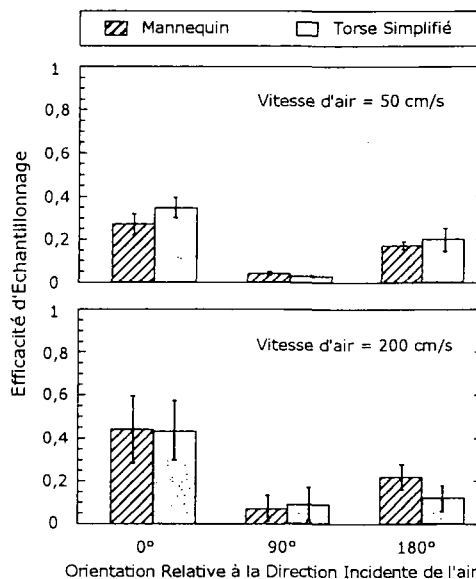


Fig. 4 : Comparaison des efficacités d'échantillonnage mesurées avec le GSP 3,5 L/min positionné sur le mannequin et sur le *torse simplifié*. Diamètre aérodynamique, $d_a = 70 \mu\text{m}$.

Les écoulements pour les positions des échantillonneurs sur le torse simplifié correspondant aux orientations à 90° (Fig. 1H, position 3) et 180° (Fig. 1E, position 2) se sont avérés similaires à ceux correspondant aux positions et orientations comparables sur le mannequin (Witschger *et al.*, 1998).

Il découle des résultats précédents que les trajectoires des particules de l'aérosol approchant les différents dispositifs (mannequin, torse simplifié et plateau) doivent être comparables, conduisant ainsi à des efficacités d'échantillonnage équivalentes.

Efficacités d'échantillonnage

La figure 4 compare les efficacités d'échantillonnage des GSP 3,5 L/min lorsqu'ils sont placés sur le mannequin et le *torse simplifié* pour les 3 orientations principales définies (0° , 90° , et 180°), pour les vitesses d'air de 50 et 200 cm/s, et pour un diamètre aérodynamique de particule, $d_a = 70 \mu\text{m}$. Les barres verticales indiquent les intervalles de confiance à 95% sur les efficacités moyennes calculées sur au moins trois résultats de mesure. Avec le mannequin, pour les orientations 0° et 180° , un résultat d'efficacité correspond à la moyenne des efficacités des trois GSP (voir Fig. 2); pour l'orientation 90° , un résultat correspond à la moyenne des 6 GSP (sur le torse et 3 sur le dos, tous orientés perpendiculairement par rapport au vent). Avec le torse simplifié, l'efficacité à 90° est une moyenne des deux GSP placés en position 3 (voir Figs. 1H et 2).

La figure 4 montre que l'efficacité d'échantillonnage chute considérablement lorsque l'orientation diffère de 0° . Cette évolution s'explique par la sensibilité de l'efficacité d'échantillonnage du GSP à l'orientation du vent par rapport à l'orifice d'entrée. Ce constat nous conduit à deux conclusions :

- le développement d'un échantillonneur d'aérosol destiné à l'hygiène du travail doit s'effectuer en cherchant à minimiser l'influence du vent extérieur.

- la performance d'un échantillonneur individuel commercialisé est bien souvent lié à l'orientation du vent extérieur, il est donc important d'en connaître l'évolution.

Ces expérimentations peuvent être aisément conduites avec la nouvelle méthode développée dans cette étude.

Une analyse statistique sur les résultats des efficacités de la figure 4 permet de conclure qu'à un niveau de confiance de 5%, les efficacités d'échantillonnage mesurées avec les deux dispositifs *ne sont pas significativement différentes*. Ce résultat encourage donc l'utilisation de la méthode simplifiée comme substitut au protocole utilisant un mannequin de taille réelle.

Conclusion

Une méthode simplifiée pour l'évaluation des performances des échantillonneurs individuels de la fraction inhalable a été développée. L'étude aéraulique a permis de montrer que les écoulements au voisinage des échantillonneurs positionnés sur le torse simplifié et sur un mannequin de taille réelle sont similaires. Un test conduit avec un aérosol de diamètre aérodynamique $d_a = 70 \mu\text{m}$ utilisant un échantillonneur du commerce, le GSP, a montré que la nouvelle méthode donne des résultats d'efficacité qui sont équivalents à ceux qui sont déterminés suivant le protocole complexe existant.

La nécessité de développer une méthode d'évaluation simple, moins coûteuse et adaptable à de petites installations aérauliques a suscité notre intérêt mais également celui d'autres équipes (e.g., Ramachandran *et al.*, 1998). La méthode développée dans la présente étude, tout en simulant l'influence du torse humain, réduit la variabilité due aux formes du mannequin de taille réelle et aux positionnements des échantillonneurs. De plus, elle permet d'effectuer simultanément des mesures d'efficacité d'échantillonnage pour différents angles d'orientation : 0°, 90°, et 180°. On suppose en effet que ces trois angles représentent les seuls régimes d'écoulement pour lesquels les performances d'un échantillonneur individuel doivent être connues. Des études sont actuellement en cours pour vérifier cette hypothèse.

La généralisation d'une telle méthode simplifiée devrait encourager le nécessaire développement et l'amélioration de nouveaux dispositifs d'échantillonnage de la fraction inhalable d'un aérosol.

Références

- American Conference of Governmental Industrial Hygienists (ACGIH) (1996) *Threshold Limit Values for Chemical Substances and Physical Agents and Biological Exposure Indices*. ACGIH, Cincinnati, Ohio, p. 45.
- American Conference of Governmental Industrial Hygienists (ACGIH) (1995) *Air Sampling Instruments for Evaluation of Atmospheric Contaminants*. 8th Edition, ACGIH, Cincinnati, Ohio, p. 20.
- Buchan, R. M., Soderholm, S. C., et Tillery, M. I. (1986) Aerosol sampling efficiency of 37-mm filter cassettes. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, 47, 825-831.
- CEN (Comité Européen de Normalisation) (1993) *Workplaces atmospheres: Size fraction definitions for measurements of airborne particles in the workplace*. CEN standard EN 481, CEN, Brussels.
- CEN (Comité Européen de Normalisation) (1997) *Workplace atmospheres: Assessment of performance of instruments for measurement of airborne particle concentrations*. CEN/TC137/WG3/N192, CEN, Brussels.
- ISO (International Organization for Standardization) (1995) *Air quality - Particle size fraction definitions for health-related sampling*. ISO standard 7708, ISO, Geneva.
- Johnson, A. E., Flechter, B., et Saunders, C. J. (1996) Air movement around a worker in a low speed flow field. *Ann. Occup. Hyg.*, 40, 57-64.
- Kenny, L. C., Aitken, R., Chalmers, C., Fabriès, J. F., Gonzales-Fernandez, E. Krombout, H., Lidèn, G., Mark, D., Riediger, G., et Prodi, V. (1997) A collaborative European study of personal inhalable aerosol sampler performance. *Ann. Occup. Hyg.*, 41, 135-153.
- Ramachandran, G., Sreenath, A., et Vincent, J. H. (1998) Towards a new method for experimental determination of aerosol sampler aspiration in small wind tunnels. *J. Aerosol Sci.*, *submitted*.
- Vincent, J. H., et Mark, D., (1990) Entry characteristics of practical workplace aerosol samplers in relation to ISO philosophy, *Ann. Occup. Hyg.*, 34, 249-262.
- Witschger, O., Willeke, K., Grinshpun, S. A., Aizenberg, V., Smith J., et Baron, P. A. (1998) Simplified method for testing personal inhalable aerosol samplers. *J. Aerosol Sci.*, *in press*.
- Witschger, O., Wrobel, R., Fabriès, J. F., Görner, P., et Renoux, A. (1997) A new experimental wind tunnel facility for aerosol sampling investigations. *J. Aerosol Sci.*, 28, 833-851.

Etude du comportement de l'échantillonneur IOM en fonction de la vitesse et de la direction du vent extérieur

F. Roger^(1,2), G. Lachapelle^(1,3), J.F. Fabriès⁽¹⁾, P. Görner⁽¹⁾, A. Renoux⁽²⁾

⁽¹⁾INRS, Laboratoire de Métrologie de la Pollution par les Aérosols,
BP 27, av. de Bourgogne, 54501 Vandœuvre les Nancy, France.

⁽²⁾Université Paris XII, Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations,
Avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil cedex, France.

⁽³⁾Université McGill, Département de Santé au Travail, Faculté de Médecine,
1130 av. des Pins Ouest, Montréal, Québec, H3A 1A3, Canada.

Résumé

L'échantillonnage d'un aérosol est un processus physique complexe qui dépend de plusieurs facteurs tels que le diamètre aérodynamique des particules, la vitesse et la direction du vent extérieur, la vitesse d'aspiration, ainsi que la géométrie de l'échantillonneur.

Dans le cadre d'une étude pilote européenne, l'échantillonneur IOM a fait l'objet de nombreux tests dans un tunnel aéraulique de grande section sur un mannequin de taille humaine. Une grande dispersion des résultats d'efficacité d'échantillonnage a été observée, sans que l'on puisse en expliquer précisément l'origine : variabilité de l'aérosol généré, erreurs expérimentales, variabilité spatiale des profils de concentration au voisinage du mannequin.

Dans la présente étude, l'efficacité d'échantillonnage de l'appareil IOM en configuration statique a été mesurée à l'aide d'un tunnel aéraulique de petite dimension. Plusieurs angles d'orientation θ de l'axe d'aspiration de l'échantillonneur IOM par rapport à l'écoulement de l'aérosol ont été sélectionnés (0° , 45° et 90°), et deux vitesses de vent extérieur (1 et 3 m.s^{-1}). Il apparaît que dans ces conditions expérimentales, l'efficacité d'échantillonnage dépend fortement de la direction et de la vitesse du vent extérieur.

Afin d'intégrer l'effet d'orientation, des mesures ont été également effectuées en positionnant l'échantillonneur sur un plateau tournant à une vitesse de rotation ω constante. Nous avons constaté que la vitesse de rotation est un paramètre interférent lors de la détermination de l'efficacité d'échantillonnage de cet appareil à 1 m.s^{-1} .

D'autres expériences ont été menées en plaçant derrière l'échantillonneur un disque de 11 cm de diamètre pour observer l'influence d'un obstacle sur l'efficacité d'échantillonnage. Celle-ci est fortement diminuée pour les deux vitesses de vent extérieur par rapport à la configuration sans obstacle.

Abstract

Aerosol sampling is a complex physical process dependent on many parameters like particle size, wind speed and direction, aspiration velocity and sampler geometry.

The IOM inhalable aerosol sampler was recently tested within a pilot study of CEN protocols for the performance testing of workplace aerosol sampling instruments in a large wind tunnel equipped with a life scale manikin torso. Due to rather large scatter of the results, the origin of which could be attributed to several factors like non homogeneous aerosol concentration or random experimental errors, and to better understand the relative influence of some of them, it appeared relevant to carry out a complementary study of this instrument. The IOM sampler in static configuration was tested in a small wind tunnel for three orientations to the wind (0° , 45° and 90°) and two wind speeds (1 and 3 m.s^{-1}). With these experimental conditions, the IOM sampler is strongly dependent on wind speed and direction.

To assess the orientation-averaged sampling efficiency of this instrument, other measurements were carried out with the sampler mounted on a rotating plate with a constant angular velocity ω . Results show that ω has an influence on sampling efficiency for 1 m.s^{-1} . Other experiences were carried out with a disc 11 cm in diameter placed behind the IOM sampler. In that case, sampling efficiency is lower for both wind speeds.

INTRODUCTION

L'évaluation de l'exposition des personnes aux polluants particuliers dispersés dans l'air des locaux de travail fait généralement appel à des techniques d'échantillonnage individuel. De nombreux échantillonneurs ont été développés permettant de mesurer la fraction des particules susceptibles d'être inhalées, c'est à dire de pénétrer dans les voies respiratoires à travers le nez ou la bouche. L'efficacité d'échantillonnage d'un système de prélèvement individuel dépend des caractéristiques propres de l'échantillonneur mais aussi de son environnement immédiat. La présence même de l'opérateur portant l'échantillonneur influence le processus de captage en modifiant le champ de vitesse au voisinage de l'orifice d'aspiration. Le comportement d'un échantillonneur de ce type est donc difficile à étudier. Par ailleurs, le dispositif doit être capable de prélever des particules dont le diamètre aérodynamique (D_{ae}) s'étend jusqu'à 100 μm en respectant une fonction définie de manière conventionnelle au niveau international [1].

L'appareil IOM, développé par Mark et Vincent à « l'Institute of Occupational Medicine » [2], appartient à cette famille d'échantillonneurs de la fraction inhalable. Il a fait l'objet de plusieurs séries de mesures d'efficacité d'échantillonnage dans deux tunnels aérauliques en Grande Bretagne, où il était monté sur un mannequin de taille humaine en rotation lente autour de son axe vertical [2 - 4]. La grande dispersion des résultats, l'absence de données expérimentales relatives à l'appareil IOM isolé (sans la présence du mannequin), et enfin le besoin de simplifier les essais nécessaires à la détermination des performances des échantillonneurs individuels, nous ont conduit à entreprendre une nouvelle étude.

L'étude a été menée en deux parties distinctes : la première visait à déterminer l'efficacité d'échantillonnage de l'appareil IOM isolé, pour deux vitesses de vent extérieur ($W = 1$ et 3 m.s^{-1}) et pour trois angles d'orientation θ de son axe d'aspiration par rapport à l'écoulement ($\theta = 0^\circ, 45^\circ$ et 90°). La deuxième partie de l'étude a consisté à mesurer l'efficacité d'échantillonnage de l'appareil pivotant sur lui-même autour d'un axe vertical, afin d'intégrer l'effet d'orientation. Par ailleurs, on a observé l'influence d'un obstacle simple situé à l'arrière de l'échantillonneur.

METHODE EXPERIMENTALE

Description de l'échantillonneur IOM

Le diamètre du corps de l'appareil IOM est de 37 mm. Il contient une cassette de diamètre 25 mm dans laquelle est positionné le filtre de collection. L'aérosol est aspiré à un débit de 2 l.min^{-1} à travers un orifice d'aspiration de 15 mm de diamètre, ce qui correspond à une vitesse moyenne d'aspiration $U_s = 19 \text{ cm.s}^{-1}$. En utilisation courante, la masse des particules collectées est déterminée par pesée de la cassette, ce qui permet de prendre en compte le dépôt sur le filtre et le dépôt sur les parois internes de la cassette.

Procédure expérimentale de mesure de l'efficacité d'échantillonnage

Les expériences ont été réalisées dans un tunnel aéraulique horizontal de section circulaire de 30 cm de diamètre permettant d'atteindre des vitesses de vent extérieur de 0,5 à 4 m.s^{-1} . La zone de mesure est située à proximité immédiate de l'extrémité du tunnel. L'intensité de turbulence dans la zone de mesure était de l'ordre de 5 %, valeur pour laquelle les effets de la turbulence sur l'échantillonnage sont négligeables [5]. L'aérosol utilisé dans l'étude était un aérosol polydispersé, constitué de microsphères de verre. Ces dernières étaient générées par un lit fluidisé permettant d'obtenir une concentration stable en sortie du tunnel entre 20 et 40 mg.m^{-3} .

La méthodologie expérimentale a été mise au point par Witschger *et al.* [6, 7]. Le prélèvement de référence permettant de déterminer les caractéristiques de l'aérosol d'essai a été effectué à l'aide d'une sonde isocinétique à bord mince possédant un orifice circulaire de 10,7 mm de diamètre. Pour déterminer la concentration et la distribution granulométrique de l'aérosol, les particules déposées sur le filtre et également à l'intérieur du corps de la sonde ont été prises en compte. Les mesures relatives à l'aérosol d'essai et à l'aérosol échantillonné avec le dispositif étudié ont été effectuées soit à l'aide de deux prélèvements parallèles, soit à l'aide de deux prélèvements séquentiels. Le choix était guidé par la nécessité de collecter une masse de matière de l'ordre de 5 mg dans chaque cas pour l'analyse granulométrique. Pour les expériences réalisées avec deux prélèvements parallèles, l'efficacité a été corrigée par un coefficient de variabilité spatiale déterminé au préalable pour chaque vitesse de vent extérieur. Dans le cas de deux prélèvements séquentiels, aucune correction n'a été nécessaire en raison de la bonne stabilité temporelle de l'aérosol. La variance inter-expériences de l'efficacité d'échantillonnage n'a pas été mesurée dans cette étude ; on peut rappeler cependant que Witschger [6] a obtenu dans le cas d'une sonde à bord mince un coefficient de variation de l'efficacité de captage inférieur à 10 % pour $10 \mu\text{m} < D_{ae} < 50 \mu\text{m}$.

Les mesures relatives au dispositif IOM en rotation ont été réalisées en positionnant l'échantillonneur sur un plateau tournant à une vitesse de rotation ω constante. L'axe de rotation de l'équipage mobile était le diamètre vertical de l'orifice d'aspiration dans le plan de captage. L'échantillonneur était relié à une pompe individuelle de prélèvement, elle-même solidaire de l'équipage mobile.

La taille de l'obstacle visant à apprécier l'influence de la présence d'un opérateur a été choisie en respectant un taux de blocage acceptable dans la zone de mesure du tunnel. Cet obstacle était constitué d'une plaque circulaire mince de diamètre 11 cm correspondant à un taux de blocage de 13,5 %. Witschger *et al.* [8] ont utilisé pour leur part, dans une étude du champ de vitesse autour du même échantillonneur, une plaque rectangulaire de $33 \times 21 \text{ cm}^2$ dans un tunnel de plus large section, avec un taux de blocage plus faible (3 %).

La distribution en nombre des particules collectées en fonction de leur diamètre équivalent en volume D_v a été analysée à l'aide d'un compteur Coulter Multisizer® [9]. La conversion $D_v \rightarrow D_{ae}$ a été effectuée en utilisant une valeur de masse volumique des microsphères de verre de $2,6 \text{ g.cm}^{-3}$.

RESULTATS ET DISCUSSION

1. Efficacité d'échantillonnage du dispositif IOM statique

L'efficacité d'échantillonnage a été mesurée pour deux vitesses de vent extérieur ($W = 1$ et 3 m.s^{-1}) et pour trois orientations : $\theta = 0^\circ$ (face au vent), $\theta = 45^\circ$ et $\theta = 90^\circ$. Les résultats relatifs à $W = 1 \text{ m.s}^{-1}$ sont représentés graphiquement dans la Figure 1 avec leur intervalle de confiance au niveau 95 %. Dans la même figure ont été également reportés les points expérimentaux obtenus avec une sonde à bord mince de diamètre 14,80 mm opérant au même débit face au vent, ainsi que la courbe conventionnelle définissant la fraction inhalable.

L'efficacité d'échantillonnage est nettement supérieure à l'unité pour $\theta = 0^\circ$, ce qui est attendu dans le cas d'un prélèvement subsocinétique ($R = W/U_s = 5,32$) en raison de l'enrichissement local de particules au niveau de l'orifice par effet d'inertie. L'efficacité augmente d'ailleurs progressivement avec le diamètre aérodynamique des particules. On ne constate pas dans ces conditions expérimentales de différences significatives de comportement entre l'échantillonneur IOM et la sonde à bord mince. Pour des angles $\theta > 0^\circ$ l'efficacité diminue sensiblement jusqu'à s'annuler pratiquement pour $D_{ae} > 30 \mu\text{m}$ lorsque l'échantillonneur est orienté perpendiculairement à l'écoulement.

La Figure 2 présente les résultats correspondant à $W = 3 \text{ m.s}^{-1}$ ($R = 16$). On constate une amplification de l'excès d'échantillonnage des particules par effet d'inertie jusqu'à $\theta = 45^\circ$. Il apparaît par contre une différence entre l'échantillonneur IOM et la sonde pour $\theta = 0^\circ$. La sonde à bord mince présente une efficacité plus importante pour $20 \mu\text{m} < D_{ae} < 40 \mu\text{m}$. L'épaisseur du corps de l'échantillonneur a pour effet d'élargir le tube de courant qui diverge à son approche. Les particules normalement captées par l'orifice se trouvent alors progressivement éloignées de l'axe d'aspiration en amont de l'orifice et échappent à celui-ci.

Ces résultats montrent que l'efficacité d'échantillonnage du dispositif IOM statique dépend fortement de la vitesse et de la direction du vent extérieur.

2. Efficacité d'échantillonnage du dispositif IOM en rotation

L'efficacité d'échantillonnage a été mesurée pour deux vitesses de rotation $\omega = 1/6$ et 2 tours.min^{-1} , avec et sans obstacle, et pour deux vitesses de vent extérieur : $W = 1$ et 3 m.s^{-1} . Les résultats sont représentés graphiquement sur les Figures 3 et 4.

A 1 m.s^{-1} l'efficacité d'échantillonnage est inférieure à l'unité pour toutes les configurations. Une différence significative est observée entre les résultats obtenus pour les deux vitesses de rotation à cette vitesse de vent et pour $D_{ae} > 20 \mu\text{m}$. Cette différence n'existe plus à 3 m.s^{-1} . Il semble donc que la composante de vitesse induite par la rotation ne soit pas négligeable par rapport à la résultante de la vitesse d'aspiration et de la vitesse du vent. Cette composante est d'autant plus importante que le point considéré au voisinage du corps de l'échantillonneur est éloigné de l'axe de rotation. Pour une faible vitesse de vent extérieur, la rotation de l'équipage mobile à 2 tours.min^{-1} entraîne probablement une perturbation du champ de vitesse au voisinage de l'échantillonneur susceptible d'affecter l'efficacité d'échantillonnage.

On observe une diminution très nette de l'efficacité d'échantillonnage en présence de l'obstacle situé à l'arrière du dispositif IOM quelle que soit la vitesse du vent. Ceci confirme bien le rôle non négligeable joué par la présence d'un système élargissant davantage le champ de vitesse, phénomène déjà observé et commenté précédemment au sujet de la comparaison de l'échantillonneur IOM avec la sonde à bord mince.

Afin de comparer les résultats obtenus en présence du disque à 1 m.s^{-1} et ceux des études précédentes [10], on a reporté l'ensemble des valeurs dans la Figure 5 ainsi que la courbe conventionnelle inhalable. Les points expérimentaux correspondant à une vitesse de rotation de 2 tours.min^{-1} sont effectivement assez proches de cette courbe conventionnelle. Les points obtenus avec une vitesse de rotation plus faible, a priori moins perturbatrice, s'écartent davantage de la courbe et correspondent à des valeurs plus faibles d'efficacité d'échantillonnage au delà de $20 \mu\text{m}$.

CONCLUSION

Cette étude a permis d'obtenir des informations expérimentales relatives au comportement de l'échantillonneur IOM dont certaines complètent les données disponibles. On a pu montrer notamment la forte dépendance de l'efficacité d'échantillonnage du dispositif statique avec la vitesse et la direction du vent extérieur. La détermination de l'efficacité d'échantillonnage du dispositif en rotation, montage destiné à intégrer l'effet d'orientation, est sensible à la vitesse angulaire ω . Il conviendrait donc de porter une grande attention à ce paramètre lors d'études ultérieures. Le comportement de l'appareil est altéré par

la présence d'un obstacle situé à l'arrière de l'échantillonneur, même s'il est de petite dimension. Les résultats obtenus dans ces conditions sont assez proches des valeurs mesurées avec l'aide d'un mannequin dans un tunnel de grandes dimensions. La précision des données expérimentales de notre étude a été évaluée ; elle apparaît meilleure que la dispersion des résultats antérieurs. Tous ces faits laissent présager la possibilité de simplifier à l'avenir les tests de performance de petits systèmes d'échantillonnage en utilisant des installations de plus petite taille.

