



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 14^e CONGRES FRANÇAIS

sur les AEROSOLS CFA 98

Paris, 8 - 9 décembre 1998

14^e CONGRES FRANÇAIS SUR LES AEROSOLS

CFA 98

8 - 9 décembre 1998

PARIS

----- SOMMAIRE -----

	Page :
Introduction par le Pr. A. RENOUX, Président de l'ASFERA.	7
Le 5 ^{ème} CONGRES INTERNATIONAL SUR LES AEROSOLS, Edinburgh. F. ROGER (<i>Bourse ASFERA 1998</i>), INRS Nancy.	9
<u>Conférence plénière</u> par le Pr. J.M. AÏACHE. Faculté de Pharmacie de CLERMONT FERRAND. Les préparations pour inhalation. Problèmes techniques et réglementaires.	13
LES AEROSOLS DANS L'ENVIRONNEMENT	
Mesure dans l'air ambiant du plomb, du nickel, du calcium, de l'arsenic et du mercure. I. MILLUY - ROLIN. <i>LCPP Paris</i> .	27
Modification d'une ligne de prélèvement standard d'un capteur de poussières atmosphériques. P. THOUVENIN ⁽¹⁾ , M. ATTOUI ⁽¹⁾ , B. MESBAH ⁽²⁾ , R. THIELEKE ⁽²⁾ (1) <i>LPATC Paris XII</i> ; (2) <i>AIRFOBEP Martigues</i> .	37
Une méthode pour caractériser la chimie élémentaire et la granulométrie de la matière particulaire urbaine. A. ROBACHE, F. MATHE, J.C. GALLO, R. GUILLERMO. <i>Ecole des Mines de DOUAI</i> .	43
Caractéristiques des émissions de fumées du parc de véhicules diesel en circulation à Paris. Relation avec les niveaux de particules en suspension dans l'air ambiant. R. ALARY. <i>LCPP Paris</i> .	49
Étude des variations temporelles de la distribution en taille du Po-218et du Pb-14 ultrafin, de la fraction libre et du facteur d'équilibre des dérivés à vie courte du Radon -222 dans une habitation. C. HUET ⁽¹⁾ , G. TYMEN ⁽¹⁾ , D. BOULAUD ⁽²⁾ (1) <i>LRAAH Université de Brest</i> , (2) <i>LPMA/IPSN/DPEA/SERAC Saclay</i> .	55
Composition chimique des particules d'aérosol marin en zone côtière pendant la campagne FETCH. K. SELLEGRI, J. GOURDEAU, S. DESPIAU. <i>LEEPI Université de Toulon</i> .	61
BIOAEROSOLS, FILTRATION, EPURATION	
Mise au point de méthodes d'échantillonnage et d'analyse des bioaérosols. J.F. FABRIES ⁽¹⁾ , P. GORNER ⁽¹⁾ , G. GREFF-MIRGUET ⁽¹⁾ , D. AMBROISE ⁽²⁾ , I. SIBILLE ⁽²⁾ , P. HARTEMANN ⁽²⁾ . (1) <i>INRS Nancy</i> , (2) <i>Faculté de Médecine Nancy</i> .	69
Survie d'un aérosol de <i>Pseudomonas fluorescens</i> et <i>Enterococcus faecalis</i> sur des surfaces inertes. E. ROBINE ⁽¹⁾⁽³⁾ , M. ATTOUI ⁽³⁾ , D. DERANGERE ⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾ , R. MOREAU ⁽¹⁾⁽³⁾ , (1) <i>Microbiologie Appliquée Univ. Paris XII</i> , (2) <i>CSTB Marne la Vallée</i> , (3) <i>LPATC Univ. Paris XII</i> .	79
Détermination de l'efficacité fractionnelle de séparation d'un dépoussiéreur pour poussières de bois par traçage fluorescent. D. BEMER ⁽¹⁾ , R. REGNIER ⁽¹⁾ , S. CALLE ⁽