-
- [1] CEN (Comité Européen de Normalisation) (1993) European Standard EN 481. Workplace atmospheres – Size fraction definitions for measurement of airborne particles. CEN, Brussels.
 - [2] Mark, D., and Vincent, J.H. (1986) A new personal sampler for airborne total dust in workplaces. *Ann. Occup. Hyg.*, **30** (1), 89-102.
 - [3] Kenny, L.C. (1995) Pilot study of CEN protocols for the performance testing of workplace aerosol sampling instruments. Final report of the MATI-CT92-0047 European study, H.S.E., London.
 - [4] Kenny, L.C. *et al.* (1997) A collaborative European study of personal inhalable aerosol sampler performance. *Ann. Occup. Hyg.*, **41** (2), 135-153.
 - [5] Wiener, R.W., Okazaki, K. and Willeke, K. (1988) Influence of turbulence on aerosol sampling efficiency. *Atm. Environ.*, **22** (5), 917-928.
 - [6] Witschger, O. (1996) Etude théorique et expérimentale des facteurs physiques d'échantillonnage des polluants particulaires - Application aux capteurs à fente annulaire. Thèse de doctorat en science, Université de Paris XII.
 - [7] Witschger, O., Wrobel, R., Fabriès, J.F., Görner, P. and Renoux, A. (1997) A new experimental wind tunnel facility for aerosol sampling investigations. *J. Aerosol. Sci.*, **28** (5), 833-851.
 - [8] Witschger, O., Willeke, K., Grinshpun, S.A., Aizenberg, V., Smith, J., Baron, P.A. (1998) Simplified method for testing personal inhalable aerosol samplers. *J. Aerosol. Sci.*, in Press.
 - [9] Lines, R.W. (1991) The electrical sensing zone method (The Coulter Principle). In : *Particle Size Analysis*, editor : N.G. Stanley-Wood. R.W. Lines, Royal Society of Chemistry, London.
 - [10] Mark, D., Lyons, C.P., Upton, S.L., and Kenny, L.C. (1994) Wind tunnel testing of the sampling efficiency of personal inhalable aerosol samplers. *J. Aerosol. Sci.*, **25** (Suppl. 1), S339-S340.

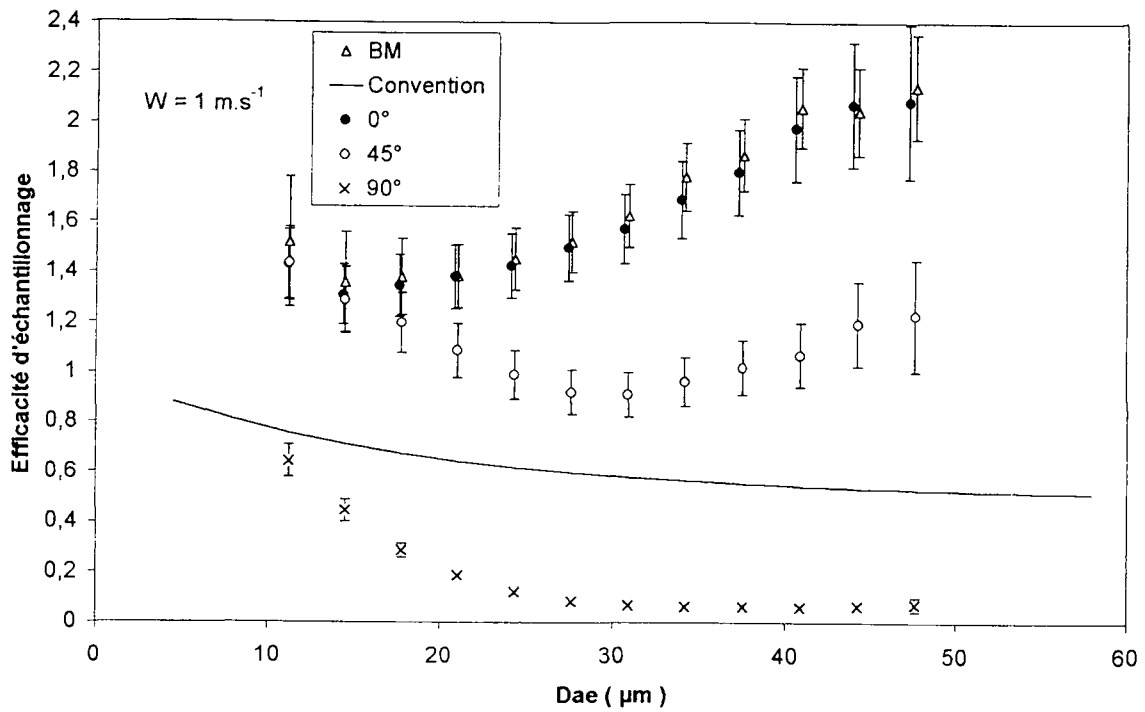


Figure 1 : Efficacité d'échantillonnage de l'appareil IOM en fonction du diamètre aérodynamique des particules pour $W = 1 \text{ m.s}^{-1}$, $\theta = 0^\circ$, 45° et 90° et $R = 5,32$. Comparaison à une sonde à bord mince (BM) de 14,80 mm de diamètre face au vent.

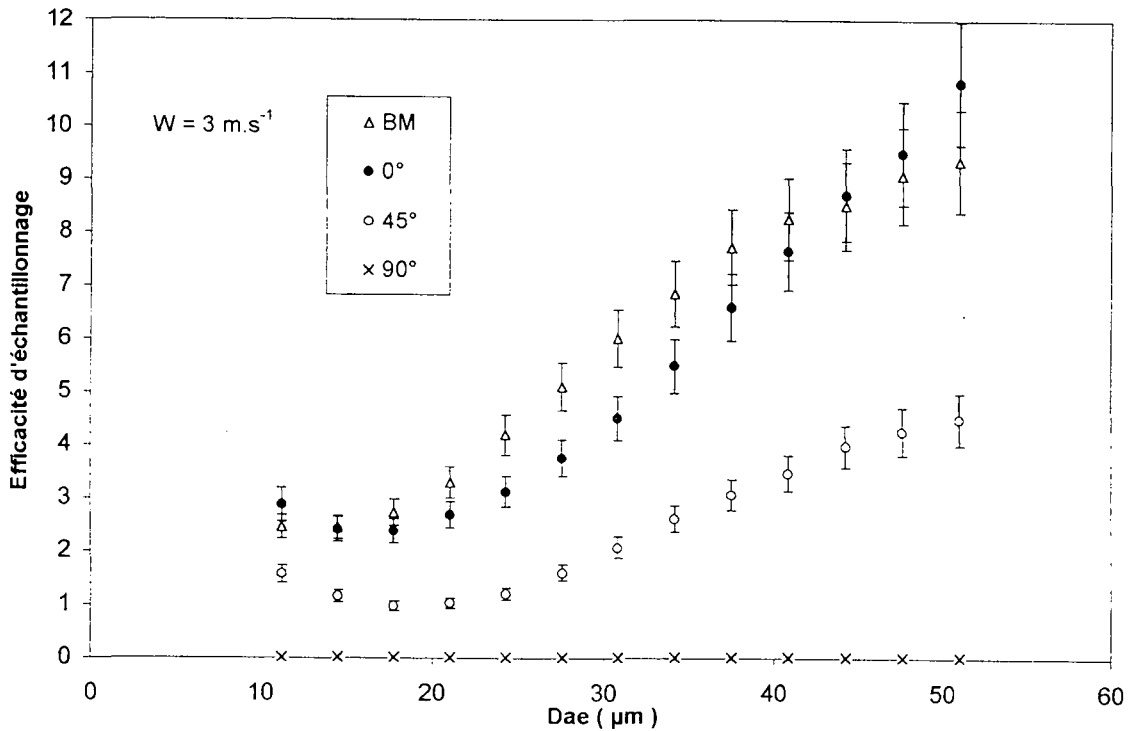


Figure 2 : Efficacité d'échantillonnage de l'appareil IOM en fonction du diamètre aérodynamique des particules pour $W = 3 \text{ m.s}^{-1}$, $\theta = 0^\circ$, 45° et 90° et $R = 16$.

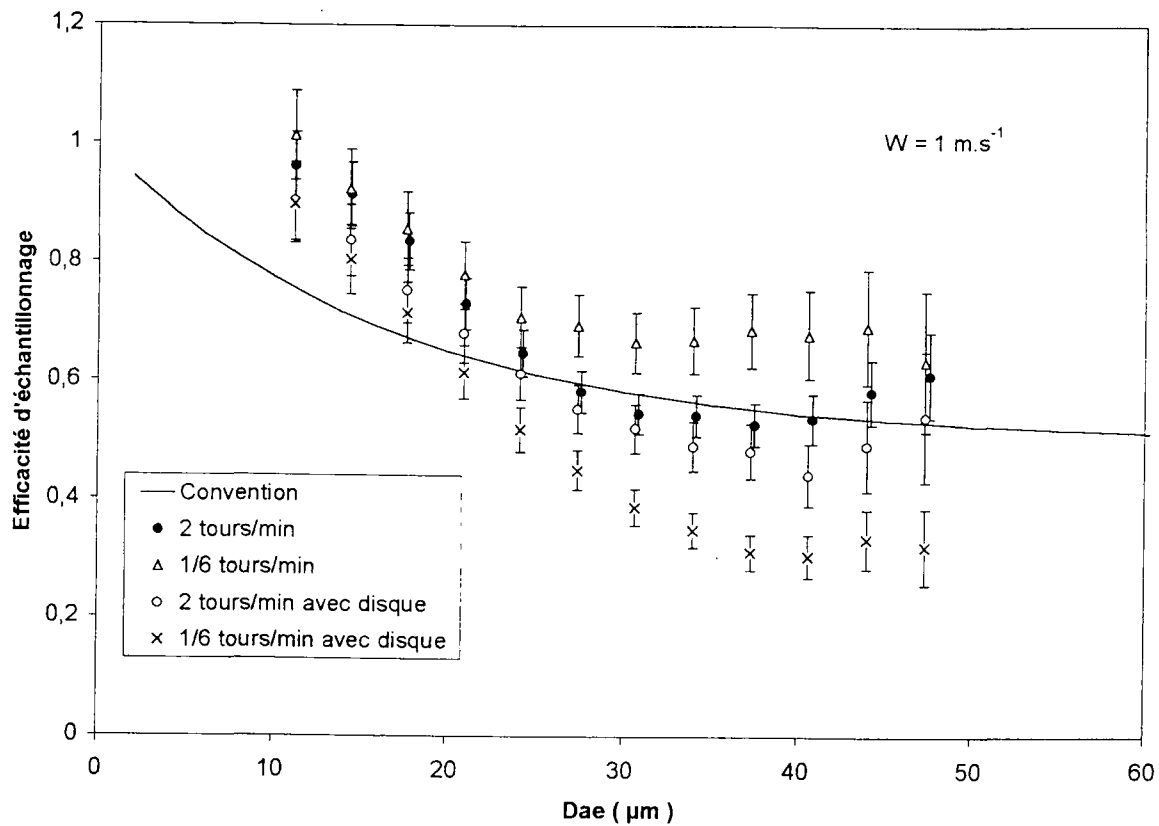


Figure 3 : Mise en évidence de l'influence de la vitesse de rotation ω et d'un obstacle sur l'efficacité d'échantillonnage de l'appareil IOM. $W = 1 \text{ m.s}^{-1}$, $\omega = 2$ et $1/6 \text{ tours.min}^{-1}$.

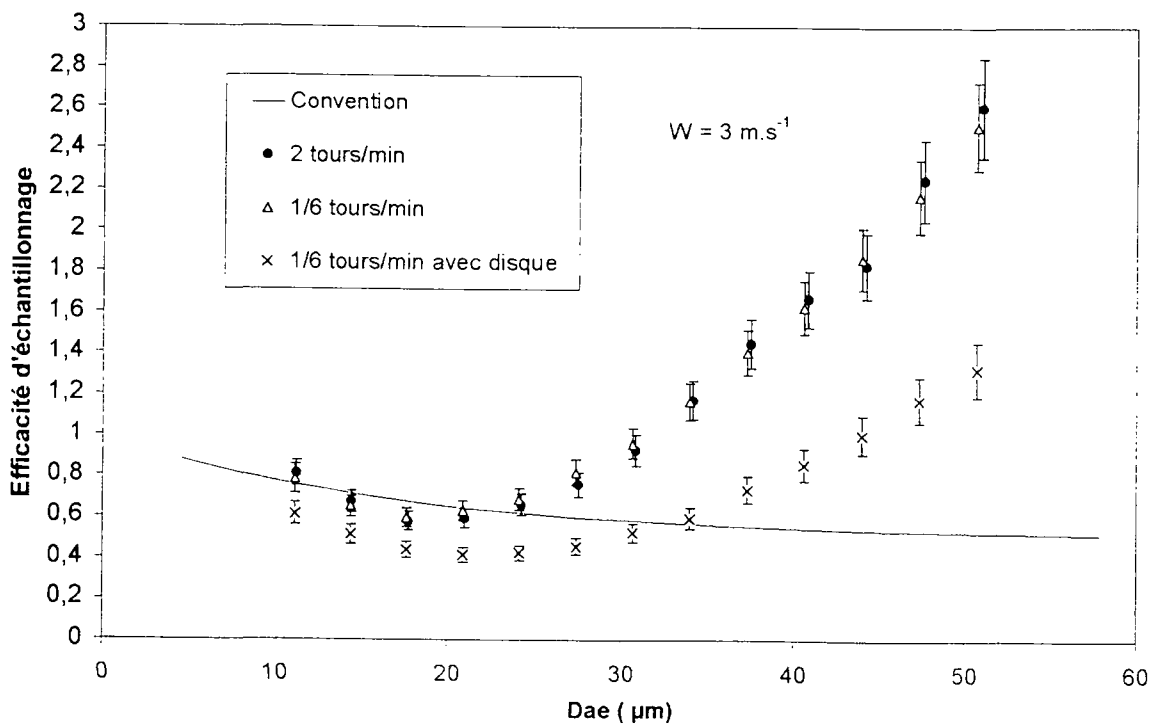


Figure 4 : Mise en évidence de l'influence de la vitesse de rotation ω et d'un obstacle sur l'efficacité d'échantillonnage de l'appareil IOM. $W = 3 \text{ m.s}^{-1}$, $\omega = 2$ et $1/6 \text{ tours.min}^{-1}$.

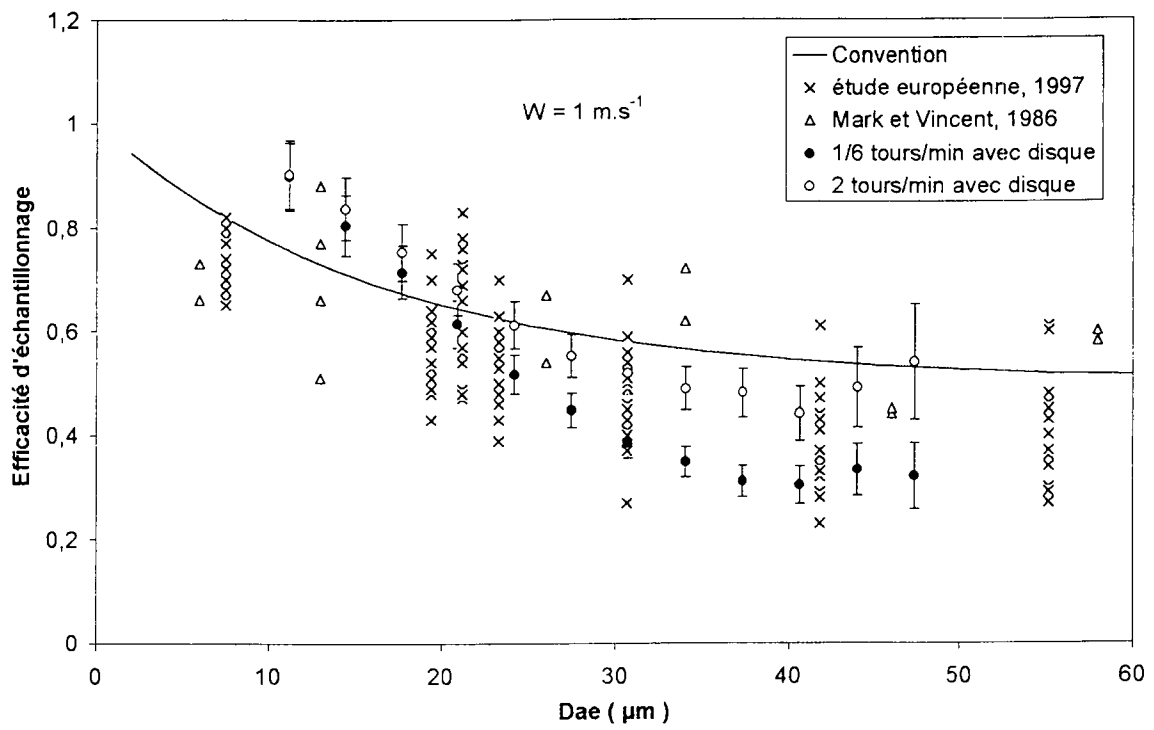


Figure 5 : Comparaison de l'efficacité d'échantillonnage de l'appareil IOM aux résultats de l'étude européenne et de Mark *et al.* [10]. $W = 1 \text{ m.s}^{-1}$, avec obstacle et $\omega = 2$ et $1/6 \text{ tours.min}^{-1}$.

INTERCOMPARAISON DE METHODES DE MESURE DE LA DISTRIBUTION EN TAILLE DES PRODUITS A VIE COURTE DU RADON DANS DIFFERENTES CONDITIONS AMBIANTES

C. HUET*, G. TYMEN*, A. REINEKING**, J. WENDT**, N. MICHIELSEN***

* U.B.O, Laboratoire de Recherches Appliquées Atmosphère-Hydrosphère, Faculté des Sciences et Techniques, B.P. 809, 29285 Brest Cedex France

** Isotopenlaboratorium für biologische und medizinische Forschung, Universität Göttingen, Burckhardtweg 2, D-37077 Göttingen Allemagne

*** 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: inter-comparison of measurement methods of the short-live radon decay products size distribution in different ambient conditions. As part of the european program RARAD dealing with risk due to exposure to radon decay products, an inter-comparison campaign of measurement methods of these radionuclides size distribution in air was organised in May 1997 in a house located in Brittany. The sampling techniques used were the SDI-2001 (consisting of four stages of an Andersen impactor followed by five granular beds in parallel) and a LowPressure Bernercascade impactor with cut-off diameters ranging respectively from 14 to 4500 nm and from 60 to 8082 nm. Experimentations were carried out using different aerosol sources: aged aerosol, burning candles, cigar smoke, fumigating sticks. First results are presented and discussed in this paper.

Radon progeny, attached size distribution

I- Introduction

Le Radon-222 est un gaz rare 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, par désintégrations successives, il donne naissance au Po-218, au Pb-214, au Bi-214 et au Po-214 qui sont appelés produits de filiation à vie courte du Radon-222. Ce sont des particules solides qui peuvent se fixer aux particules aérosols de l'air ambiant. Leur inhalation et leur déposition à l'intérieur des voies respiratoires peuvent alors conduire à l'irradiation interne de l'individu.

Ces dernières années, de nombreuses études se sont développées de façon à calculer la dose reçue par un individu. Il a été montré que la distribution en taille des descendants du radon influait de façon sensible sur ce calcul d'où la nécessité de connaître plus précisément ce paramètre afin que le calcul de dose soit le plus réaliste possible.

Ainsi dans le cadre du programme européen RARAD portant sur l'évaluation du risque lié à l'exposition aux descendants du radon, une campagne d'intercomparaison de méthodes permettant de déterminer, entre autres, la distribution dimensionnelle de ces

radioéléments dans l'air, a été organisée en mai 1997 dans une maison de traditionnelle de Bretagne.

Ce papier présente tout d'abord les différentes techniques utilisées par notre laboratoire (LARAAH, Université de Brest) et le " Isotopenlaboratorium" (l'Université de Göttingen) puis décrit les conditions expérimentales rencontrées tout au long de cette campagne et enfin présente les premiers résultats obtenus.

II- Méthodes utilisées

La collection de l'aérosol radioactif s'effectue à l'aide de deux systèmes d'échantillonnage. Le LARAAH utilise le SDI-2001, mis au point au LPMA (IPSN/CEA) (Diouri, 1987), composé de quatre étages d'un impacteur Andersen suivi de cinq lits granulaires placés en parallèle, tandis que le laboratoire de Göttingen échantillonne au moyen d'un impacteur Berner basse pression à neuf étages. Les diamètres de coupure des différents étages des deux appareils sont consignés dans le tableau 1.

Etage	SDI-2001 (nm)	Berner (nm)
1	4500	8082
2	1750	4243
3	620	2356
4	350	1137
5	174	589
6	60	392
7	36	150
8	14	60
9	canal de référence	filtre de référence

Tableau 1: Diamètres de coupure du SDI-2001 et de l'impacteur Berner

Après les prélèvements, les activités volumiques de chaque descendant du radon sont déterminées sur chaque étage à l'aide d'une méthode de comptage global (méthode TELS développée par Hartley et al. (1989)) que nous avons adaptée à notre dispositif. L'équipe de Göttingen utilise elle une technique de spectroscopie alpha.

Pour reconstruire la distribution en taille des descendants du Radon-222 dans la gamme de taille couverte par les dispositifs utilisés, nous nous servons des algorithmes d'inversion non-linéaire Twomey (1963) et EVE (Paatero, 1990) tandis que l'équipe de Göttingen utilise l'algorithme SIMPLEX (Nelder et Mead, 1965).

III- Conditions expérimentales

Pendant l'intercomparaison, l'activité en radon a varié entre 500 et 1200 Bq.m⁻³ pour une température de l'ordre de 25° C et une hygrométrie de 50%. Nous avons opéré avec différents types d'aérosols: d'une part l'aérosol ambiant naturel (considéré comme âgé) et d'autre part des sources artificielles d'aérosols telles que les bougies, la fumée de cigare et les bâtons d'encens afin de créer des centres d'attachement. La concentration en particules a été mesurée en continu à l'aide d'un CNC 3022. La figure 1 décrit la variation de la concentration en particules durant la période d'étude.

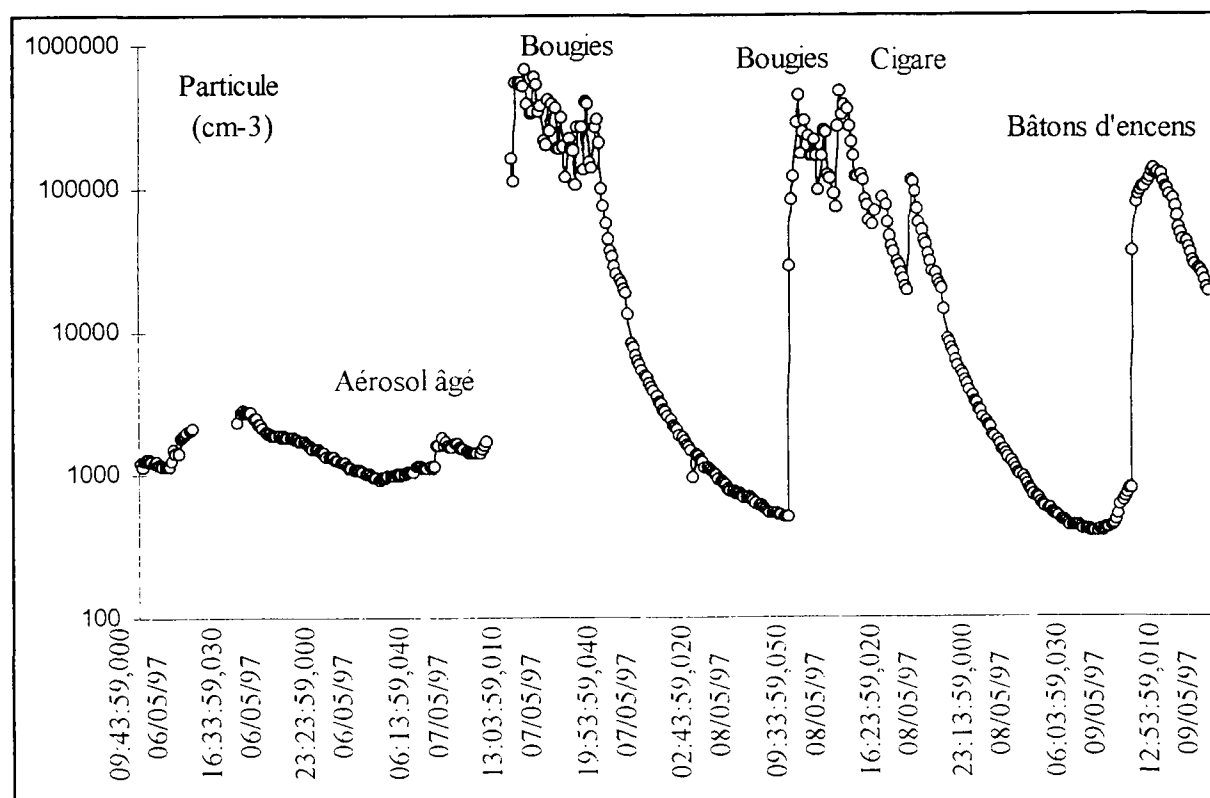


Figure 1: Variation de la concentration en particules

Les deux premiers jours, les expérimentations se sont déroulées avec l'aérosol naturel. Nous pouvons observer que sans source d'aérosols, la concentration en particules dans la pièce est particulièrement basse, de l'ordre de 2000 particules/cm³. Lorsqu'on utilise successivement les bougies, la fumée de cigare et les bâtons d'encens, la concentration augmente considérablement pour atteindre des valeurs autour de 500 000

particules/cm³. Par la suite, la baisse des concentrations pendant la nuit met en évidence le phénomène de coagulation.

Pour chaque type d'aérosol, les expériences ont été réalisées à plusieurs reprises, les prélèvements se déroulant simultanément pour les deux appareils.

IV- Résultats

Pour chaque expérience réalisée, les distributions en dimension en EAP (Energie Alpha Potentielle), en Po-218, en Pb-214 et en Bi-214 ont été reconstruites. Nous observons que les distributions des radioéléments sont à peu près similaires entre-elles et diffèrent peu de celles de l'EAP, comme cela a déjà été mis en évidence par d'autres résultats (Reineking et al 1988). Aussi nous présentons seulement les premières données disponibles pour l'EAP.

Le tableau 2 récapitule les résultats obtenus sur le diamètre médian en activité (AMD) et le diamètre médian aérodynamique en activité (AMAD) pour les différents modes dimensionnels (mode fin au dessous de 100 nm et mode accumulation au dessus) correspondants à l'EAP dans les différentes conditions citées précédemment. Ces valeurs sont obtenues à partir des distributions en taille reconstruites par chaque laboratoire.

	GÖTTINGEN					BREST				
	Mode fin	Mode d'accumulation			Mode fin	Mode d'accumulation				
Aérosol	fraction	AMAD nm	σ_g	fraction	AMD nm	σ_g	fraction	AMAD nm	σ_g	fraction
âgé	0,28	285	2,8	0,72	59	1,5	0,35	494	1,5	0,6
bougies (7 mai)	0,15	148	1,7	0,85				159	1,4	1
bougies (8 mai)	0,15	157	2,2	0,84	72	1,5	0,4	354	1,4	0,6
bougies (sue)	0	150	1,7	1	63	1,4	0,8	504	1,5	0,2
fumée de cigare	0,15	221	1,6	0,85	–	–	–	274	1,6	1
bâtons d'encens	0,36	253	1,6	0,64	–	–	–	259	1,4	1

Tableau 2: Résultats sur l'Energie Alpha Potentielle

Ces résultats montrent une assez bonne concordance en ce qui concerne l'aérosol âgé. En effet, même si les deux modes d'accumulation sont un peu différents, les deux équipes notent la présence d'un mode fin avec une fraction de l'ordre de 30%. Les résultats concernant la fumée de cigare et les bâtons d'encens sont également comparables bien que nous ne trouvions aucun mode inférieur à 100 nm pour les bâtons d'encens. Par contre, les expériences réalisées avec les bougies posent un certain nombre

de questions. En effet, dans deux types de conditions à priori similaires sur deux jours consécutifs, les deux équipes trouvent un mode attaché équivalent autour de 150 nm dans un cas, alors que le lendemain les résultats diffèrent.

Nous pouvons tenter d'avancer quelques hypothèses pour expliquer les divergences rencontrées dans certaines expériences. Tout d'abord, les dispositifs de prélèvement et les techniques d'inversion des données sont différentes pour chaque équipe. Par ailleurs, précisons que les deux appareils de prélèvement se trouvent dans deux parties distinctes de la pièce à quelques mètres de distance l'un de l'autre. Lorsque des particules d'aérosols sont générées en des points bien précis de la salle, on peut se demander si la répartition dimensionnelle de celles-ci peut être considérée comme homogène. Cette éventuelle inhomogénéité aurait alors une conséquence sur la distribution en taille de l'aérosol radioactif.

Un autre point de discussion concerne la densité des particules produites qui peut être différentes d'un aérosol à l'autre. Cela a pour conséquence de modifier les conditions d'impaction à la fois dans le SDI et l'impacteur Berner et donc la répartition de l'activité alpha sur les différents étages. Ce point nécessite cependant une discussion plus poussée.

Les distributions en taille par situation expérimentale quant à elles, n'ont pas encore fait l'objet d'une analyse comparative détaillée entre les deux équipes. A titre d'exemple la figure 2 montre un exemple de distribution en taille de l'EAP pour la fumée de cigare.

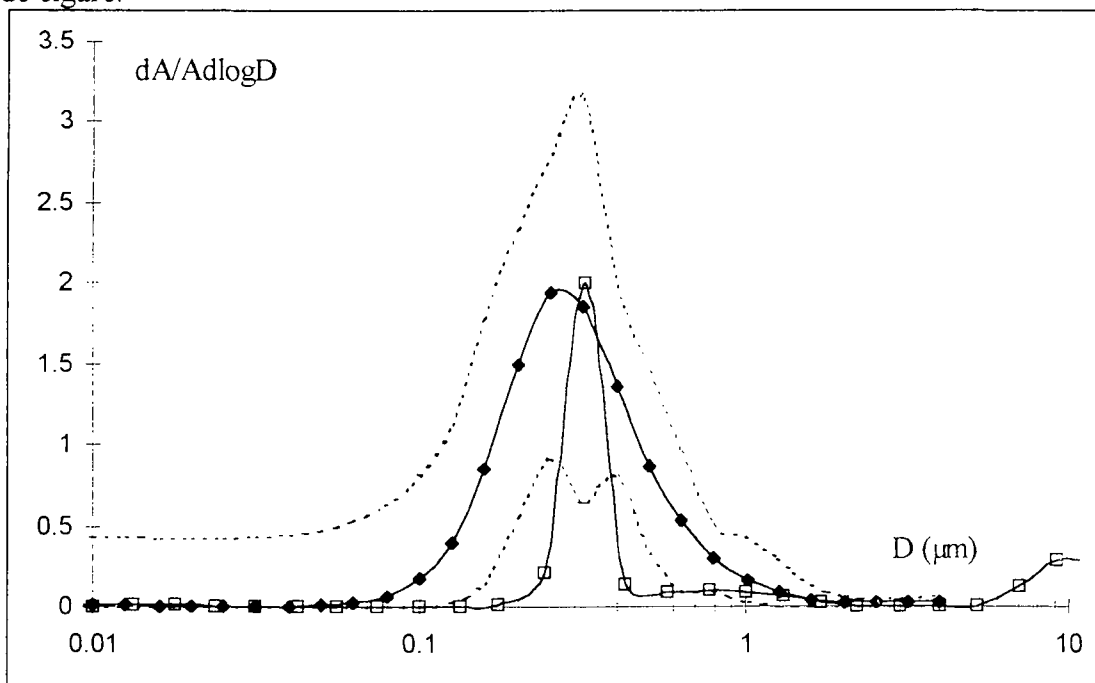


Figure 2: Distribution en taille de l'EAP pour la fumée de cigare

V- Conclusion

Une intercomparaison, des méthodes de mesure de la distribution en taille de la composante attachée des dérivés du radon, a été organisée en mai 1997 dans une habitation traditionnelle de Bretagne. Durant cette semaine, différentes sources d'aérosols ont été utilisées.

Les premiers résultats montrent un bon accord en ce qui concerne les sources diffuses (aérosol ambiant, fumée de cigare). Par contre, des divergences sont rencontrées pour les sources ponctuelles (bougies, bâtons d'encens). Quelques hypothèses sont avancées pour tenter d'expliquer ces différences (différences dans les techniques d'échantillonnages et de traitement des données, inhomogénéité des concentrations, et densité des particules). D'autres investigations sont indispensables pour affiner l'intercomparaison.

Références

- Diouri M. (1987). Contribution à l'étude aérodynamique des aérosols. Mise au point d'un spectromètre diffusionnel et inertiel, *Thèse de l'Université de Paris XII*.
- Hartley B.M., Hartley M. I. (1989). A new method for the determination of the activity of short half-life descendants of radon, *Radiological Protection*, vol.9, pp.165-177.
- Nelder A., Mead R. (1965). A simplex method for function minimization, *Comput. J.*, vol. 7, pp. 308-312.
- Paatero P. (1990). The Extreme Value Estimation deconvolution method with application to aerosol research, University of Helsinki, *Report series in Physics*, HU-P-250.
- Reineking A., Becker K.H., Porstendörfer J. (1988). Measurements of the short-lived radon daughters in the indoor and outdoor environment, *Rad. Prot. Dosim.*, vol. 24, pp. 245-250.
- Twomey S. (1963). On the numerical of Fredholm integral equations of the first kind by the inversion of the linear system produced by quadrature, *Journal Assoc. Computing Mach.*, vol.10, pp.97-101.

METHODES DE DISCRIMINATION DES COMPOSANTES NATURELLES
ET INDUSTRIELLES DE L'EXPOSITION AU RADON-222 DANS LE CHAMP PROCHE
DE DEPOT DE RESIDUS D'EXTRACTION ET DE TRAITEMENT D'URANIUM.

KEROUANTON D., ROBÉ M.C., BELOT, Y., RICHON P., BÉNEÏTO, A.,

FERRY C., HARISTOY, D., LABED, V.

Laboratoire d'Études et d'Intervention sur le Radon et les Polluants Atmosphériques,

IPSN/DPRE/SERGD, BP6, 92265 Fontenay-aux-Roses cedex

Le radon-222 est un gaz rare radioactif naturel omniprésent à la surface de la terre. Les sites de stockage de résidus d'extraction et de traitement des minerais d'uranium peuvent constituer des sources anthropogéniques de radon qui s'ajoutent au bruit de fond naturel. Une nouvelle directive européenne vise à limiter l'exposition annuelle ajoutée par les pratiques industrielles à 1 mSv. Aussi, en vue de respecter cette directive, il est important de suivre le devenir du Rn-222 et de ses descendants à vie courte (Po-218, Pb-214, Bi-214) dans le champ proche des dépôts de résidus miniers et de développer des méthodes permettant la discrimination des composantes naturelles et artificielles de cette exposition.

Pour cela, nous avons développé une méthode originale basée sur la comparaison des rapports d'activité volumique entre le radon-222 et ses descendants dans le champ proche d'un dépôt de résidus miniers ainsi que dans l'environnement naturel. De manière générale, on constate que les concentrations relatives des descendants (par rapport au radon) sont beaucoup plus faibles dans le voisinage immédiat des dépôts de résidus que dans l'environnement, notamment, en ce qui concerne le Bi-214.

Si on mesure le rapport d'activité volumique entre le Bi-214 et le Rn-222, les valeurs observées sur le site de stockage sont de l'ordre de 0,1 contre 0,5 en moyenne dans l'environnement naturel proche. Si ces rapports restent stables au cours du temps, pour des conditions de dispersion atmosphérique données, il devrait alors être possible de discriminer l'origine du radon. Le présent article décrit la méthode expérimentale développée, présente les premiers résultats observés sur une période de plusieurs mois et les compare aux résultats obtenus dans la littérature.

Influence de la gravité dans les analyseurs différentiels de mobilité électrique. Développement d'une méthode permettant de déterminer la densité et la masse des aérosols.

E. LE BRONEC¹, A. RENOUX¹, D. BOULAUD², M. POURPREX²,
1 Université Paris XII,
Laboratoire de Physique des aérosols et de Transfert de Contaminations,
94010 Créteil, France
2 Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire,
Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols
CEA Saclay,
91 191 Gif sur yvette cedex, France

Abstract

Radial Flow Differential Mobility analysers select particles according to their electrical mobility. In order to take into account the effect of gravity in these analysers, we introduced the settling velocity in equations governing the behaviour of particles. We deduce a new transfer function taking into account the effect of gravity. Based on these theoretical results, we developed a new application. By simultaneously measuring the relaxation time and the electrical mobility of aerosols, we determined their diameter, their mass and therefore their density. This theory has been validated in previous works for monodispersed aerosol, then we now try to determinate the density of polydispersed aerosol. The agreement between the theoretical and the experimental values is good and the uncertainty less than 10%.

Introduction

Pour la caractérisation des particules submicroniques, les instruments fondés sur la mesure de la mobilité électrique sont, sans aucun doute, les appareils les plus utilisés. A partir des travaux de Knutson et Whitby (1975 a, b) sur les analyseurs différentiels de mobilité électrique, de nombreux chercheurs ont développé de nouvelles versions. (Winklmayr et al, 1991 ; Pourprix et al, 1994 ; Mesbah, 1994 ; Zhang et al, 1995). Les performances des analyseurs différentiels de mobilité sont généralement caractérisées par une fonction de transfert qui est définie comme la probabilité qu'une particule de mobilité donnée soit transmise au travers de l'Analyseur Différentiel de Mobilité Electrique (ADME) (Knutson et Whitby, 1975 a). Il est généralement admis, que pour les particules de dimensions comprises entre 40 et 1000 nm, la fonction de transfert suit approximativement la relation idéale établie pour la première fois par Knutson et Whitby (1975 a). Pour les particules les plus petites (<40nm) Kousaka et al (1985) ont montré expérimentalement que la fonction de transfert s'élargit de façon conséquente du fait du mouvement brownien des particules. Cet effet a été ensuite analysé théoriquement par Kousaka et al (1986) et Stolzenburg (1988). En revanche, peu d'études ont été consacrées à l'influence de la gravité sur les performances des analyseurs différentiels de mobilité électrique, exceptée l'approche de Tammet qui s'intéresse à l'effet de la gravité dans des condensateurs plans et cylindriques, et les travaux d'Emets et al (1992), qui se sont intéressés à l'effet de la gravité sur un ADME à écoulement axial placé horizontalement. Dans une première étude (Boulaud et al, 1996 ; Le Bronec et al, 1996, 1997), nous avons décrit théoriquement l'influence de la gravité dans les analyseurs de mobilité électrique et vérifié cette théorie pour des particules monodispersées. Dans cet article, à partir de cette précédente analyse, nous effectuons une validation expérimentale de notre théorie en déterminant la densité d'aérosols polydispersés grâce à un analyseur différentiel de mobilité électrique appelé SMEC (Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire).

Les analyseurs de mobilité électrique

Les analyseurs de mobilité électrique sont des appareils combinant des effets électrique et aérodynamique afin de sélectionner les aérosols en fonction de leur mobilité électrique Z ,

$$Z = neB ,$$

où e (charge élémentaire) = $1.602 \cdot 10^{-19}$ C,
 n : nombre de charges élémentaires de la particule,

B : mobilité dynamique de la particule :

$$B = \frac{C_u}{3\pi\mu D_p}$$

Cu 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.

$$Kn = \frac{2\lambda}{D_p}$$

Dans notre étude, nous allons utiliser un analyseur particulier : le Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire (SMEC), qui est un analyseur différentiel de mobilité à écoulement radial, développé par l'Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire du CEA.

Le Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire : SMEC (M. Pourprix et al (1994) ; B. Mesbah (1994))

Le SMEC (figure 1) est un appareil de symétrie cylindrique, composé de deux plaques métalliques circulaires séparées par une distance h, formant ainsi un condensateur plan. Une des deux plaques est portée à un certain potentiel électrique 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 interplaques 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 au champ électrique régnant entre les deux plaques. En ne considérant que ces deux forces, on sélectionne les particules en fonction de leur mobilité électrique Z et on les récupère au niveau de l'orifice d'extraction.

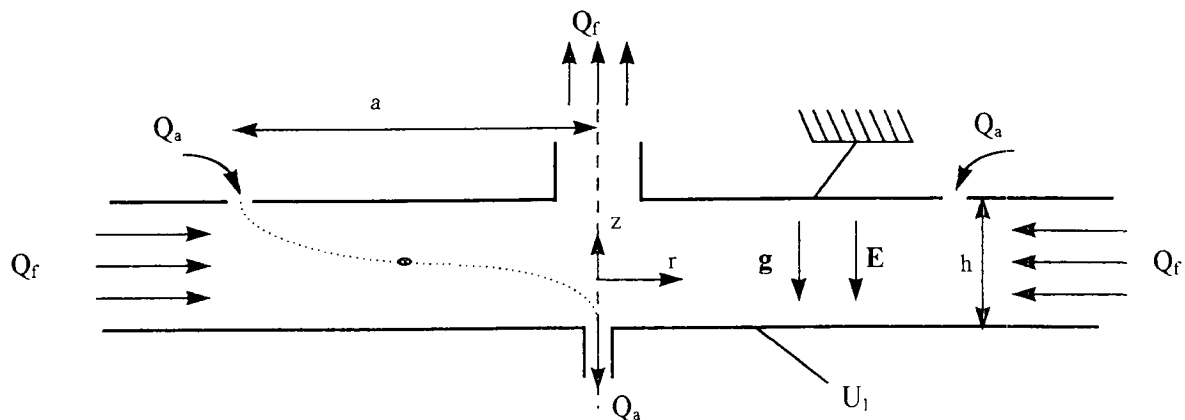


Figure 1

Introduction de la gravité

Notre objectif est de tenir compte également dans cet appareil de l'effet de la gravité dont on caractérise l'influence par le temps de relaxation τ de la particule de masse m.

$$\tau = mB$$

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. Il est donc possible de déterminer la fonction de transfert de l'analyseur incluant la gravité (Boulaud et al ,1996 ; Le Bronec et al , 1996, 1997) donnée par l'expression suivante :

$$P = (1/Q_a) \cdot \text{Max}[0, \min(Q_a, Q_a - |\pm 2\pi Z \Delta\Phi^* + 2\pi\tau\Delta\sigma^* + Q_f|)]$$

où $\Delta\Phi^*$ et $\Delta\sigma^*$ sont respectivement les fonctions de champ électrique et de champ de gravité intégrées entre l'entrée et la sortie de l'analyseur.

La fonction de transfert appliquée au SMEC

Développons l'expression précédente dans le cas du SMEC disposé avec l'orifice d'extraction d'aérosol sur le bas de l'appareil. Après détermination des expressions de $\Delta\Phi^*$ et de $\Delta\sigma^*$ en fonction des champs électrique et de gravité, nous pouvons déterminer la tension de sélection nécessaire :

$$|U_1| = \frac{\left(\frac{Qf}{2\pi} - \tau g \frac{a^2}{2}\right)}{Z \frac{a^2}{2h}} = \left(\frac{Qf}{\pi Ba^2} - mg\right) \frac{h}{ne}$$

Plaçons maintenant le SMEC avec l'injection d'aérosol sur le dessous de l'appareil. Nous obtenons une deuxième tension de sélection U_2

$$|U_2| = \frac{\left(\frac{Qf}{2\pi} + \tau g \frac{a^2}{2}\right)}{Z \frac{a^2}{2h}} = \left(\frac{Qf}{\pi Ba^2} + mg\right) \frac{h}{ne}$$

Effectuons le calcul de la tension moyenne et de l'écart,

$$\bar{U} = \frac{|U_2 + U_1|}{2} = \frac{Qfh}{\pi Ba^2 ne} = \frac{Qf}{2\pi Z} * \frac{2h}{a^2}$$

$$\Delta U = \frac{|U_2 - U_1|}{2} = \frac{mgh}{ne}$$

Deux remarques importantes peuvent être faites. Si on regarde uniquement la tension moyenne, on observe qu'elle n'est fonction que de la mobilité électrique de la particule. Par la procédure habituelle d'inversion de données, il est donc possible de remonter à son diamètre.

Si on regarde maintenant le ΔU , il apparaît que cet écart est fonction de la masse de la particule. Il est donc possible à partir de notre méthode de revenir au diamètre, à la masse et donc à la densité des aérosols.

Résultats expérimentaux

Afin de valider notre théorie, nous réalisons différentes expériences avec des aérosols polydispersés liquides. Notre dispositif expérimental est présenté figure 2. Nous générons, par atomisation, un aérosol de DOP ou de DHES. Cet aérosol polydispersé est naturellement chargé par l'atomisation et c'est cet état de charge que nous allons utiliser dans notre dispositif. Il va maintenant falloir l'analyser. Pour cela, nous utilisons un montage, dit en tandem, comprenant deux SMEC (figure 2). Nous plaçons le premier analyseur avec l'injection d'aérosol sur le haut de l'appareil. Un circuit fermé d'air propre comportant un débitmètre massique et un thermomètre électronique permet le contrôle des flux aérauliques. Le débit Q_f de fonctionnement de notre dispositif varie suivant la manipulation entre 1 l/mn et 3 l/mn. Le débit d'aérosol Q_a est fixé de façon à ce que le rapport Q_a/Q_f soit compris entre 0,025 l/mn et 0,1 l/mn. Ce dernier est régulé par le CNC. On rajoute donc au niveau du CNC une compensation variable et contrôlée de façon à obtenir le débit d'aérosol désiré. Une haute tension variable de 0 à 12 500 volts permet de sélectionner les aérosols suivant les formules précédentes. Si nous réalisons un balayage en tension de 0 à 10 000 volts par pas variant de 20 à 100 volts et que nous notons pour chaque tension la concentration obtenue au CNC, sur la sortie de ce premier SMEC nous obtenons la courbe de la figure 3. Sur cette dernière, nous remarquons, comme prévu, que notre aérosol est bien polydispersé et chargé par atomisation. Nous allons choisir de fixer une tension U_1 sur ce premier SMEC. Cette tension est volontairement élevée (entre 8000 et 12000 Volts) afin de sélectionner de grosses particules, donnant ainsi des effets de gravité plus importants. Dans ce premier cas, les champs électrique et de gravité agissent dans le même sens. La tension U_1 nécessaire pour sélectionner les particules considérées sera donc plus faible que dans le cas théorique où la gravité est négligée.

Nous allons maintenant envoyer les particules issue de cette première sélection dans le deuxième SMEC, dont l'injection d'aérosol est en bas. Nous réalisons alors la même manipulation que précédemment dans les mêmes conditions de débits. Nous obtenons la courbe de la figure 4. Nous remarquons que maintenant, pour sélectionner les mêmes particules que précédemment, il est nécessaire d'appliquer au SMEC une tension U_2 . Dans ce cas, les champs électrique et de gravité agissent en sens opposé. Il faut donc compenser la gravité en appliquant au SMEC une tension supérieure à la tension théorique hors gravité.

Nous allons maintenant calculer les ΔU et les tensions moyennes pour tous les aérosols considérés. A partir de ces deux valeurs nous pouvons remonter au diamètre, à la masse et donc à la densité de l'aérosol considéré. Nous comparons figure 5 les valeurs de densité trouvées par notre méthode, aux valeurs théoriques. Cette comparaison nous montre qu'il est possible, grâce à notre dispositif, de déterminer la densité d'un aérosol polydispersé avec une incertitude inférieure à 10%.

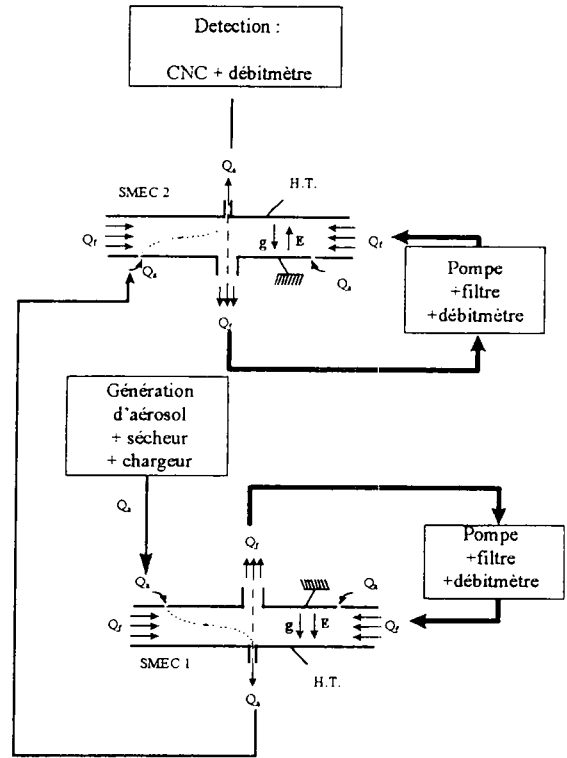


figure 2

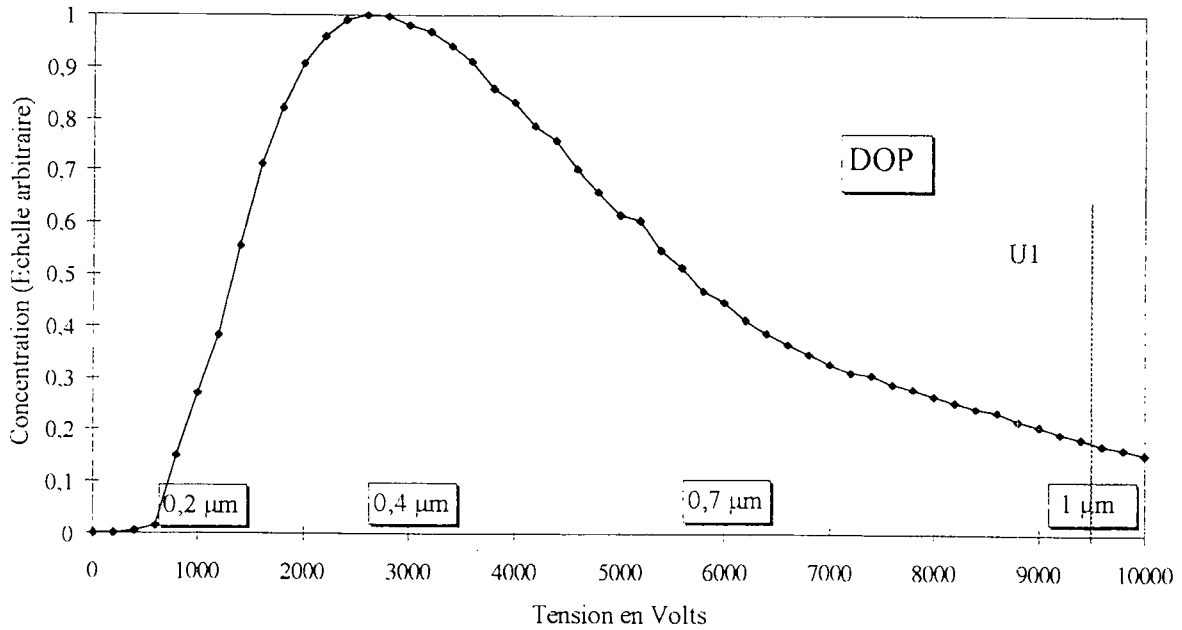


Figure 3

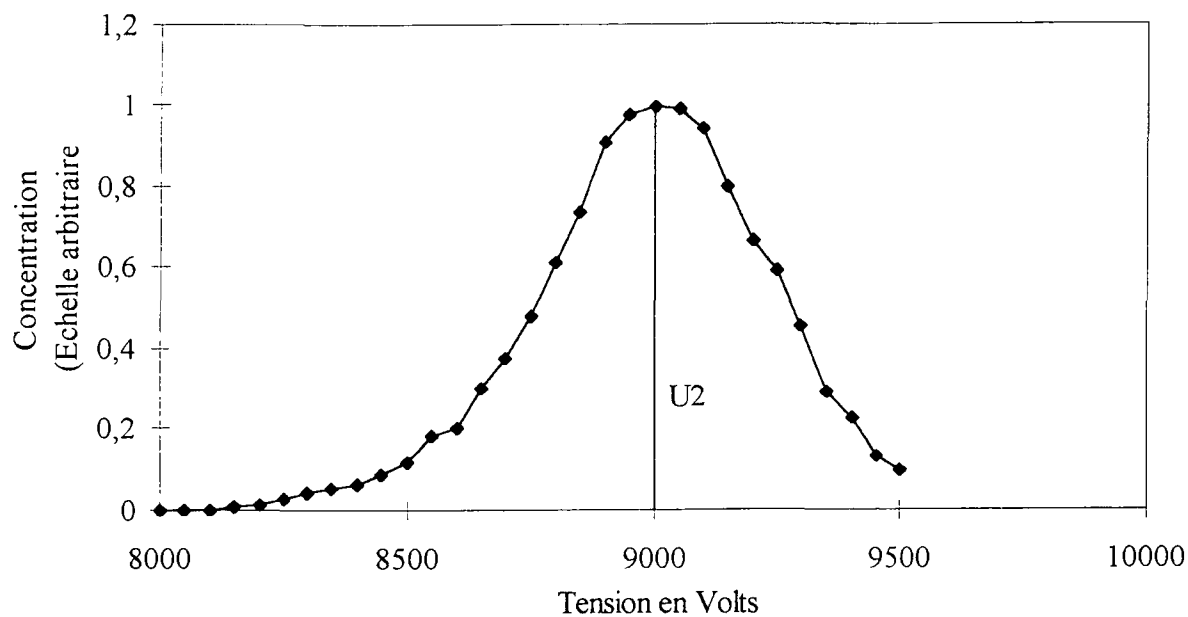


Figure 4

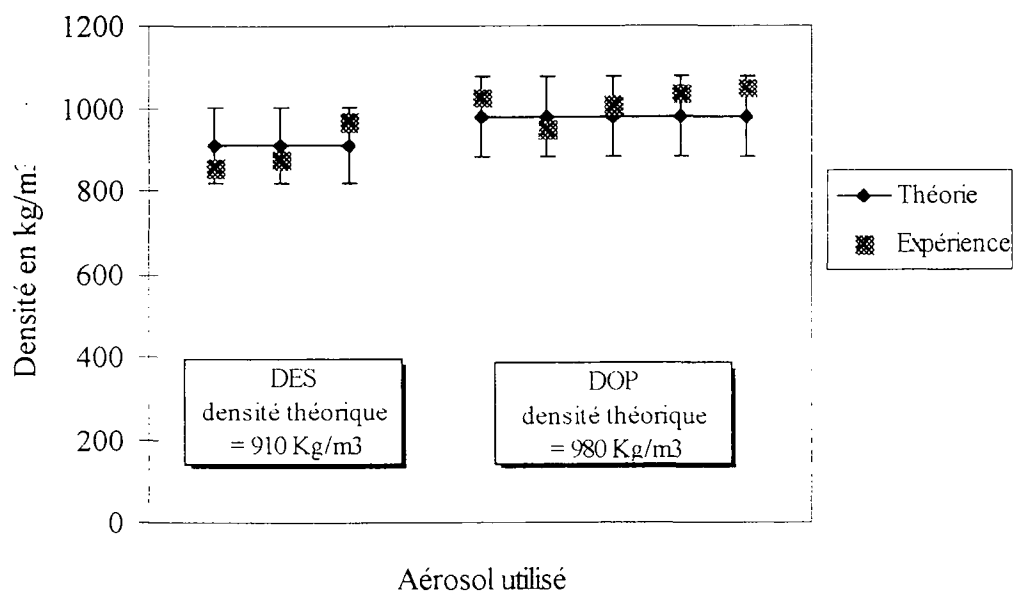


Figure 5

Conclusion et perspectives

Les études précédentes nous avaient permis de déterminer l'influence de la gravité dans les analyseurs de mobilité électrique sur le plan théorique. Cette approche avait été validée pour des aérosols monodispersés. Il nous était alors possible de déterminer le diamètre, la masse et donc la densité de ces aérosols avec une incertitude inférieure à 5%. Dans cet dernière étude, nous nous sommes intéressés aux aérosols polydispersés et nous avons montré qu'il est possible d'en déterminer la densité avec une incertitude inférieure à 10%. Dans l'avenir nous allons tenter d'appliquer cette procédure à d'autres types d'aérosols, (liquides, solides et de formes variées) afin de confirmer nos résultats, et d'essayer d'en déterminer la densité, mais également le facteur de forme.

Bibliographie

- Boulaud, D., Pourprix, P., Gougeon, R., Le Bronec, E., Renoux, A. (1996). *J. Aerosol Sci.* 27, S1, S307-308.
- Emets, E.P., Kascheev, V.A., Poluektov, P.P. (1992). *J. Aerosol Sci.* 23 :27-35.
- Knutson, E.O., Whitby, K.T. (1975 a). *J. Aerosol Sci.* 6 :443-451.
- Knutson, E.O., Whitby, K.T. (1975 b). *J. Aerosol Sci.* 6 :453-460.
- Kousaka, Y., Okuyama, K., Adachi, M., (1985) *Aerosol Sci. Technol.*, 4 :209-225.
- Kousaka, Y., Okuyama, K., Adachi, M., Minura, T. (1986) *J. Chem Eng. Jpn.* 19 :401-407.
- Le Bronec, E., Boulaud, D., Pourprix, M., Renoux, A. (1997) *J. Aerosol Sci.* 28, S1, S699-700.
- Le Bronec, E., Boulaud, D., Pourprix, M., Renoux, A. (1996) *Actes des 12^{ème} journées d'études sur les aérosols*, Paris : 161-166.
- Liu, B. Y. H., Pui, D. Y. H. (1974) *J. Colloid Interface Sci.*, 47 :155-171.
- Mesbah B. (1994). Thèse de l'Université PARIS XII, rapport CEA.
- Pourprix, M., Boulaud, D., Mesbah, B., Ooghe, M. (1994) 4th International Aerosol Conference, Los Angeles, 1, 463.
- Reischl, G. P., (1991). *J. Aerosol Sci.* 22 :297-312.
- Stolzenburg, M. R. (1988). Ph. D. thesis, University of Minnesota.
- Tammet, H. F. (1970). « The aspiration Method for the Determination of Atmospheric-Ion Spectra », translated from Russian, Israel Program for Scientific Translations.
- Winklmayr, W., Reischl, G. P., Lindner, A. O., Berner, A. (1991). *J. Aerosol Sci.* 22 :289-296.
- Zhang, S., Akutsu, Y., Russell, L. M., Flagan, R. C. (1995). *Aerosol Sci. and Technol.* 23 :357-372.

Réfractométrie d'arc-en-ciel: Application à la mesure des perturbations initiales d'un jet liquide.

F. Corbin, G. Gouesbet et G. Gréhan

November 6, 1997

Abstract

Rainbow refractometry is based on the measurement of the light scattered around the rainbow angle, where the scattering diagram is very sensitive to the refractive index. Here, the scattering diagram is dominated by two kinds of rays which interfere:

- interferences between rays which experience one internal reflection (described by Airy theory)
- interferences between rays which experience one internal reflection and rays which experience one external reflection.

It is demonstrated that the measurement of these interferences gives the possibility to detect diameter perturbations smaller than $0.01 \mu m$ on a liquid jet of $600 \mu m$ of diameter.

Résumé:

La réfractométrie d'arc-en-ciel est basée sur la mesure de la lumière diffusée aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel. Dans cette région, le diagramme de diffusion est dominé par deux types d'interférences:

- des interférences entre des rayons ayant subi une réflexion interne (décrites par la théorie d'Airy)
- des interférences entre des rayons ayant subi une réflexion interne et des rayons ayant subi une réflexion externe.

Il est démontré que la mesure de ces interférences permet la détection de perturbations plus petites que $0.01 \mu m$ sur un jet liquide de $600 \mu m$ de diamètre.

1 Introduction

La pulvérisation de liquides, présente dans de nombreux procédés industriels, est un sujet actuel d'études fondamentales. Tous les modèles théoriques linéaires utilisés sont basés sur la croissance sélective de petites perturbations. Cependant, à la connaissance des auteurs, ces perturbations initiales n'ont jamais été directement observées ni mesurées. y compris pour la géométrie la plus simple, celle d'un jet liquide cylindrique libre. Notons cependant que Godelle et al [1] ont montré, dans le cas d'un jet liquide forcé transversalement,

que les oscillations imposées mécaniquement disparaissaient avant que l'oscillation responsable de la fragmentation du jet liquide ne croisse. Dans cette expérience, réalisée sur un jet liquide de $600 \mu m$ de diamètre, les plus petites fluctuations détectables sont de l'ordre de $10 \mu m$. Dans cet article, la possibilité de détecter (voire de mesurer) des perturbations de l'ordre de $0.01 \mu m$ sur le même jet liquide est démontrée.

L'article est organisé comme suit. La section 2 décrit le principe de la réfractométrie d'arc-en-ciel, ainsi que des simulations numériques étayant l'approche. La section 3 décrit le montage expérimental tandis que la section 4 compile les premiers résultats expérimentaux. La section 5 est une conclusion.

2 Principe et simulations numériques

Un arc-en-ciel résulte d'un extrémum de déviation. En termes d'optique géométrique, la construction de l'arc-en-ciel principal est schématisée sur la figure 1. Celui-ci est créé par des rayons ayant subi une réflexion interne. Ainsi, si le rayon A est le rayon subissant la déviation minimale, les rayons a et b , situés de part et d'autre du rayon A , seront déviés dans une même direction et vont interférer entre eux. Ce phénomène est décrit par la théorie d'Airy. Comme l'angle d'arc-en-ciel est très sensible à l'indice de réfraction de la particule, cette technique a été utilisée pour mesurer le diamètre et l'indice de réfraction de la particule diffusante [2]

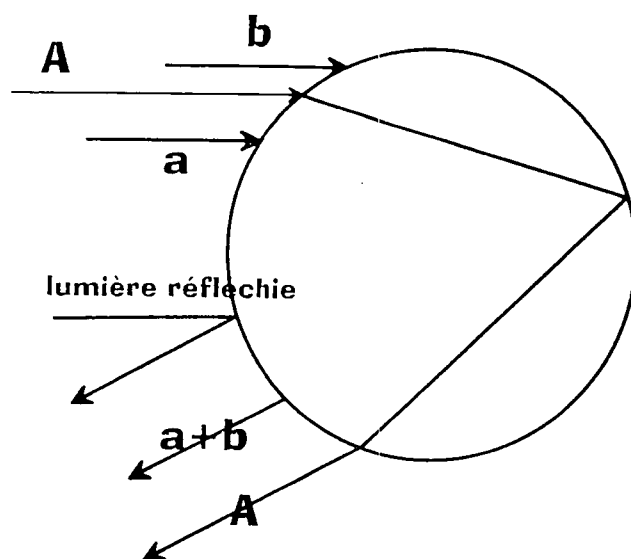


Figure 1: L'arc-en-ciel: principe

[3] [4], ainsi que pour l'identification de gradients internes d'indice (température) [5] [6].

En outre, des rayons réfléchis par la surface de la particule vont également interférer avec les rayons réfléchis à l'intérieur de la particule. Ce second phénomène d'interférence, qui se superpose au premier, ne peut pas être décrit dans le cadre de la théorie d'Airy. En utilisant la théorie de Lorenz-Mie, les caractéristiques de l'arc-en-ciel sont exactement calculées, si la particule diffusante est une sphère parfaite ou un cylindre circulaire parfait éclairé perpendiculairement. Il doit en outre être souligné que les prédictions de la théorie d'Airy sont identiques pour la sphère et le cylindre éclairé perpendiculairement [7].

La figure 2 présente deux arc-en-ciel calculés pour deux cylindres d'eau de diamètres 600.0 et $600.1 \mu m$, respectivement. Pour une variation aussi faible du diamètre,

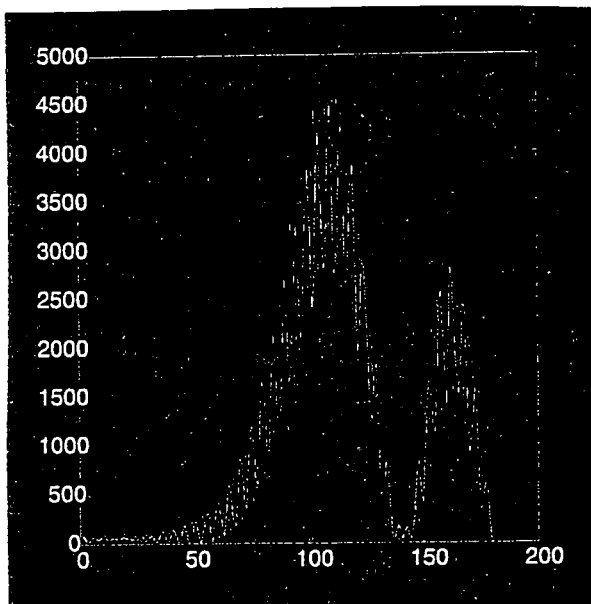


Figure 2: Exemple de diagrammes d'arc-en-ciel

l'enveloppe du signal, correspondant à la théorie d'Airy, n'est pas modifiée. Cependant, les interférences haute fréquence, créées par les rayons réfléchis, ont subi une translation d'environ une demi-période. La mesure de ce déplacement est donc une mesure de faibles perturbations. Pour mesurer ce déplacement, la méthodologie suivante est proposée:

1. Le signal correspondant à chaque arc-en-ciel, tel que décrit figure 2, est dérivé. Le signal obtenu a la forme décrite figure 3.
2. En utilisant les techniques de traitement du signal bien connues en Anémométrie phase-Doppler telle la CSD[8], le décalage (déphasage) entre les deux signaux représentés figure 2 est mesuré. Il correspond à 140° pour une variation de diamètre de $0.1 \mu\text{m}$.

Ainsi, si le déphasage est mesuré avec une précision de l'ordre de 5° , des perturbations

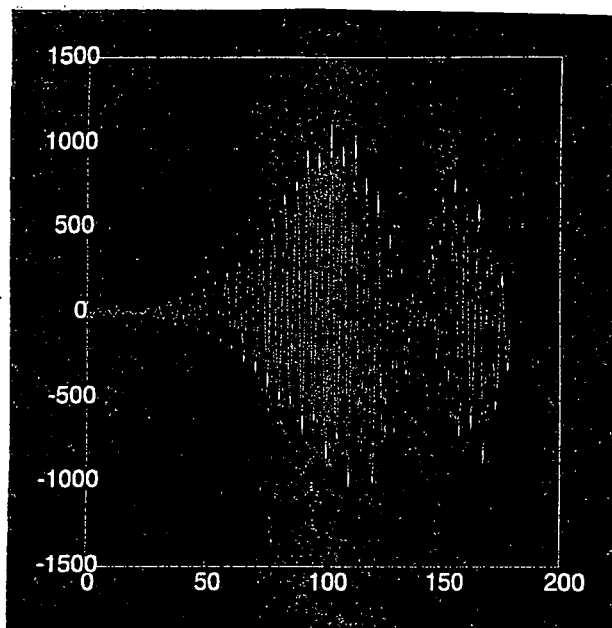


Figure 3: La dérivée d'un diagramme d'arc-en-ciel

du diamètre d'un jet liquide de $600 \mu\text{m}$ de l'ordre de $0.003 \mu\text{m}$ sont détectables, soit une perturbation relative de $\sim 5 \cdot 10^{-6}$.

3 Expérience

Un jet liquide libre a été réalisé. Pour ce faire, le liquide (de l'eau dans cet article) est contenu dans un réservoir maintenu à pression constante. Ce liquide s'écoule à travers un tuyau métallique de $600 \mu\text{m}$ de diamètre intérieur et d'une longueur de 500mm . Le jet liquide ainsi formé est éclairé par une feuille laser d'une épaisseur de $30 \mu\text{m}$ et d'une largeur d'un centimètre. La lumière diffusée est collectée par une lentille. Le foyer objet de cette lentille est confondu avec l'axe du cylindre liquide: ainsi la lumière diffusée après la lentille est parallèle. Celle-ci éclaire alors une caméra linéaire CCD, Dalsa CLC6. Le détecteur de cette caméra est composé de 2048 diodes élémentaires. Chaque diode a une largeur de $13 \mu\text{m}$

pour une hauteur de $500 \mu\text{m}$. La vitesse de lecture est de 4000 lignes par seconde, et 500 lignes peuvent être enregistrées consécutivement, c'est à dire que l'enregistrement dure 0.2 seconde. En outre, une caméra classique permet de visualiser le jet liquide. L'enregistrement des signaux d'arc-en-ciel est réalisé pour un écoulement défini comme stable par les moyens d'investigation classiques (caméra et intensité moyenne diffusée dans un angle solide).

4 Résultats

La figure 4 présente une série de 8 enregistrements successifs. Il faut noter la très bonne stabilité de l'arc-en-ciel. La figure 5 présente une série de 3 enregistrements successifs, dont le premier est le dernier de la série présentée figure 4. Cette fois, une évolution rapide du diagramme d'arc-en-ciel est enregistrée. Le diamètre du cylindre évolue de plus de $0.1 \mu\text{m}$ en moins de $1/2000$ de seconde. Le manque de visibilité (contraste) du 2ème signal de la figure 5 peut s'expliquer par le changement rapide du diamètre du cylindre liquide. Dans ce cas précis, une évolution du diamètre de $0.13 \mu\text{m}$ est diagnostiquée.

En répétant la même procédure, l'évolution du diamètre par rapport au premier enregistrement peut être établie. Elle a le comportement décrit par la figure 6.

Cependant, des variations purement radiales du cylindre ne peuvent pas expliquer le fait que les hauteurs relatives des pics surnuméraires de l'arc-en-ciel ne soient pas en accord avec la théorie de Lorenz-Mie.

Pour tenter d'expliquer ce désaccord, que l'on retrouve dans toutes les publications

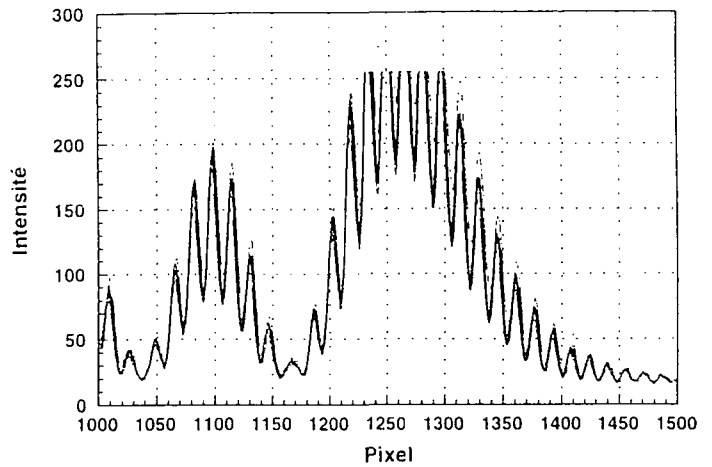


Figure 4: 8 diagrammes d'arc-en-ciel enregistrés successivement.

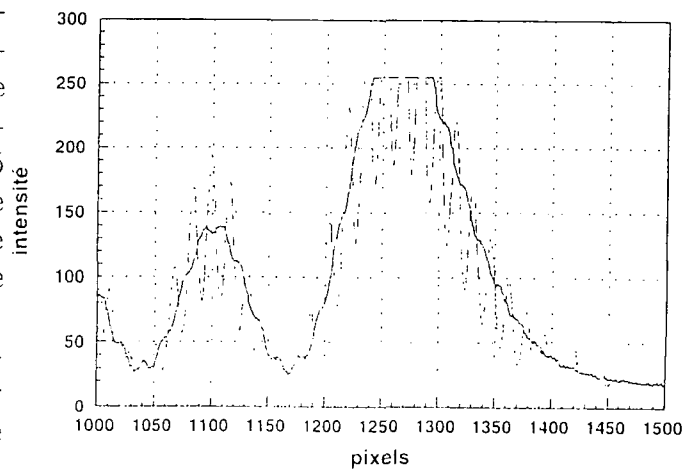


Figure 5: 3 diagrammes d'arc-en-ciel enregistrés successivement.

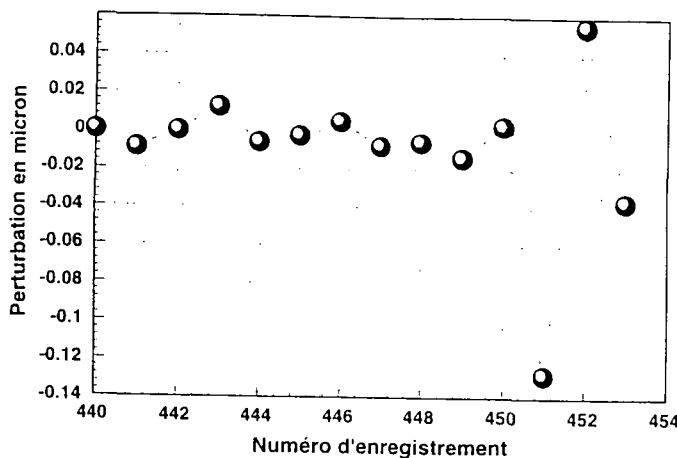


Figure 6: Evolution de la phase (diamètre) du cylindre liquide.

sur la réfractométrie d'arc-en-ciel [4] [9], d'autres phénomènes doivent être pris en compte. Le fait que la barrette CCD ne soit pas parfaitement parallèle au plan de diffusion (explication courante) n'est pas satisfaisante car, avec une barrette d'une hauteur de $500 \mu\text{m}$, nous sommes certains que toute la lumière diffusée est collectée. Par contre, des petites perturbations non radiales du diamètre du cylindre peuvent être envisagées. Dans ce cas, il n'existe pas de théorie rigoureuse pour prédire les effets de telles perturbations sur la lumière diffusée.

Cependant, nous pouvons utiliser l'approche développée par Drossart [10] qui montre qu'un modèle statistique permet de retrouver les résultats de Wiscombe [11]. Ce modèle statistique est basé sur une perturbation de la théorie de Lorenz-Mie et donc s'intègre facilement dans tous les programmes de théorie de Lorenz-Mie. La figure 9 présente les résultats obtenus avec un tel code pour la lumière diffusée aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel.

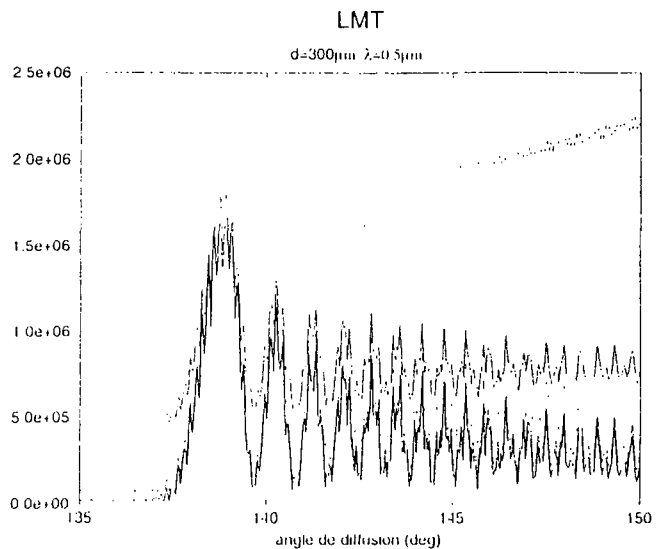


Figure 7: Evolution de l'arc-en-ciel avec une "rugosité" du jet liquide

5 Conclusion

Dans cet article, nous avons démontré, numériquement et expérimentalement, la possibilité de mettre en évidence et de mesurer des perturbations initiales sur un jet liquide. La mise en évidence de ces perturbations est basée sur la mesure du déplacement des franges d'interférences entre la lumière réfléchie sur la surface externe et la lumière réfléchie par la surface interne, aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel. Les techniques de traitement du signal utilisées sont celles, classiques, de l'amérométrie phase Doppler. La précision atteinte peut être de l'ordre de $0.003 \mu\text{m}$ sur un jet de $600 \mu\text{m}$, soit une précision relative de $0.5 \cdot 10^{-6}$.

References

- [1] J. Godelle, C. Letellier, J.N. Letoulouzan, G. Gréhan, G. Gouesbet,

- C. Dumouchel, S. Leroux, J.B. Blaisot, and M. Ledoux. Use of the theory of nonlinear dynamical systems to study the growth of perturbations in an excited water jet. In *Proceedings of ICLASS-97, August 18-22 1997, Seoul (Corea)*, pages 117-124, 1997.
- [2] N. Roth, K. Anders, and A. Frohn. Simultaneous measurement of temperature and size of droplets in the micrometer range. *J. of Laser Applications*, 2(1):37-42, 1990.
- [3] S.V. Sankar, K.M. Ibrahim, D.H. Buermann, M.J. Fidrich, and W.D. Bachalo. An integrated phase Doppler/rainbow refractometer system for simultaneous measurement of droplet size, velocity, and refractive index. In M. Maeda, editor, *Proceedings of the 3rd International Congress on Optical Particle Sizing*, pages 275-284, 1993. Yokohama (Japan), August 23-26.
- [4] J.P.A.J van Beeck and M.L. Riethmuller. Nonintrusive measurements of temperature and size of single falling raindrops. *Appl. Opt.*, 34(10):1633-1639, 1995.
- [5] F. Corbin. A. Garo. G. Gouesbet. et G. Gréhan. Réfractométrie d'arc-en-ciel: Application au diagnostic de gouttes avec gradient d'indice. In *5ème congrès Francophone de Vélocimétrie Laser, Rouen, 24-27 Septembre 1996*, pages E1.1-E1.8, 1996.
- [6] C. Corbin. X. Han. Z.S. Wu. K.F. Ren. G. Gréhan. A. Garo. and G. Gouesbet. Rainbow refractometry: applications to nonhomogeneous scatterers. In *The third International conference on Fluid Dynamic measurement and its applications, October 14-17, 1997, Beijing, China*, pages 39-44, 1997. Invited conference.
- [7] R.T. Wang and H.C. van de Hulst. Rainbows: Mie computations and the Airy approximation. *Appl. Opt.*, 30(1):106-117, 1991.
- [8] J. Domnick, H. Ertel, and C. Tropea. Processing of phase-Doppler signals using the cross-spectral density function. In *Proc. 5th Intl. Symp. on application of laser techniques to fluid mechanics, Lisbon (PORTUGAL), paper 3.8, July 20-23, 1988*.
- [9] J.P.A.J. van Beeck and M.L. Riethmuller. Rainbow phenomena applied to the measurement of droplet size and velocity and to the detection of nonsphericity. *Appl. Opt.*, 35(13):2259-2266, 1996.
- [10] P. Drossart. A statistical model for the scattering by irregular particles. *The Astrophysical Journal*, 361:L29-L32, 1990.
- [11] A. Mugai and W.J. Wiscombe. Scattering from nonspherical Chebyshev particles. I: cross sections, single-scattering albedo, asymmetry factor, and backscattered fraction. *Applied Optics*, 25(7):1235-1244, 1986.

**CONTROLE de la FINESSE du CHARBON PULVERISE par SONDE
GRANULOMETRIQUE / VELOCIMETRIQUE « MICRO-VIDEO » dans les
CENTRALES THERMIQUES**

1. Introduction

Dans les centrales thermiques au charbon, la finesse des grains de charbon pulvérisé est l'un des paramètres essentiels à contrôler pour assurer une bonne combustion. Cette propriété joue sur le rendement de la chaudière mais aussi sur le taux d'imbrûlés et sur le taux de poussières rejetées dans les fumées. Ces deux derniers aspects deviennent des enjeux importants :

- pour le respect des **normes de pollution** (limitation des rejets) surtout pour les centrales localisées près des centres urbains.
- pour la **valorisation** des scories par l'industrie "cimentière" (le taux d'imbrûlés doit être inférieur à une certaine limite)

Actuellement la mesure de la finesse est effectuée manuellement par prélèvement puis tamisage. Elle est surtout destinée à contrôler les usures des broyeurs et la périodicité des opérations peut être longue (tous les 15 jours voire tous les 6 mois).

Afin de contrôler plus efficacement la combustion, EDF envisage d'équiper ses centrales d'un système de mesure optique qui contrôlerait en quasi-permanence la finesse des grains et détecterait ainsi en temps réel les anomalies dans l'alimentation des brûleurs. Il s'agit d'un granulomètre/vélocimètre à imagerie rapide associé à un traitement d'image temps réel : la sonde « micro-vidéo ».

Des essais préliminaires avec une sonde prototype ont été réalisés avec succès en centrale. Ils sont destinés à définir un appareil industriel qui serait installé à demeure sur les sites.

Cet article décrit la sonde et les résultats obtenus qui ont été comparés (en granulométrie et en débit) à ceux obtenus par prélèvement. L'analyse des images a révélé en outre une forte hétérogénéité dans la granulométrie, de fortes fluctuations temporelles dans l'alimentation des brûleurs et des écarts de débits dans les diverses tuyauteries d'amenée de charbon aux brûleurs. Afin de mieux analyser les résultats obtenus, on les compare avec ceux d'un modèle numérique qui simule notamment l'effet d'un coude sur la répartition des particules dans la zone de mesure.

2. Description de l'appareil de mesure

2.1 Principe

Le principe de mesure est basé sur l'ombroscopie ultra rapide associée à un traitement d' image en temps quasi-réel. L'appareil comprend deux parties principales :

- la sonde et ses auxiliaires (caméra à trame séparées et DEL pulsée),
- le système de traitement d'image et de traitement des données.

2.2 La sonde

La sonde se présente extérieurement sous forme d'un tube (figure 2). L'éclairage ombroscopique est fourni par une DEL haute luminosité pulsée (durée 100 nanoseconde). Les images des particules de charbon, qui apparaissent comme autant de taches sombres plus ou moins nettes, sont agrandies par une lentille et enregistrées par une caméra à trame séparée. Un déclenchement à double pulse (écart entre 2 et 500 μ s) permet d'obtenir des doublets de chaque particules et partant de là une mesure de la vitesse.

La caméra et la DEL sont localisées à l'intérieur même de la sonde. Les optiques sont protégés par des hublots, eux mêmes protégés par un système de soufflage d'air filtré.

2.3 Le traitement d'image

2.31 Principales étapes du traitement

Les principales étapes du traitement sont les suivantes :

- la numérisation,
- la normalisation à partir d'un fond de référence pour éliminer les défauts, permanents (poussière sur les optiques, défauts éventuels sur la matrice CCD de la caméra),
- la sélection des particules qui seront prises en compte dans l'histogramme,
- l'analyse individuelle (taille, position, forme, etc....),
- la construction de l'histogramme (taille et vitesse),
- la détermination de la concentration et des débits.

Ces opérations se font actuellement à la fréquence de 5 à 15 Hz suivant la densité de particules par image. L'histogramme devient "stable" à partir de 100 à 300 images analysées. Une mesure prend donc entre 10 et 60 secondes.

3. Résultats

3.1 Histogramme

La figure 3 donne un exemple d'histogramme obtenu dans une conduite de charbon pulvérisé. La courbe de débit cumulé permet à l'exploitant de vérifier aisément la finesse (par exemple 75% du débit correspondent à des particules inférieures à 80 μ m).

3.2 Débits

Par intégration des débits unitaires (le volume de mesure est d'environ de 1x1x2 mm) on peut remonter au débit global avec une précision correcte pour ce genre de mesure (par exemple : débit de 3.3 t/h donné par la sonde optique pour 3.06 t/h évalué par le fonctionnement du broyeur).

3.3 Autres informations

L'analyse des images permet d'obtenir d'autres informations sur le fonctionnement des brûleurs : les fluctuations temporelles dans l'alimentation des brûleurs (figure 2) et les écarts de débits dans les diverses tuyauteries d'amenée du charbon aux brûleurs.

4. Modélisation numérique

Deux simulations numériques ont été réalisées :

- une simulation eulérienne monophasique de l'écoulement fluide suivi d'un calcul lagrangien de trajectoire des particules (code N3S-Syrlic) ;
- une simulation eulérienne diphasique de l'ensemble air + particules (code Estet-Astrid)

Les outils expérimentaux et numériques montrent de manière cohérente l'hétérogénéité du charbon dans la conduite, celle-ci étant attribuée principalement au coude. Néanmoins les résultats diffèrent suivant les outils utilisés (voir figure 4):

- la sonde micro-vidéo mesure une croissance "douce" de la concentration allant de l'intérieur à l'extérieur de la conduite (par rapport au coude) et il serait nécessaire de prendre en compte le caractère intrusif et perturbateur de la sonde ;
- la simulation lagrangienne prédit une évolution plus complexe, mais cette prédiction doit être commentée en prenant en compte le fait que ce code ne calcule ni l'influence des particules sur l'écoulement, ni les chocs entre particules ; hors ceux-ci peuvent être non négligeables dans les zones à forte concentration ;
- la simulation eulérienne prédit une croissance forte de la concentration mais néanmoins cette évolution est plus proche de celle mesurée que celle prédite par la simulation lagrangienne. Là aussi les résultats doivent être commentés par le fait que la simulation eulérienne ne prend pas en compte -actuellement- la polydispersion du charbon pulvérisé.

5. Conclusion

Le contrôle en continu de la qualité de la combustion est l'élément clé pour le respect des normes de pollution. La finesse du charbon pulvérisé, qui alimente les brûleurs, est l'un des paramètres essentiels qui agissent sur la qualité de la combustion. Le remplacement de la mesure "manuelle" par un système opto-électronique doit permettre à l'exploitant de contrôler en "temps réel" la finesse du charbon et donc d'agir rapidement en cas d'anomalies. Les tests in situ ont montré la capacité de ce système à accéder aux mesures demandées. Le passage au niveau industriel exige cependant de prendre en compte le vieillissement de certains composants comme la salissure des hublots. Des procédures d'auto-correction ou d'alarme devraient être implantés prochainement dans le traitement d'image pour assurer la pertinence des informations données aux exploitants des centrales thermiques. Les simulations

numériques qui ont été effectuées pour valider les mesures de débits vont également être utilisées pour contrôler l'équilibrage des tuyauteries d'amenée du charbon pulvérisé des broyeurs aux brûleurs.

Références

- [1] Kleitz, A. Courant, J.J. "Three probes for water droplets sizing in wet steam turbines". European Conference on Turbomachinery, London, 1991.
 - [2] C. Robin, A.Boelle, O. Hartman, B. Balzer, C. Peniguel Simulation d'écoulement de charbon pulvérisé (CP) dans une conduite d'alimentation de Chaudière : comparaison avec les mesures effectuées sur le site de Vitry. rapport interne EDF HP-43/97/021.
 - [3] Alain Kleitz et Denis Boulaud "Granulométrie des particules en mouvement et aérosols" Techniques de l'Ingénieur n° R 2360.
-

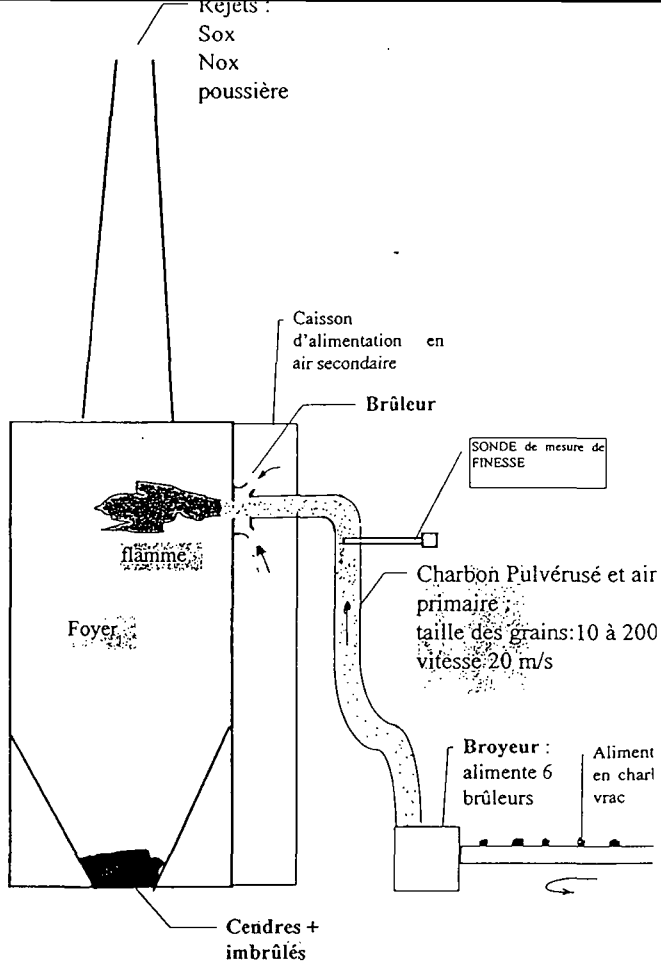


figure 1 Chaudière Thermique :
alimentation en Charbon Pulvérisé

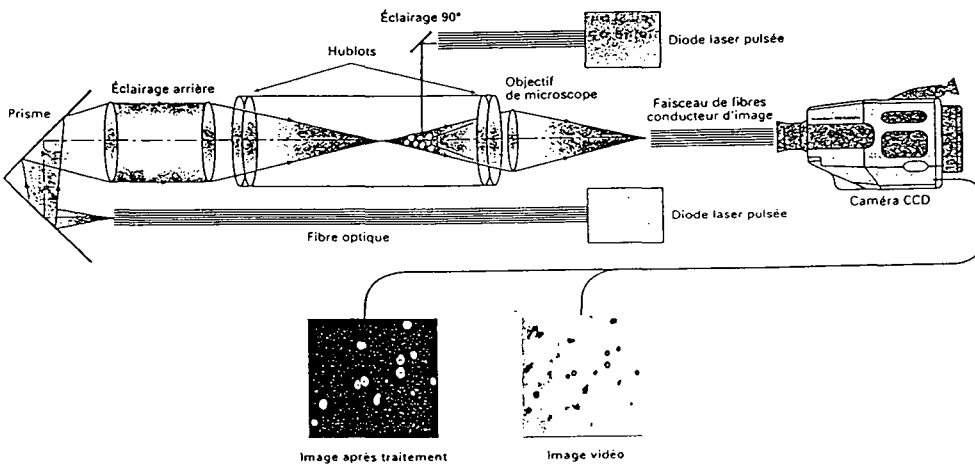


figure 2 sonde "micro-vidéo"

figure 3 quelques vues du charbon pulvérisé

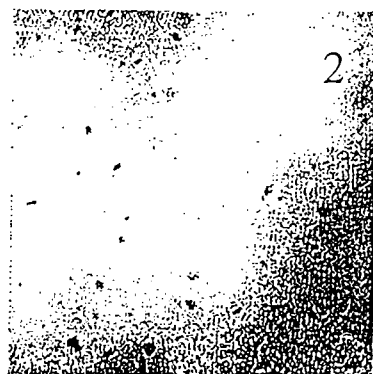
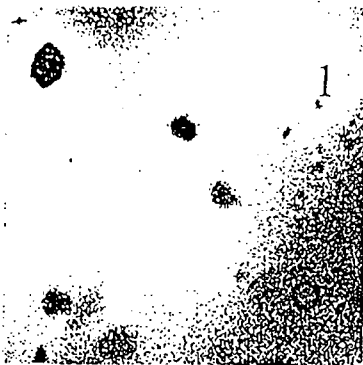


figure 4.1 Simulation lagrangienne

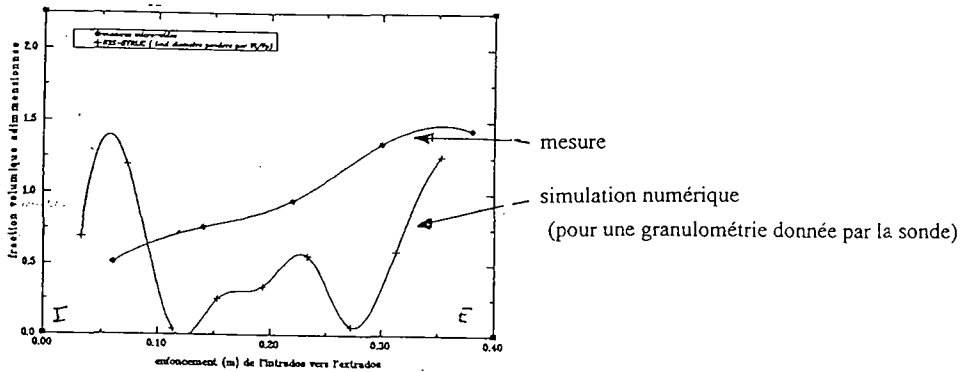
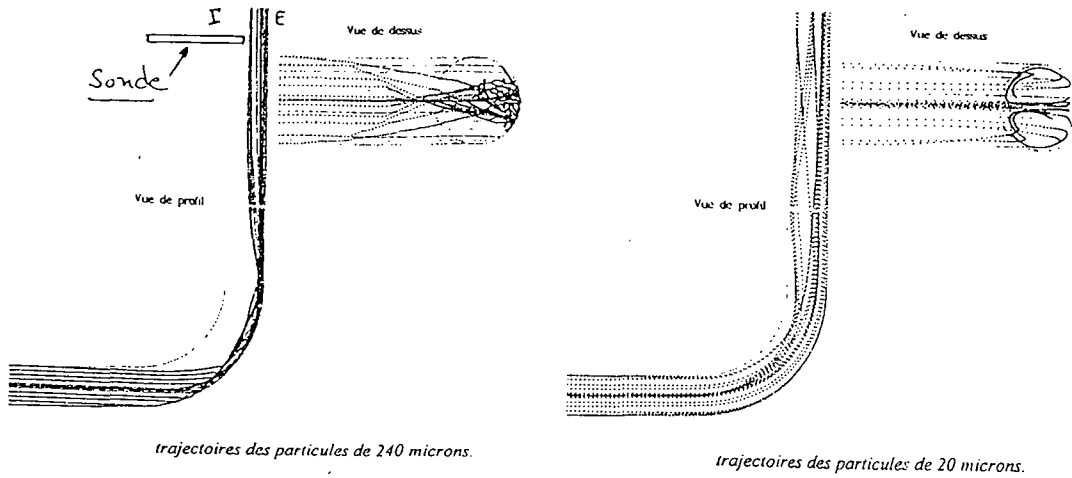


figure 4.2 Simulation eulérienne

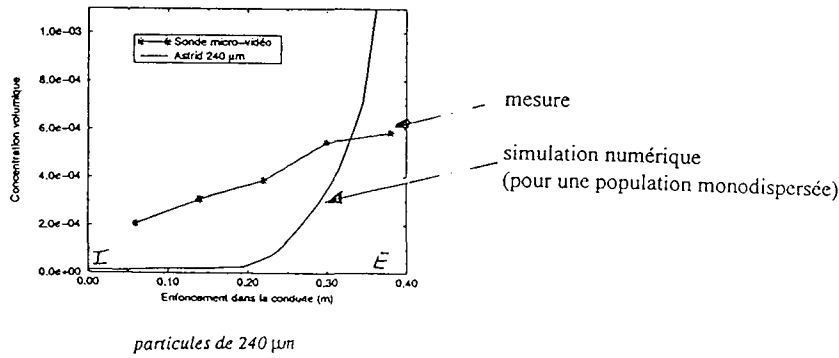
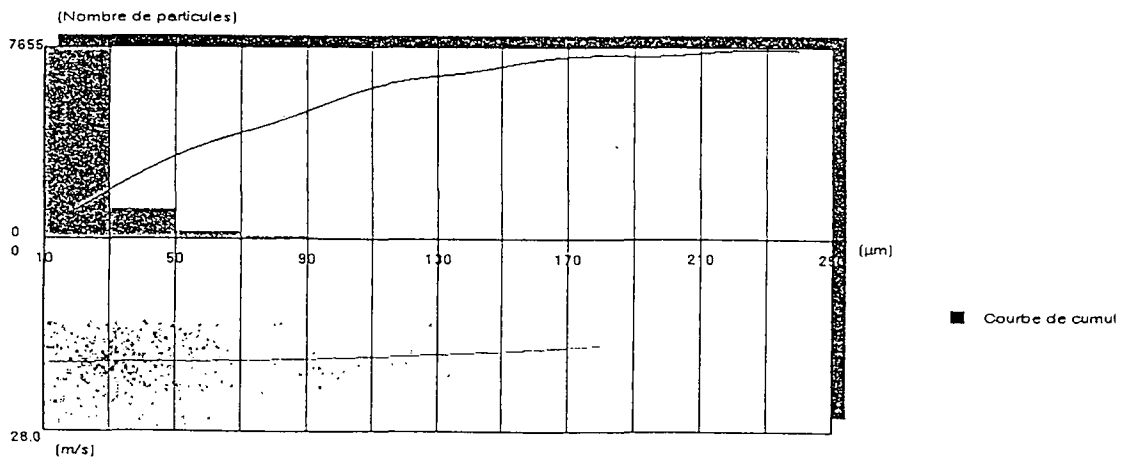


figure 5 Histogramme des particules en nombre et vitesse



Mesure en paroi: vitesse et hauteur dans une couche limite

H. Bultynck, G. Gréhan, G. Gouesbet
Laboratoire d'Energétique des Systèmes et Procédés
UMR 6614 CORIA, Université et INSA de Rouen
B.P. 8 - Place Emile Blondel
76131 Mt-St-Aignan Cédex - France

P. Cétier et 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

Une méthode expérimentale dédiée à une meilleure connaissance du mouvement des particules lors de la resuspension a été mise au point. Les études expérimentales effectuées jusqu'à ce jour sont des mesures globales généralement de taux de resuspension. Un système couplé de mesure Anémométrie Doppler Laser et d'une méthode Doppler laser à deux feuilles laser permettant la mesure d'une part de la vitesse des particules et d'autre part de la hauteur de celle-ci dans la couche limite lors de la resuspension est présentée dans ce papier. Ce système permettra de déterminer le comportement de la particule lors de la resuspension sur une hauteur proche du millimètre correspondant à $y^+ = 30$ (pour des vitesses d'écoulement de l'ordre de $10m/s$), c'est à dire dans toute la région possédant une grande activité de turbulence.

2 Principe de la mesure

Le principe de la mesure simultanée de la vitesse et de la hauteur de particules repose sur la superposition de deux sondes composées de franges d'interférence de structures différentes. La figure 1 représente le principe de la mesure, les deux sondes sont figurées séparément.

La première sonde dispose d'un système de franges parallèles. Ainsi lorsqu'une particule traverse cette sonde, la composante de vitesse orthogonale aux franges est directement proportionnelle à la fréquence du signal diffusé. Cette vitesse ne dépend pas de la position de la particule lors de son passage dans le volume de mesure.

Le second système de franges doit posséder une interfrange variant de façon monotone suivant l'axe principal de cette seconde sonde. Ainsi, la fréquence du signal diffusé lors du passage d'une particule, sera fonction d'une part de la vitesse et d'autre part de la position (appelée ici "hauteur") de passage de celle-ci dans la sonde. Connaissant la vitesse de la particule, la hauteur de cette dernière pourra être facilement déterminée dans le volume de mesure commun aux deux sondes. Ce type de mesure est une variante des mesures

Mesure de la vitesse

Mesure de la hauteur

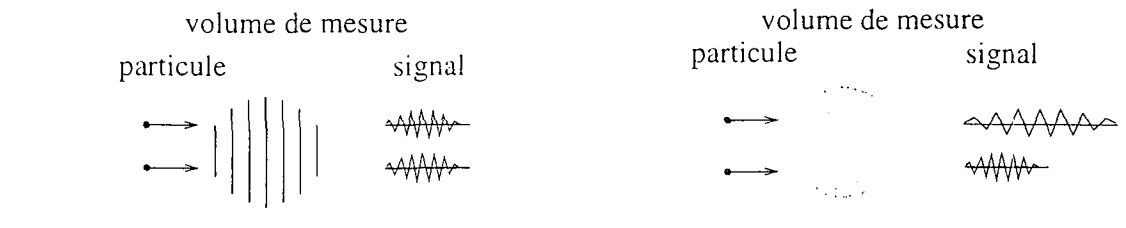


FIG. 1 - Description du principe de la mesure

d'anémométrie Doppler laser, la mesure correspond à la détermination de deux fréquences Doppler.

3 Méthode optique

Le dispositif employé pour réaliser ces deux sondes, comprend 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 la focalisation de deux faisceaux circulaires gaussiens parallèles. Ces deux faisceaux se coupent au centre de leur col ("beam waist"), où les deux ondes sont planes en terme de phase. Elle permet la réalisation d'un système de franges de pas constant. Soient i_{ADL} le pas des franges (ou interfrange) et f_{ADL} la fréquence du signal diffusé, la composante de vitesse orthogonale aux franges (suivant l'axe Ox ici) peut alors s'écrire:

$$V_x = i_{ADL} f_{ADL} \quad (1)$$

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 [1, 2, 3, 4, 5]. La figure 2 représente la création d'une telle sonde: deux faisceaux circulaires gaussiens non parallèles sont focalisés par une lentille cylindrique.

Du fait de la présence de faisceaux non-parallèles, les deux faisceaux se coupent en un point éloigné du plan focal de la lentille et du col des faisceaux. 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.

Pour déterminer la hauteur du passage de la particule le principe est le suivant :

Soit $i_{DCW}(z)$ le pas des franges suivant l'axe Oz et f_{DCW} la fréquence du signal DCW diffusé lors du passage de la particule, en supposant que la trajectoire de la particule soit parallèle à l'axe principal de l'écoulement Ox , on peut écrire:

$$V_x = i_{DCW}(z) f_{DCW} \quad (2)$$

A partir des deux formulations de la vitesse, la valeur de l'interfrange $i_{DCW}(z)$ correspondant au passage de la particule peut être déduite:

$$i_{DCW}(z) = i_{ADL} \frac{f_{ADL}}{f_{DCW}} \quad (3)$$

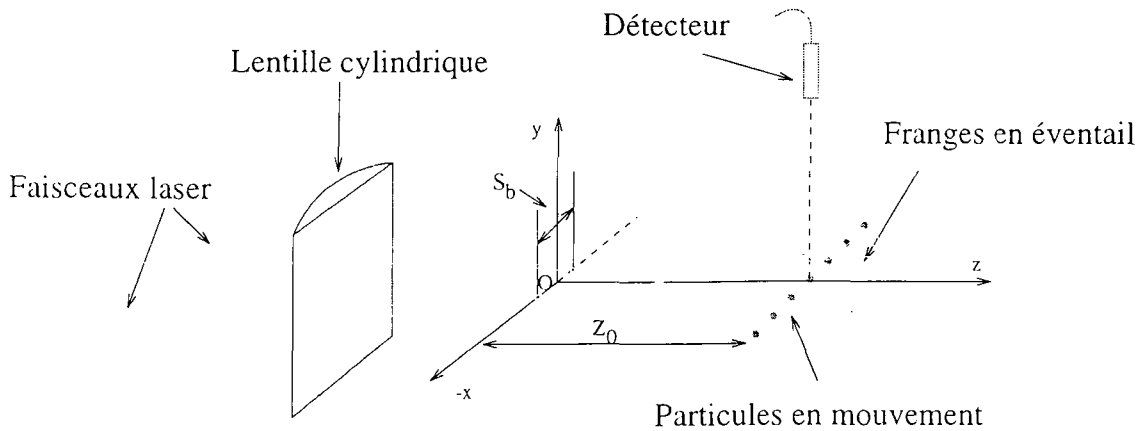


FIG. 2 - Sonde DCW: dispositif optique

Connaissant la loi monotone qui lie l'interfrange de la sonde DCW à la hauteur z , cette dernière peut être déterminée.

En fait, puisque l'hypothèse d'une trajectoire parallèle de la particule à la direction principale de l'écoulement n'est pas rigoureuse, le pic de fréquence du signal DCW aura une certaine largeur. La hauteur mesurée correspond donc à une hauteur moyenne de passage de la particule, cette hauteur correspondant au centre du pic de fréquence DCW.

4 Réalisation expérimentale

Une sonde prototype a été réalisée par l'intermédiaire de microdéplacements. La figure 3 représente le schéma de principe de la partie émission de cette sonde, tandis que la figure 4 décrit le système de collection.

Pour cette réalisation un laser argon de $700mW$ de puissance est utilisé. Un séparateur dichroïque C partage le faisceau laser multirais en deux faisceaux α et β de longueur d'onde $0,488\mu m$ (bleu) et $0,514\mu m$ (vert). Le faisceau α est dédié au système DCW et le faisceau β au système ADL.

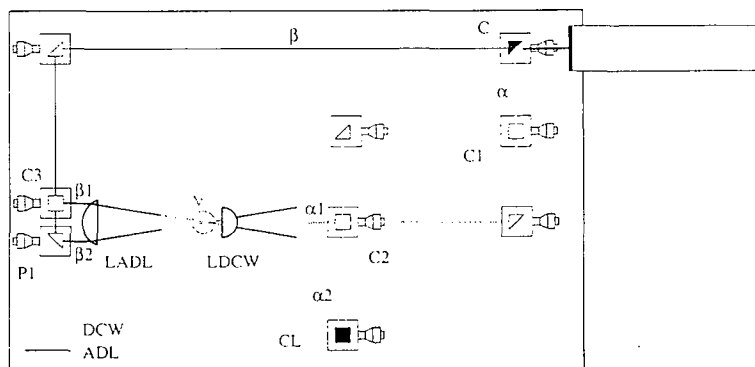


FIG. 3 - Description du dispositif expérimental: émission

Un ensemble optique composé de deux cubes séparateurs et de deux miroirs partage le faisceau α en deux faisceaux non parallèles (angle de 5 degrés entre les faisceaux). Le

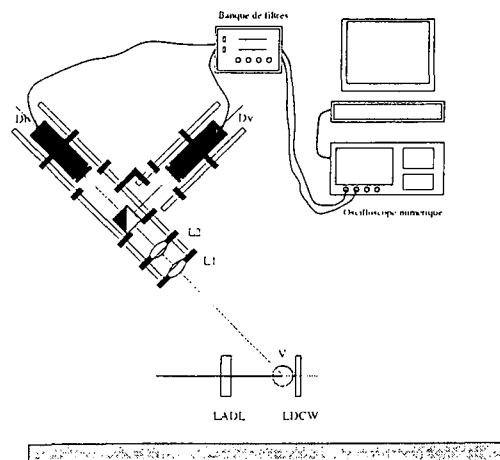


FIG. 4 - Description du dispositif expérimental: collection

premier cube $C1$ permet la séparation du faisceau α en deux faisceaux cohérents perpendiculaires, les deux miroirs sont montés sur des "tilts" et permettent le renvoi de ces deux faisceaux sur le second cube séparateur ($C2$). Ainsi, sur deux couples $\alpha1$ et $\alpha2$ de faisceaux non parallèles, un seul de ces deux couples est utilisé ($\alpha1$), l'autre est renvoyé vers un cache lumière (CL). Les deux faisceaux du couple utilisé ($\alpha1$) sont incidents sur la lentille cylindrique L_{DCW} de focale $6,35mm$.

Un système de franges en éventail est créé en retrait du plan focal de cette lentille. Le volume de mesure (V) formé par cette interférence a pour épaisseur le diamètre du faisceau laser, c'est à dire $1mm$. Il possède pour longueur (appelée "hauteur") une distance supérieure au mm.

Le système ADL est réalisé par l'intersection des faisceaux $\beta1$ et $\beta2$ séparés de $10mm$ par l'intermédiaire d'un cube séparateur ($C3$) et d'un prisme ($P1$), focalisés en rencontrant une lentille cylindrique L_{ADL} de focale $200mm$. Le volume de mesure formé V se superpose à celui du système DCW. Il a pour largeur 130 à $150\mu m$ et pour longueur environ $5mm$. Les paramètres optiques ont été choisis pour le système ADL dans le but d'obtenir une interfrange voisine à l'interfrange correspondant à une hauteur moyenne du volume de mesure DCW. Le volume de mesure ADL réalisé a pour interfrange $10,3\mu m$.

La collection de la lumière diffusée est effectuée par l'intermédiaire d'un séparateur dichroïque et de deux fibres optiques de diamètre utile $1mm$ amenant la lumière à deux diodes à avalanches.

L'angle de collection de la lumière diffusée est de 45° pour le système DCW et donc de 135° pour le système ADL. Deux diodes à avalanches transforment le signal optique en signal électrique. Ce dernier est filtré. Les hautes fréquences sont supprimées ainsi que la basse fréquence correspondant à la traversée du faisceau.

A partir du diamètre utile des fibres optiques ($1mm$), des focales des lentilles $L1$ et $L2$ (respectivement 120 et $60mm$) et de l'angle de collection (45° ou 135°), la hauteur efficace sur laquelle la lumière peut être collectée a été calculé, sa valeur est de $750\mu m$. Cette hauteur est une hauteur minimale puisque l'ouverture optique des fibres n'a pas été prise en compte.

5 Mesure avec la sonde couplée ADL-DCW

Pour valider l'efficacité de la sonde couplée ADL-DCW, un jet de gouttes d'alcool de diamètres supérieurs à $100\mu m$ a été déplacé le long de l'axe z du volume de mesure. Pour obtenir ce filet de goutte, un générateur de gouttes TSI 3050 a été utilisé. La tête de ce générateur a été disposé sur des déplacements micrométriques, assurant le déplacement précis du filet suivant l'axe z .

Une première étude a consisté dans l'enregistrement de signaux Doppler ADL et DCW caractéristiques par l'intermédiaire d'un oscilloscope numérique Lecroy 9354AL relié à un ordinateur PC. Les enregistrements ont été effectués sur deux voies de l'oscilloscope pour chaque déplacement du filet de $100\mu m$ suivant l'axe z positif (sens correspondant à l'écartement des franges DCW).

La figure 5 représente huit signaux ADL correspondant à un déplacement total de $700\mu m$. On peut aisément observer l'absence de variation de l'interfrange et donc une fréquence constante au cours du déplacement de la ligne de gouttes.

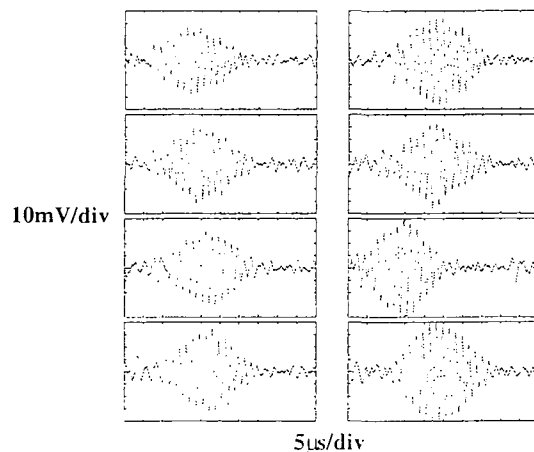


FIG. 5 - Évolution des signaux ADL

Les pics de fréquence obtenus sont centrés en $0,58MHz$, sachant que l'interfrange du volume de mesure ADL vaut $10,3\mu m$, la vitesse des gouttes suivant l'axe x est déduite et est égale à $U_x = 6,0m/s$.

On peut constater que ces signaux sont légèrement bruités. Ces bruits proviennent principalement des réflexions des faisceaux ADL sur la lentille cylindrique L_{DCW} . En effet, la coupure du faisceau α dédié à la création du volume de mesure DCW n'entraîne aucune atténuation significative du bruit. Par contre, le retrait de la lentille L_{DCW} affaiblit nettement ces perturbations.

Sur la seconde voie utilisée de l'oscilloscope, les signaux DCW ont été enregistrés, les huit signaux sont représentés sur la figure 6. L'évolution de la fréquence avec le déplacement du filet de gouttes est facilement observable. Le nombre de frange reste constant, mais l'interfrange augmente avec la position du jet.

L'évolution du pic de fréquence de ces signaux est représentée sur la figure 7a. On observe une décroissance de la fréquence des signaux en fonction de distance parcourue suivant l'axe z . La fréquence varie de près de $1,4MHz$ à près de $0,6MHz$ sur une distance de $700\mu m$ et pour une vitesse U_x de $6,0m/s$.

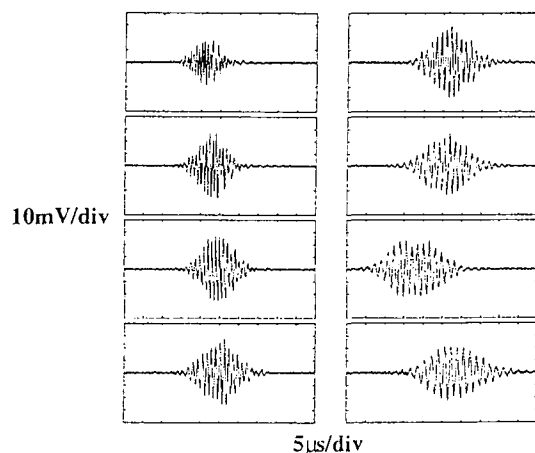


FIG. 6 - Évolution des signaux DCW

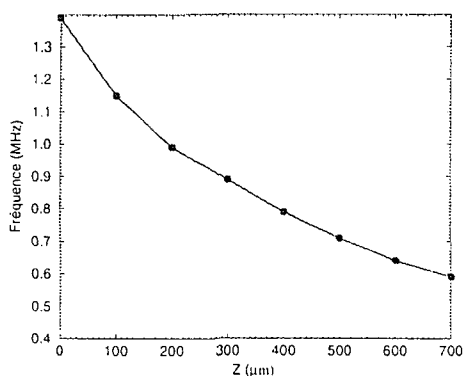
Si l'on suppose une linéarité de l'interfrange (cf section précédente) avec cette distance suivant z , on obtient:

$$i_{DCW} = a.z + b \quad (4)$$

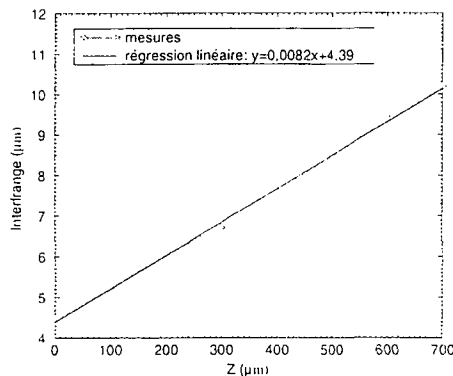
a correspondant à la pente et b au coefficient de la droite supposée.

Alors, pour une vitesse de particule constante Ux et égale à U_{ADL} , sachant que $U_{ADL} = i_{DCW}(z) \cdot f_{DCW}(z)$ où f_{DCW} est la fréquence du signal DCW mesuré, on obtient:

$$f_{DCW}(z) = \frac{U_{ADL}}{a.z + b} \quad (5)$$



(a) Evolution de la fréquence DCW



(b) Déduction de l'évolution de l'interfrange

FIG. 7 - Traitements des signaux DCW.

Pour vérifier la linéarité de l'interfrange mesuré, il suffit de tracer la courbe vérifiant $C(x) = U_{ADL}/f_{DCW}(z)$, pour $U_{ADL} = 6,0m/s$, cette courbe représentera l'interfrange en fonction de l'axe Z . Cette courbe est représentée sur la figure 7b, la linéarité est vérifiée, une régression linéaire procure une droite vérifiant:

$$i_{DCW} = 0,0082z + 4,39 \quad (6)$$

avec un coefficient de corrélation ayant pour valeur 0,9994.

L'interfrange i_{DCW} varie de plus de $4\mu m$ à plus de $10\mu m$ sur une distance de $700\mu m$ (la distance de mesure possible est légèrement supérieure).

5.1 Utilisation du logiciel d'acquisition et de traitement

Un logiciel qui permet l'acquisition (pilotage d'un oscilloscope numérique) et le traitement des signaux Doppler issus d'un système couplé ADL-DCW a été écrit.

Tout comme pour l'étude précédente, un filet de goutte de diamètre supérieure à $100\mu m$ a été déplacé dans le volume de mesure ADL-DCW. Ce filet de goutte a été déplacé de $-700\mu m$ pour effectuer des mesures commençant au même premier point que l'étude précédente.

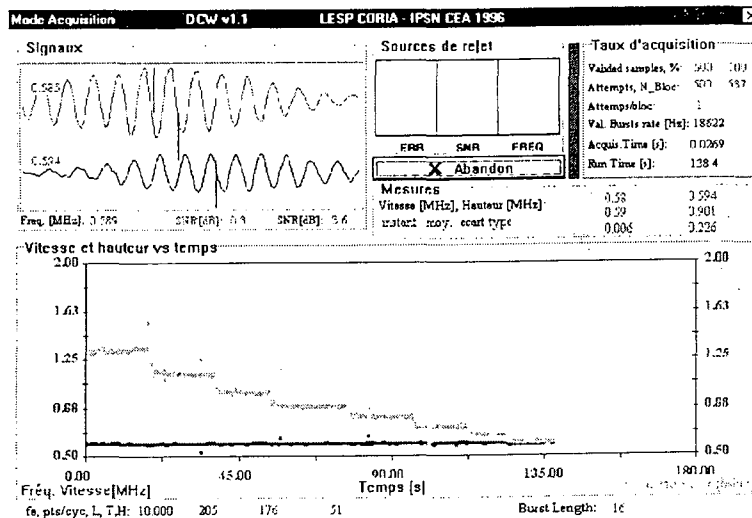


FIG. 8 – Acquisition du logiciel

La figure 8 représente la fenêtre d'acquisition, 500 gouttes validées sont attendues. Durant l'acquisition, approximativement toutes les 20 secondes, le filet de goutte est rapidement déplacé de $100\mu m$. La version du logiciel utilisé représente les fréquences des signaux.

La fréquence moyenne des signaux ADL (appelé dans le logiciel "fréquence vitesse") est indiquée dans la cadre "Mesure" et vaut $0,59MHz$ avec un écart type de $0,006MHz$.

L'évolution de la fréquence ADL en fonction du temps est représentée dans le large cadre inférieur, à chaque point correspond une fréquence (points foncés pour la fréquence ADL). On peut observer la valeur constante de fréquence, seuls trois points sortent légèrement de la courbe globale.

Dans ce même cadre est représentée l'évolution de la fréquence des signaux DCW (appelés par abus de langage "fréquences hauteurs"). Les fréquences sont ici affichées par des points clairs. La courbe comprend 8 différents paliers correspondant aux huit positions du filet de gouttes. On retrouve la courbe de la figure 7a, la fréquence des paliers correspondent aux fréquences indiquées sur cette courbe.

La fréquence DCW moyenne de la mesure globale ainsi que son écart type sont également inscrites dans le cadre "Mesure", respectivement $0,901MHz$ et $0,226MHz$. Ces valeurs sont placées sous la mesure du dernier signal enregistré, ici $0,594MHz$.

D'après le fichier d'enregistrement, la fréquence moyenne et les écarts types de chaque palier ont été calculés (les extrémités de chaque palier n'ont pas été prises en compte). Ces valeurs sont indiquées dans le tableau 1. La valeur de la fréquence DCW provenant de la courbe 7a en fonction des différents paliers est également présentée dans ce tableau.

Palier	1	2	3	4	5	6	7	8
Courbe 7a (MHz)	1,35	1,15	0,99	0,89	0,79	0,71	0,64	0,59
Moyenne (MHz)	1,33	1,15	1,01	0,89	0,81	0,72	0,66	0,6
Ecart type (MHz)	0,018	0,017	0,013	0,010	0,011	0,011	0,009	0,007

TAB. 1 - Statistiques déduites à partir du fichier de données enregistrées.

La mesure sur les différents paliers est très correcte, on constate de faibles écarts types. De plus, on retrouve les mêmes fréquences que les mesures individuelles précédentes.

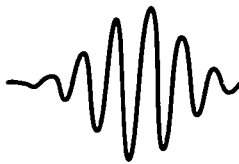
De cette étude on peut conclure que la détermination de la vitesse et de la hauteur de passage de particules peut être effectuée sur une hauteur supérieure à $700\mu m$ avec une précision inférieure à $20\mu m$ pour la mesure de hauteur.

6 Conclusion

Cet article décrit la mise au point d'une sonde couplée ADL-DCW. Cette sonde permet la mesure simultanée de la vitesse et de la hauteur de passage de particules dans une couche limite sur une distance supérieure à $700\mu m$ avec une précision inférieure à $20\mu m$ pour des particules de l'ordre de $100\mu m$. Des mesures de resuspension de particules seront effectuées, par l'intermédiaire de cette sonde, dans une veine d'écoulement où un lit peu dense de particules sera disposé. Une sonde monobloc sera prochainement réalisée, c'est à dire une sonde où les deux couples de faisceaux ADL et DCW proviennent de la même direction. Les réflexions des faisceaux ADL sur la lentille cylindrique L_{DCW} seront ainsi éliminées.

Références

- [1] A. A. Naqwi, X. Liu, and F. Durst. Dual-Cylindrical Wave Method for Particle Sizing. *Part. Part. Syst. Charact.*, 7:45-53, 1990.
- [2] A. A. Naqwi, X. Liu, and F. Durst. Evaluation of the Dual-Cylindrical Wave Laser Technique for Sizing of Liquid Droplets. *Part. Part. Syst. Charact.*, 9:44-51, 1992.
- [3] 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.
- [4] A. A. Naqwi. Innovative Phase Doppler Systems and their Applications. *Third International Congress on Optical Particle Sizing*, 1993.
- [5] 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. Charact.*, 11:101-106, 1994.



Distributeur exclusif
TSI Inc., 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.

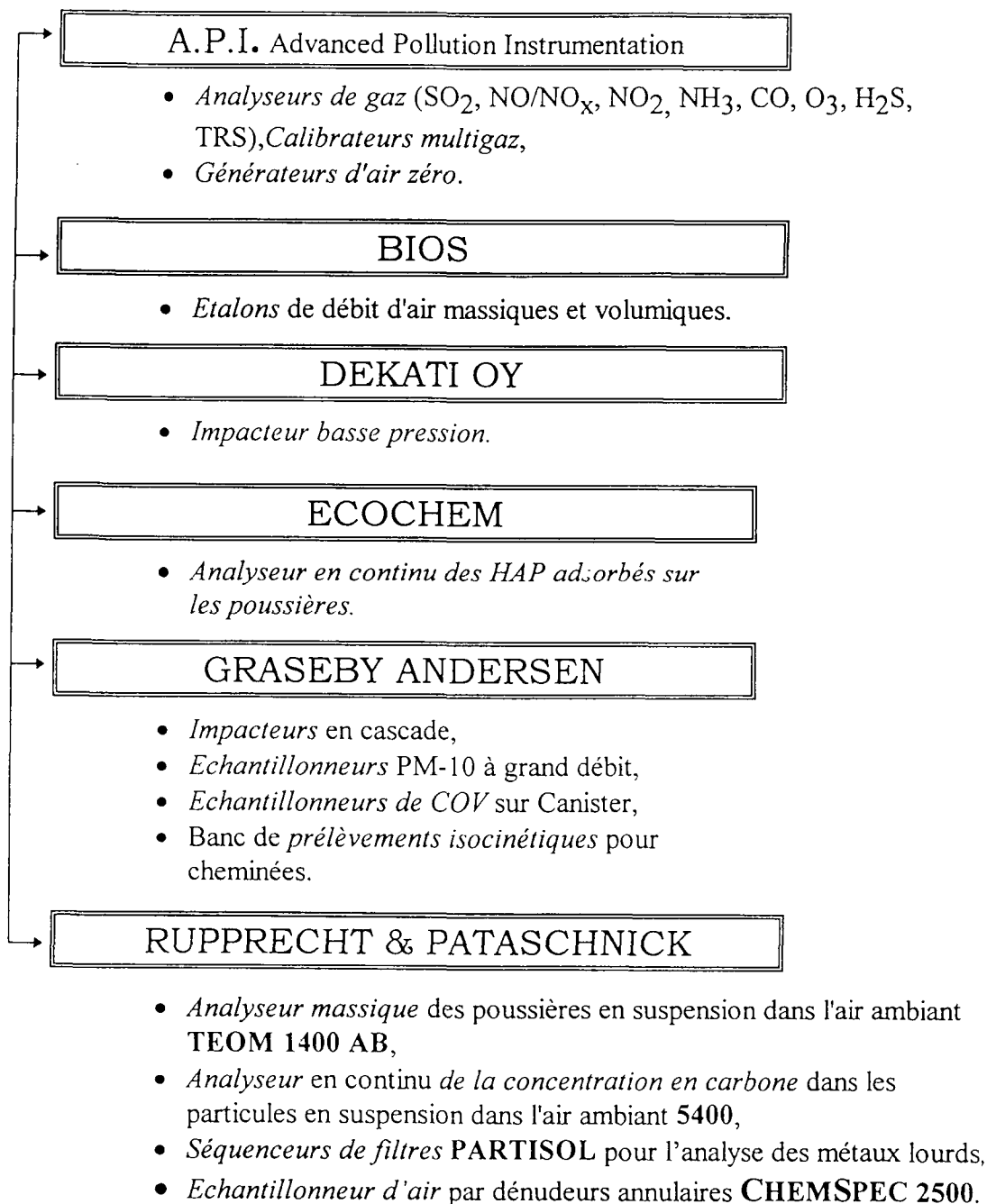
ECOMESURE

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.

Marques représentées



ECOMESURE

Etudes Contrôle Mesure

Expéditeur

- Nom
- Société-Laboratoire

• Adresse

• Téléphone

• Fax

• Appel téléphonique

• Visite d'un technicien ECOMESURE souhaitée

• Devis

ECOMESURE

B.P. 13

91640 Briis-sous Forges

Programme d'activités

ECOMESURE est heureux de vous présenter son programme d'activités.

- Pour obtenir une information générale, il vous suffit de cocher les cases correspondantes de la liste par activité.
- Pour obtenir une information plus précise ainsi qu'un devis, nous vous conseillons d'utiliser la liste par marque au verso.
- N'oubliez pas d'inscrire votre nom et votre adresse complète.
- Nous vous en remercions par avance.

Environnement

- Analyseurs de gaz
- Calibrateurs
- Échantillonneurs de C.O.V.
- Préleveurs de poussières
- Séquenceurs de filtres
- Analyseurs de poussières en continu
- Granulomètres par impaction en cascade

Contrôle de la contamination Air, Liquide, Gaz

- Comptage de particules (salles blanches)
- Comptage de particules sur gaz sous pression
- Contrôle bactériologique dans l'air
- Comptage de particules dans les liquides
- Mesure des particules en suspension dans l'eau potable

Émission

- Analyseurs de gaz
- Préleveurs isocinétiques pour cheminées
- Analyseur de carbone dans les cendres
- Échantillonneurs de C.O.V.
- Granulomètres par impaction en cascade

Hygiène industrielle-sécurité

- Analyseurs et détecteurs de poussières portatifs
- Analyseur combiné gaz/poussières portatif
- Granulomètres par impaction en cascade
- Biocollecteurs

Étalons

- Générateurs d'aérosols
- Étalons de débit d'air portatifs
- Étalonnage de compteurs de particules air et liquides
- Calibrateurs pour analyseurs de gaz

ECOMESURE

B.P. 13 - F 91640 Briis-sous Forges

Tél. : (+33) 01 64 90 55 55 - Fax : (+33) 01 64 90 55 66

MET ONE (Air et Gaz)

Compteurs de particules pour Salles blanches

- Débit : 2,8 l/mn
- 28 l/mn
- Sensibilité : 0,1 ou 0,2 micron
- 0,3 micron et plus

Systèmes centralisés de surveillance de salles blanches

- Multivoies
- Multisondes
- Sondes d'environnement : température, humidité, pression, etc...
- Logiciel de supervision

Compteurs à noyau de condensation

- Air et gaz neutres
- Gaz inflammables

Accessoires

- Diffuseur pour gaz haute pression
- Générateurs d'aérosol
- Billes de latex calibrées
- Étalon de débit portatif

MET ONE (Liquides)

Compteurs de particules à diffusion laser

- Sensibilité : 0,1 ou 0,2 micron
- 0,5 micron et plus

Compteurs de particules extinction de lumière

- Gamme : 0,5 à 150 microns
- 1 - 300 microns
- 2 à 400 microns

Passeurs d'Échantillons

- Grand volume : 10 à 120 ml
- Faible volume : 1 à 10 ml

DEKATI OY

- Impacteurs en cascade basse pression (0,035 à 10 µ)
- Version manuelle
- Version «on line»

A.P.I.

Analyseurs de Gaz SO₂, NO-NO_x-NO₂, CO, O₂, NH₃, H₂S, HC

- Environnement
- Emission

Calibrateurs

- Pour analyseurs d'ozone
- Multigaz : Ozone, NO, NO₂, CO, HC, SO₂, TPG

ANDERSEN

Andersen Environnement

- Préleveurs de poussières à grand débit PM-10
- Échantillonneurs de C.O.V.
Canisters
- Cartouches absorbantes
- Échantillonneurs pour pluies acides
- Impacteurs en cascade
- Têtes de prélèvement PM-10

Andersen Émission

- Préleveurs isocinétiques de poussières pour cheminées, manuels et automatiques
- Échantillonneurs de C.O.V. en cheminées
Canisters
- Cartouches absorbantes
- Impacteurs en cascade

Andersen Biocontamination

- Biocollecteurs à 1 ou 6 étages

RUPPRECHT & PATASHNICK

Environnement

- Analyseurs gravimétriques de poussières en suspension TEOM 1400 A
- Préleveurs et séquenceurs de filtres PARTISOL
- Analyseurs de carbone dans les poussières en suspension RP 5400
- Denudeurs annulaires CHEMSPEC

Emission

- Analyseurs en continu de poussières en gaine et cheminée
- Analyseurs en continu du carbone dans les cendres volantes

Hygiène

- Analyseurs et détecteurs de poussières portatifs
- Analyseurs combinés gaz/poussières portatifs

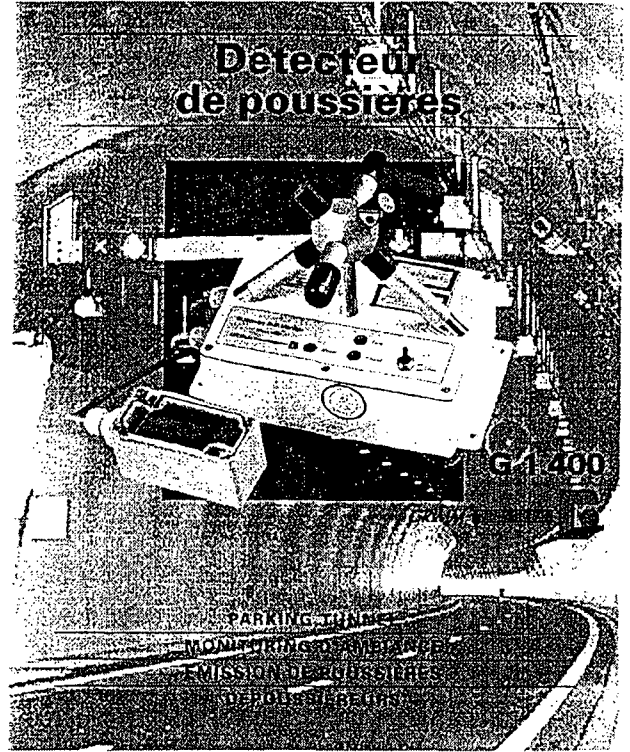
Compteur de poussières



DustTrak
T.S.I.

ETUDE GRANULOMETRIQUE
CARTOGRAPHIE
ETUDE DES POSTES DE TRAVAIL
EFFICACITE DES FILTRES

Detecteur de poussières



G 1.400

PARKING-TUNNEL
MONITORING D'AMBIANT
EMISSION DE POUSSIERES
MEDIUM-BEAM

Hygiène industrielle

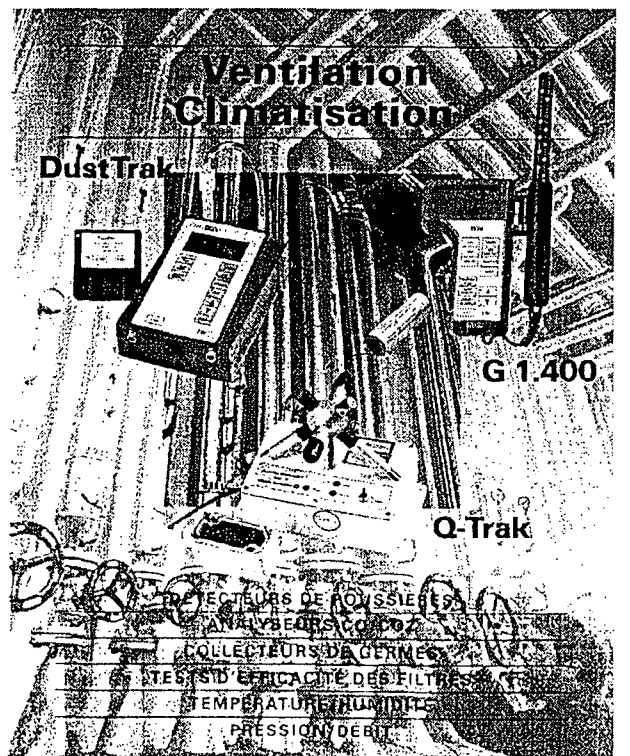


Q-Trak

G 1.105

COMPTEURS DE POUSSIERES
ANALYSEURS DE CO₂
COLLECTEURS DE GERME
ANALYSEURS DE RADON
PRELEVEURS INDIVIDUELS DE POUSSIERES
TESTS D'EFFICACITE DES MASQUES RESPIRATOIRES

Ventilation Climatisation



DustTrak

G 1.400

Q-Trak

DETECTEURS DE POUSSIERES
ANALYSEURS CO₂
COLLECTEURS DE GERME
TESTS D'EFFICACITE DES FILTRES
TEMPERATURE HUMIDITE
PRESSION DEBIT

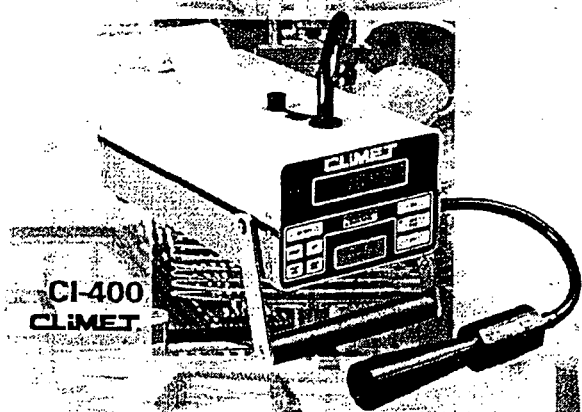


Intertek Testing Services
I.C.S.

B.P.1 - 91, rue du Général de Gaulle
27109 LE VAUDREUIL - France
Tél : 02 32 09 36 26 - Fax : 02 32 09 36 28

Contact : Mr BERTIN Pascal

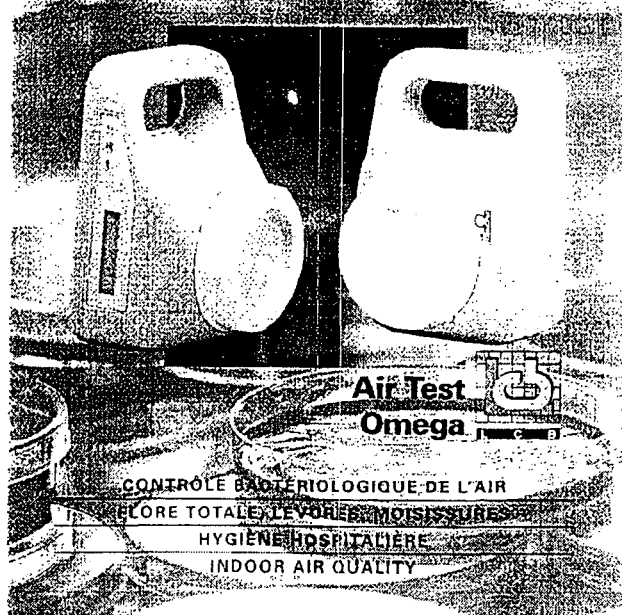
Compteurs de particules



CI-400
CLIMET

SALLES BLANCHES
HOTTES À FLUX LAMINAIRES
CONTRÔLE DES FILTRES HEPA
CONTRÔLE DE LA PURETÉ DES GAZ

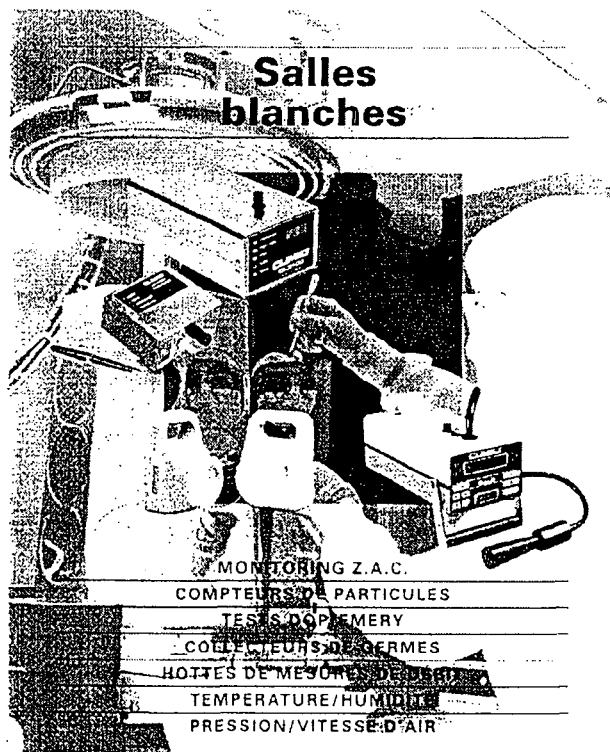
Collecteur de germes



Air Test
Omega

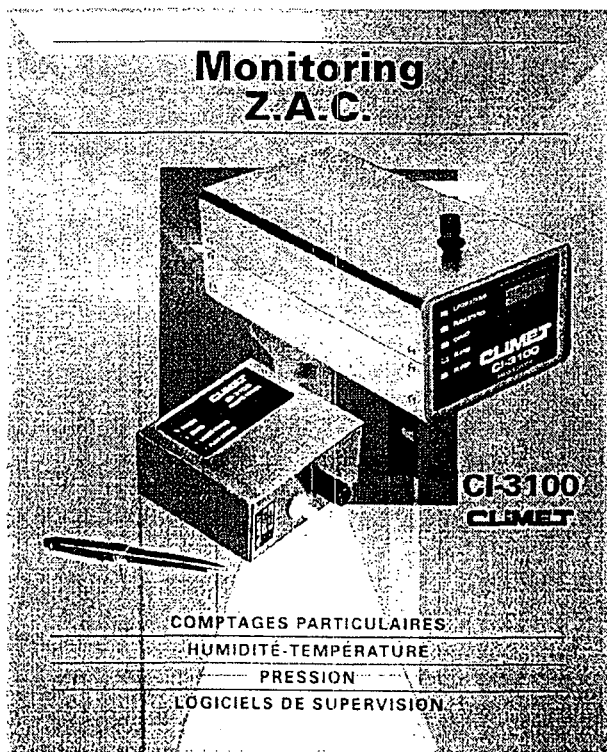
CONTRÔLE BACTÉRIOLOGIQUE DE L'AIR
FLORE TOTALE, LEVURES, MOISSISSURES
HYGIÈNE HOSPITALIÈRE
INDOOR AIR QUALITY

Salles blanches



MONITORING Z.A.C.
COMPTAGES DE PARTICULES
TESTS DOPEMERY
COLLECTEURS DE GERMES
HOTTES DE MESURE DE DEBIT
TEMPERATURE/HUMIDITE
PRESSION/VITESSE D'AIR

Monitoring Z.A.C.



CI-3100
CLIMET

COMPTAGES PARTICULAIRES
HUMIDITE-TEMPERATURE
PRESSION
LOGICIELS DE SUPERVISION



Intertek Testing Services
I.C.S.

B.P.1 - 91, rue du Général de Gaulle
27109 LE VAUDREUIL - France
Tél : 02 32 09 36 26 - Fax : 02 32 09 36 28

Contact : Mr BERTIN Pascal



Une comparaison entre des néphélomètres et des compteurs de particules optiques

Une question courante : Quand faut-il utiliser un néphélomètre ou un compteur de particules ?

Avant de répondre à cette question nous souhaitons fournir quelques renseignements sur les principes et caractéristiques de ces deux méthodes de mesure.

Les compteurs de particules optiques (CPO) ont un petit volume d'analyse (i.e. la région dans laquelle les particules sont détectées et comptées) ce qui permet de détecter les particules individuellement. Un CPO travaille correctement si la concentration en nombre de particules est assez basse pour garantir que les particules passent individuellement les unes après les autres dans ce volume. Sinon le nombre de particules qui est compté ainsi que la taille des particules indiquée, sont faux. Un CPO réclame un débit constant et précis puisque le nombre de particules compté doit être divisé par le volume d'air analysé pour obtenir la concentration en nombre de particules.

La plupart des CPO mesurent des particules avec des diamètres supérieurs à 0.3 micromètres, d'autres plus sophistiqués peuvent détecter des particules plus petites. La mesure des CPO est basée sur le nombre de particules compté par classe de taille et non pas sur le volume ou la masse des particules. Dans la plupart des cas les petites particules (proche de la limite inférieure de détection des CPO) sont beaucoup plus nombreuses que les grandes particules donc le résultat de ces instruments est assez imprécis pour calculer la concentration en masse par volume.

Les néphélomètres ne comptent pas des particules individuellement. Ces instruments donnent la concentration des particules en masse par volume en mesurant l'intensité de la lumière diffusée par l'ensemble des particules traversant le volume d'analyse. Ce volume est assez grand, permettant à un grand nombre de particules de le franchir en même temps. La vitesse avec laquelle ces particules passent le volume d'analyse n'a pas d'influence sur l'intensité de la lumière diffusée. La mesure des néphélomètres ne dépend pas du débit d'air.

Pour des particules ayant une taille proche de la longueur d'onde de la source lumière du néphélomètre, le résultat de celui-ci est directement proportionnel à la concentration en masse par volume des particules traversant le volume d'analyse. Pour la poussière qu'on trouve typiquement et qui a une large répartition par diamètres de particules, la concentration en masse donnée par des néphélomètres est indépendante du diamètre moyen des particules dans la gamme de 0.2 à 3.0 micromètres diamètre. Cette gamme est la plus importante pour les effets sur la santé.

Les CPO sont utilisables pour caractériser des environnements à faible concentration de particules comme les salles blanches où le nombre des particules est imposé et où il est important de mesurer la répartition par taille de particule. Donc les mesures données par des CPO sont très limitées pour la plupart des applications en hygiène industrielle et pour les procédures industrielles créant des particules.



La limite principale d'utilisation des CPO est la surcharge par un nombre élevé de petites particules. Les volumes d'analyse typiques des CPO sont de l'ordre de 10^{-4} cm³ ce qui entraîne des erreurs de comptage importantes pour des concentrations supérieures à 10^3 particules par cm³. Pour des particules d'un diamètre de 0,5 micromètre et formant un nuage d'une densité de 1g/cm³, cette limite correspond à une concentration en masse de 0.065 mg/ m³.

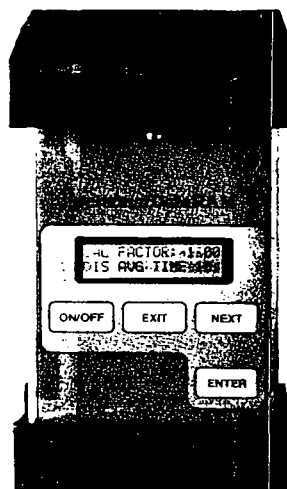
Les néphélomètres couvrent la gamme de 0.0001 à 400 mg/ m³ pour des particules dans la gamme de 0.1 à 10 micromètres. C'est pourquoi, pour la grande majorité des applications un néphélomètre est l'instrument le mieux adapté.

Les domaines typiques d'utilisation des néphélomètres sont: L'analyse de l'efficacité des filtres dans les processus industriels, le contrôle d'émission de particule, la mesure de la qualité d'air, l'hygiène industrielle et la détection des fumées.

La société **SCHAEFER** commercialise les néphélomètres MIE suivants:

Personal DataRAM (circulation passive)

- Gamme de concentration: 0,001 à 400 mg/m³
- Sauvegarde des données : > 10 ans
- Intervalle de reinitialisation d'écran : 1 seconde
- Seuil d'alarme ajustable
- Ecran : LCD 16 caractères, 2 lignes
- Sortie série : RS 232
- Sortie analogique : 4 - 20 mA
0 - 5V
- Alimentation : batterie 9V ou 220V via adaptateur
- Dimension : 153 mm X 92 mm X 63 mm
- Poids : 0,5 kg

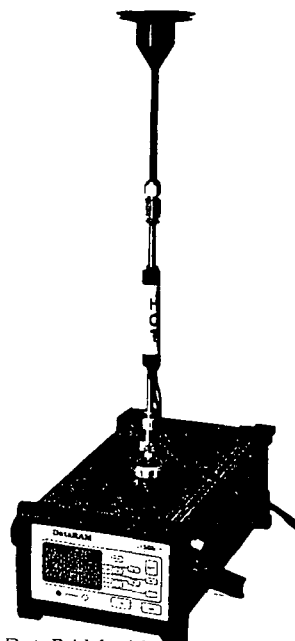


- Coefficient de diffusion : $1,5 \times 10^{-6}$ à $0,6 \text{ m}^{-1}$ à une longueur d'onde de 880 nm
- Précision (2 -sigma) : $\pm 10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour moyenne sélectionné sur 1 seconde
 $\pm 1,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour moyenne sélectionné sur 60 secondes
- Résolution : 0,1 % de la valeur affichée ou $0,001 \text{ mg}/\text{m}^3$ pour les concentrations $< 1 \text{ mg}/\text{m}^3$
- Diamètre des particules pour réponse maximale : 0,1 à 10 μm
- Mise en mémoire de 10.000 concentrations moyennée entre une seconde et 4 heures
- Données enregistrées :
 - Pour 10.000 points : concentration moyennée, heure/date et nombre de points
 - Pour la mesure complète : concentration moyennée et maximale, heure/date du pic maximum, nombre de points, heure/temps du démarrage de la mesure, la durée de la mesure, le facteur de calibration.



DataRAM (circulation active)

- Gamme de concentration: 0,1 μg à 400 mg/m^3
- Débit de la pompe: 1,7 - 2,3 litres/minute
- Seuil d'alarme ajustable
- Sauvegarde de données : > 10 ans
- Ecran: LCD 15 caractères, 8 lignes
- Sortie série : RS 232
- Sortie analogique : 0 - 5V
- Alimentation : batterie interne ou 220V via adaptateur
- Dimension : 134 mm x 184 mm x 346 mm
- Poids : 5,3 kg



*DataRAM with
In-Line Heater for
monitoring in high
humidity or fog*

- Coefficient de diffusion : $1,5 \times 10^{-7}$ à $0,6 \text{ m}^{-1}$ à une longueur d'onde de 880 nm
- Précision (2 -sigma) : $\pm 1,0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour moyenne sélectionnée sur 1 seconde
 $\pm 0,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour moyenne sélectionnée sur 60 secondes
- Diamètre de particules pour réponse maximale : 0,1 à 10 μm
- Mise en mémoire de 10.000 concentrations moyennée entre une seconde et 4 heures
- Données enregistrées :
 - Pour 10.000 points : concentration moyennée, heure/date et nombre de points
 - Pour la mesure complète : concentration moyennée et maximale, heure/date du pic maximum, nombre de points, heure/temps du démarrage de la mesure, la durée de la mesure, le facteur de calibration.

La société SCHAEFER commercialise également:

PC-2 : UN ANALYSEUR DE PARTICULES EN TEMPS REEL

Les impacteurs en cascade sont utilisés pour obtenir des informations sur la taille et la concentration en masse des particules.

Le PC-2 est un impacteur en temps réel qui vous donne les résultats d'une mesure en quelques secondes. La mesure en temps réel est faite en utilisant des microbalances piézo-électriques à quartz (QCM) qui permettent de peser chaque étage de l'impacteur électroniquement. Ceci élimine les inconvénients des impacteurs conventionnels où les filtres doivent être pesés avant que les résultats soient obtenus.

Nous nous tenons à votre disposition pour tous renseignements complémentaires.

SCHAEFER TECHNIQUES

Hansgerd Kramer, 1 rue du Ruisseau Blanc, F-91620 Nozay

Tél.: 01.64.49.63.50 Fax: 01.69.01.12.05

Email: schaefertechniques@compuserve.com

5th International Aerosol Conference

**Edinburgh,
Scotland**

12-18 Sept. 1998

**Second Call
for Papers**

Organised by:



The Aerosol Society

on behalf of

IARA

**I
A
C
98**

Members of the International Advisory Programme Committee

Prof R Jaenicke, Germany
 Dr U C Mishra, India
 Dr U Baltensperger, Switzerland
 Prof Th Kouimtzis, Greece
 Prof C Gutfinger, Israel
 Prof H-C Hansson, Sweden
 Prof Dr A Renoux, France
 Dr J Marijnissen, The Netherlands
 Prof C-J Tsai, Taiwan

Dr P Berghmans, Belgium
 Dr J Jokiniemi, Finland
 Dr A M Gañán-Calvo, Spain
 Prof N N Belov, Russia
 Prof P E Wagner, Austria
 Dr J Smolik, Czech Republic
 Prof H Tammet, Estonia
 Prof Y Iwasaka, Japan
 Prof P Hopke, USA

Members of the International Advisory Organisation Committee

Prof A Schmidt-Ott, Germany
 Prof R S Patil, India
 Prof U Schurath, Germany
 Prof C Samara, Greece
 Prof M Shapiro, Israel
 Dr P Hummelshøj, Denmark
 Dr D Boulaud, France
 Prof B Lin, China

Dr R van Grieken, Belgium
 Dr K Hameri, Finland
 Prof P L Garcia-Ybarra, Spain
 Prof V E Zuev, Russia
 Prof C Kanaoka, Japan
 Dr T van der Meulen, The Netherlands
 Prof C-S Wang, Taiwan
 Dr S V Hering, U S A

The International Aerosol Research Assembly

President: Dr D S Ensor, USA

Secretary: Prof C Kanaoka, Japan

The International Aerosol Research Assembly (IARA) was formed to act as a channel of communication between national aerosol societies and to co-ordinate International Conferences. It also has as an objective, "the promotion of scientific understanding in the field of airborne particles." It was originally formed by the aerosol research organisations of Germany (GAeF), Japan (JAAS) and the USA (AAAR). Since its formation in 1982 many other national societies have joined the organisation and membership now stands at ten. Selecting a host for the International Aerosol Conference (IAC), held every four years, remains the primary role of the Assembly. IAC 98 in Edinburgh will be the fifth of these conferences, the first of which was held in Minneapolis and coincided with the formation of the IARA. The growth of the Assembly and the increasing stature of the IAC reflects the strong development, worldwide, of interest in aerosol science and technology.

The Local Executive Committee

Organisation

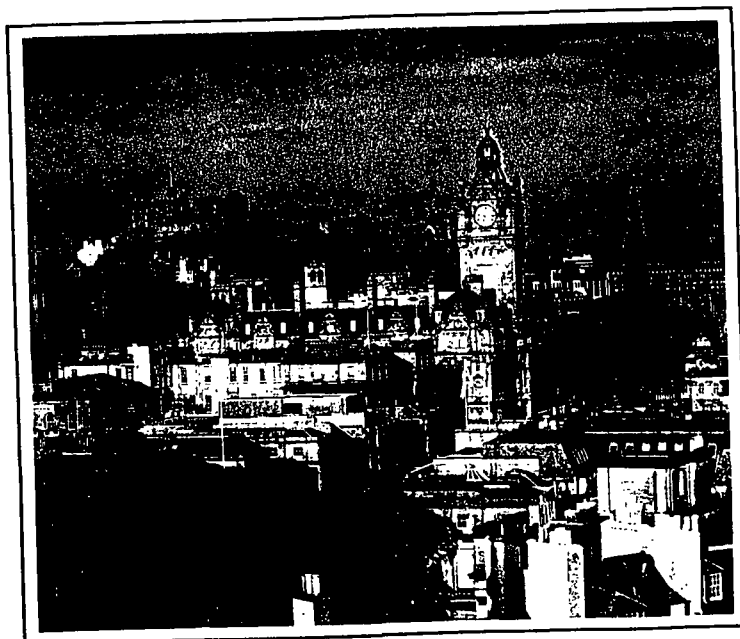
Mr Alan Cussens (Chairman)
 Dr Miriam Byrne
 Prof Don Clark
 Mrs Ethne Hawkins (Secretary)

Dr Alan Jones
 Prof Paul Kaye
 Mr David Mark
 Dr Ian Ford

Programme

Prof Don Clark (Chairman)
 Dr Charles Clement
 Dr Ian Colbeck

Dr Lee Kenny
 Dr David Morton
 Dr Giles Harrison



Edinburgh from Calton Hill.
 ©S.J. Taylor/Still Moving Pic Co

This Symposium will be held as a prelude to the Main Conference, and will be organised by Professor H Fissan of Duisburg University, Germany, on behalf of The European Science Foundation and The National Science Foundation. All enquiries should be addressed to Professor Fissan. The Symposium is free of charge, but if you require accommodation for either the Friday or Saturday nights, you must book these on the enclosed booking form.

Tutorials - Sunday 13th September 1998

A full day of tutorials offering high quality professional advancement sessions will be held on Sunday, 13th September, prior to the start of the conference. All will be given by world class experts in the field and will provide both the opportunity for introductions to unfamiliar aspects of aerosol science and briefings on the state of the art for a wide range of topics of current interest.

**The Main Conference
Monday 14th to Friday 18th September 1998**

The International Aerosol Conference is clearly the most important and prestigious event in the calendar of conferences in the field of aerosol science. Being held only once every four years, this is the forum at which your work will have the widest international audience. Papers are invited from all fields of aerosol science and technology. The list given below covers the majority of potential subject areas, but it is not intended to be exclusive; papers that do not fall exactly into one of the categories are equally welcome. There will be five parallel sessions of platform presentations lasting 20 minutes each, and there will be separate sessions for posters and workshops. The two-page abstracts selected for the Conference will be published in a supplement to the Journal of Aerosol Science. *Running in parallel with the five days of conference sessions will be an exhibition of state-of-the-art equipment from the major manufacturers in the field, worldwide.*

Plenary Speakers

Each day will begin with a plenary lecture featuring a distinguished scientist who will provide a stimulating overview of their field of expertise.

Speaker	Title
Sir John Mason, CB, FRS	Cloud Physics
Professor Jim Vincent	Advances In Aerosol Sampling Science and Its Practical Applications
Professor Anthony Seaton	The Health Effects of Urban Particulate Air Pollution
Professor Richard Flagan	Atmospheric Aerosol Characterisation
Professor Ruprecht Jaenicke	Biological Aerosols In the Atmosphere

Principal Conference Topics**Instrumentation and Measurement**

Analysers
Spectrometry
Monitoring
Sampling

Aerosols and Industry

Materials
Combustion
Filtration and Air Cleaning
Clean Environments
Nuclear Aerosols

Aerosols and Health

Indoor Aerosols
Pharmaceutical Aerosols
Health Effects
Biological Aerosols

Aerosol Physics

Optics
Thermodynamics and Nucleation
Transport and Deposition
Particle Charging

Aerosol Chemistry

Heterogeneous Chemistry
Mass Spectroscopy
Optical Spectroscopy

Atmospheric Aerosols

Climate
Environmental Aerosols
Modelling
Biomass

5th International Aerosol Conference Edinburgh, 12th - 18th September 1998

Abstract Submission

Please complete this form and return it together with your two page 'camera-ready' abstract following the example on the back of this form, **no later than 28th February 1998**.

Title: Name/Surname: Initials/First Name:
Title of Paper:
Name of Presenter:
Company/Organisation:
Address:
..... Post/Zip Code:
Country: E-mail:
Telephone No: Fax No:
I would prefer to present this as a platform presentation
I would prefer to present this as a poster

Please indicate which topic(s) and sub-topic(s) you think best befits your paper.

Aerosol Physics

- Optics
- Thermodynamics and Nucleation
- Transport and Deposition
- Particle Charging

Aerosol Chemistry

- Heterogeneous Chemistry
- Mass Spectroscopy
- Optical Spectroscopy

Aerosols and Industry

- Materials
- Combustion
- Filtration and Air Cleaning
- Clean Environments
- Nuclear Aerosols

Atmospheric Aerosols

- Climate
- Environmental Aerosols
- Modelling
- Biomass

Aerosols and Health

- Indoor Aerosols
- Pharmaceutical Aerosols
- Health Effects
- Biological Aerosols

Instrumentation and Measurement

- Analysers
- Spectrometry
- Monitoring
- Sampling

Instructions for the preparation of abstracts for the conference proceedings

1. The abstracts are to be produced in camera ready copy and are to be a maximum of two pages long.
2. The format of the abstract should follow as closely as possible that shown in the example provided on the back of this sheet.
3. All parts of the abstract must be within a box 240 mm long by 160 mm wide; the box should not, however, be printed. A top margin of 29 mm and a left hand margin of 23 mm are mandatory.
4. The abstract should be printed using a laser printer wherever possible. Use of a manual typewriter is an acceptable alternative but the use of dot matrix printers is not recommended.
5. All text, diagrams and photographs must be black and white.
6. Text should be Times Roman 12 pt or the nearest available equivalent. It is acceptable to reduce font size for purposes such as labelling the axes of graphs but it should be borne in mind that the font size will reduce slightly on printing and anything smaller than 10 pt may become illegible.
7. Wherever possible, diagrams and graphs should be imported into the word processing package for printing to the same standard as the text. Where photographs are used original prints of the correct size should be securely pasted in the appropriate position on the abstract. Photocopies of graphic elements should not be used as these cannot be printed effectively.
8. All figures and tables should be numbered separately and consecutively using Arabic numerals. Table numbers should be placed above the table and figure numbers below the figure. Both should be centred. Vertical lines in tables should be avoided.
9. References to literature in the text should be in the form: Jones (1950) or Jones et al (1950) if there are more than three authors. The list of references should be given in alphabetical order with the authors' surnames first, followed by the date of publication. The title of the journal should be abbreviated as in the World List of Scientific Periodicals (4th Edition). Examples are given at the end of the sample abstract.

LISTE ALPHABETIQUE DES AUTEURS

	page
AINZENBERG V.	171
ATTOUI M.	44
BARON P.A.	171
BELOT Y.	191
BENEITO A.	191
BOULAUD D.	65
BOUSCAREN R.	107
BULTYNCK H.	211
CABON J.Y.	11
CAMARASA-CLARET C.	25
CETIER P.	211
CONTAL P.	147
CORBIN F.	199
DEL FABBRO L.	91
DERANGERE D.	129
DESENFANT M.	135
DUCRET D.	91
FABRIES J.F.	177
FERRY C.	191
FEUILLEBOIS F.	71
GARRY P.	145
GABAY D.	37
GAUCHET N.	91
GEHIN E.	59
GENSDARMES F.	83
GIL F.	145
GUEGAN H.	31
GÖRNER P.	177
GOUESBET G.	199
GREHAN G.	199
GRIMALDI F.	123
GRINSHPUN S.A.	171
HARISTOY D.	191
HUET C.	185
JURSKI K.	59
KEROUANTON D.	191
KLEITZ A.	205

LABED V.	191
LACHAPELLE G.	177
LAYLY V.D.	101
LE BIHAN O.	11
LE BRONEC E.	193
LECLERC D.	147
LE GUERN C.	
MALET J.	65
MAZOUÉ S.	37
MESS L.	77
MESZAROS E.	9
MICHELSEN N.	65
MONTAMAT M.	135
MOREAU R.	129
MULCEY P.	145
PARFAIT C.	19
PENICOT P.	147
PERSIN F.	25
PIGEONNEAU F.	71
PLUMECOCQ W.	101
POURPRIX M.	193
REAL J.	25
REINEKING A.	185
RENOUX A.	7
RICHON P.	191
ROBE M.F.	191
ROBINE E.	129
ROGER F.	177
SAGET P.	155
SALDO V.	50
SMITH J.	171
THOMAS D.	147
TYMEN G.	185
VANDEUVRE J.L.	145
VENDEL J.	91
VERLOO E.	50
WENDI J.	185
WILLEKE K.	171
WITSCHGER O.	171
ZOULALLIAN A.	50

LISTE DES PARTICIPANTS

AMMERICH M.
CEA
CE Saclay Bât. 395
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 93 89
fax : 01 69 08 57 53

ARNAL C.
FILTRAUTO/LABINAL
5 ave Newton
78053 ST. QUENTIN EN
YVELINES
tél. : 01 30 85 34 56
fax : 01 30 85 36 36

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

ALLOUL 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

BEKE B
INSTRUMAT
4 avenue des Andes
91943 LES ULIS Cedex
tél : 01 69 28 27 34
fax : 01 69 28 86 02

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

BEUZET M.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

BILLAT
INSTRUMAT
4 avenue des Andes
91943 LES ULIS Cedex
tél : 01 69 28 27 34
fax : 01 69 28 86 02

BLONDEL D.
LESP
INSA de Rouen URA
CNRS 230, CORIA BP 08
76130 MONT St AIGNAN
tél : 02 35 14 64 60

BOISSIER 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

BOUILLY D.
INSTITUT PASTEUR
25 rue du docteur Roux
75015 PARIS
tél. : 01 40 61 33 97
fax : 01 40 61 31 48

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

BULTYNCK H.
LESP
INSA de Rouen URA
CNRS 230, CORIA BP 08
76131 MONT St AIGNAN
tél : 02 35 14 64 60

CALLE S.
LSGC/CNRS
1 rue Grandville B.P. 541
54001 NANCY Cedex
tél. : 03 83 17 51 90
fax : 03 83 32 29 75

CETIER Ph.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 60 00

CHAMBRE C.
ECOMESURE B.P. 13
91640 BRIIS SOUS FORGES
tél : 01 64 51 81 59

CHAUCHERIE X.
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

CHOUARD J.C.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 23 59

CLARET C.
DPRE/SERE/LRE
CE Cadarache
13108 Saint Paul lez Durance
tél. : 04 42 25 75 43
fax : 04 42 25 64 44

CONTAL P.
LSGC/CNRS
Université Henri Poincaré
1 rue Grandville
54000 NANCY
tél. : 03 83 17 51 97
fax : 03 83 32 29 75

CORNET P.
CEA/DRN/DMT/SEMT
Laboratoire des Transferts
Thermiques et Mécanique des
Fluides
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 60 00

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

COUTY B.
IMFL
5 Bd. P. Painlevé
59045 LILLE Cedex

DEBOUDT K.
STATION MARINE de
WINEREUX
CNRS/INSU 395
28 avenue Foch B.P. 80
62930 WINEREUX
T2L. 03 21 99 29 03
fax : 03 21 99 29 01

DELPONT B.
ECOMESURE
B.P. N°13
91640 BRIIS SOUS FORGES
tél : 01 64 90 55 55
fax : 01 64 90 55 66

DERANGERE D.
CSTB
84 ave J. Jaurès B.P. 02
77421 MARNE LA VALLÉE
tél : 01 64 68 82 66
fax : 01 64 68 84 73

DONATI
Laboratoire Central de
la Préfecture de Police
39 bis rue de Dantzig
75015 PARIS
tél : 01 55 76 20 00

DOUGET C.
AREMARTOIS
Centre Jean Monnet
Avenue de Paris
Entrée Asturies
62400 BETHUNE
tél. : 03 21 63 69 01
fax : 03 21 01 57 26

DUCRET D.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 23 59

DREUX M.
I. C. D. A. B.P. 6759
Faculté des Sciences
45067 ORLEANS la Source
tél.: 02 38 41 70 74
fax : 02 38 41 70 74

DUCRET D.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 60 00

FABRIES J.F.
INSTITUT NATIONAL DE
RECHERCHE ET DE
SECURITE B.P.27
Av. de Bourgogne
54501 VANDOEUVRE
tél : 03 83 50 20 29
fax : 03 83 50 20 97

FAUVEL S.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 60 00

FEUILLEBOIS F.
URA CNRS 857
Laboratoire PMMH
10 rue Vauquelin
75231 PARIS CEDEX 05
tél : 02 40 79 45 53

FONTAINE Ch.
GRANDE PAROISSE SA
Rue de l'Industrie
BP 204
76121 LE GRAND QUEVILLY
Cedex
tél : 02 35 67 40 99

GABAY
RATP LAC 67
54 Quai de la Rapée
75599 PARIS
tél : 01 44 68 32 07

GAIFFE V.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 60
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

GEHIN E.
IUT LETIEF
Av. du Gal de Gaulle
94010 CRETEIL Cedex
tél : 01 45 17 10 63

GENSDARMES F.
CEA/IPSN/DPEI/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 60 00

GINESTET A.
CETIAT
27/29 Bd du 11 Novembre 1918
69100 VILLEURBANNE
tél : 04 72 44 49 84

GÖRNER P.
INSTITUT NATIONAL DE
RECHERCHE ET DE
SECURITE B.P. 27
Av. de Bourgogne
54501 VANDOEUVRE
tél : 03 83 50 20 00

GOUESBET G.
LESP INSA de Rouen
UMR CNRS 6614 B.P. 08
76130 MONT St. AIGNAN
tél.: 02 35 52 83 92

GOUGEON R.
AEROCINESIS
12 ave du Québec Bât. I 1
Villebon sur Yvette B.P.
621
tél : 01 64 46 60 78
fax : 01 64 46 53 10

GOURONNEC A.-M.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 60 00

GREHAN G.
LESP
INSA de Rouen URA
CNRS 230, CORIA BP 08
76131 MONT St AIGNAN
tél : 02 35 52 83 87

GRIMALDI F.
Faculté de Pharmacie APPA
Comité Marseille - Provence
27 bd. Jean Moulin
13385 MARSEILLE
tél. : 04 91 83 56 11
fax : 04 91 80 26 12

GRIVAUD L.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 60 00

GUEGAN H.
CENBG Arcane
Université Bât. 1
Le Haut Vigneau
33175 GRADIGNAN
tél.: 05 56 75 26 62

GUICHARD J.C.
INERIS
PARC TECHNOLOGIQUE
ALATA B.P. 2
60550 VERNEUIL EN
HALATTE
tél.: 03 44 55 66 99
fax : 03 44 55 66 55

GUILLERM V.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 60
fax : 01 45 17 13 61

HAMON
RATP/DZE/EQA/SEC
13 rue Jules Vallès
75011 PARIS
tél : 01 48 04 18 55

HERVY F.
URA CNRS 857
Laboratoire PMMH
10 rue Vauquelin
75231 PARIS CEDEX 05
tél : 02 40 79 45 53

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

JOUVENOT G.
RENAULT
1 allée Cornuel
91510 LARDY
tél.: 01 69 27 75 13
fax :01 69 27 84 28

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

KLEITZ A.
6 quai Watier
78400 CHATOU
tél.: 01 30 87 75 46
fax : 01 30 87 75 47

KRAMER H.
SCHAFER TECHNIQUE
1 rue du Ruisseau Blanc
91620 NOZAY
tél.: 01 64 49 63 50
fax : 01 69 01 12 05

LABORDE J.C.
CEA/IPSN/DPEI/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 60 00

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
fax : 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

LECLERC D.
LSGC/CNRS
1 rue Grandville B.P. 541
54001 NANCY Cedex
tél.: 03 83 17 52 27
fax : 03 83 32 29 75

LE DUR D.
DESS Aérosol
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

LE TURDU M.
ECOMESURE
B.P. N°13
91640 BRIIS SOUS FORGES
tél : 01 64 90 55 55
fax : 01 64 90 55 66

LOYER H.
MSIS
1 route de la Noue
91196 GIF SUR YVETTE
tél : 01 69 18 42 38
fax : 01 69 18 43 15

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

MASSIAS G.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 60
fax : 01 45 17 13 61

MAZOUÉ S.
RATP LAC 67
54 Quai de la Rapéc
75599 PARIS
tél : 01 44 68 24 43
fax : 01 44 68 45 26

MESS L
LESP INSA de Rouen
UMR CNRS 6614 B.P.08
76130 MONT St. AIGNAN
tél.: 02 35 52 83 95

MESZAROS E.
Université de Veszprem
H - 8201 VESZPREM
POB 158 EGYETEM u 10
Hongrie
tél.: 36 88 42 20 22
fax : 36 88 42 60 16

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

NESSI J.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 60
fax : 01 45 17 13 61

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

PASSERO L.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 60
fax : 01 45 17 13 61

PENICOT P.
LSGC/CNRS
1 rue Grandville B.P. 541
54001 NANCY Cedex
tél.: 03 83 17 51 90
fax : 03 83 32 29 75

PICARD H.
RATP LAC 67
54 Quai de la Rapée
75599 PARIS
tél : 01 44 68 32 07

PIGEONNEAU F.
LPMMH
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
tél. : 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

RAMBAUD C.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 60
fax : 01 45 17 13 61

RAMZEYER P.
CULTRONICS FRANCE
29 avenue G. Pompidou
95580 MARGENCY
tél : 01 34 27 20 38
fax : 01 39 59 81 88

REAL J.
DPRE/SERE/LRE
CE Cadarache
13108 Saint Paul lez Durance
tél.: 04 42 25 75 43
fax : 04 42 25 64 44

RENOUX A.
L. P. A. T. C.
Université 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

ROYAU F.
CNRS Laboratoire de
Météorologie Dynamique
ECOLE POLYTECHNIQUE
91120 PALAISEAU
tél.: 01 69 33 48 00

SAGET P.
ECOLE CENTR. DES ARTS ET
MANUFACTURES
36 ave de la Grande Armée
75017 PARIS
tél. : 01 43 80 31 38
fax : 0140 54 98 18

SALDO V.
CE de Cadarache
13108 SAINT PAUL lez
DURANCE Cedex

SENECHAL H.
INSERM
28 rue du Dr. Roux
75724 PARIS Cedex 15
tél : 01 45 68 82 44
fax : 01 40 61 33 83

SERRANO V.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 60
fax : 01 45 17 13 61

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

SPITERI C.
FILTRAUTO/LABINAL
5 ave Newton
78053 ST. QUENTIN EN
YVELINES
tél.: 01 30 85 34 54
fax : 01 30 85 36 36

VENDEL J.
CEA Saclay Bât. 383
DPEA/SERAC/LPMC
91191 GIF sur Yvette
tél. 01 69 37 77
fax 01 69 08 36 80

TARLAY V.
St. MAURICE AUBERT
8 rue Jean Leblond
95130 FRANCONVILLE
tél : 01 30 65 36 55
fax : 01 39 79 14 93

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

TEXTE J.C.
LABORATOIRE NAT.
D'ESSAIS
1 rue G. Boissier
75724 PARIS CEDEX 15
tél : 01 40 43 37 00

VILLANOVA
RATP/DZE/EQA/SEC
13 rue Jules Vallès
75011 PARIS
tél : 01 48 04 18 55
fax : 01 48 04 16 26

THOMAS D.
LSGC/CNRS
1 rue Grandville B.P. 541
54001 NANCY Cedex
tél.: 03 83 17 51 97
fax : 03 83 32 29 75

WITSCHGER O.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
Cedex
tél : 01 69 08 60 00

TIRET C.
CENTRE D'ETUDE DU
BOUCHET Scc PHD
B.P. N° 3
91710 VERT LE PETIT
tél : 01 69 90 83 45

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

THIELEKE R.
AIRFOBEP
Route de la Vierge
13500 MARTIGUES
tél : 04 42 13 01 20
fax : 04 42 13 01 29

TOMASSO V.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 60
fax : 01 45 17 13 61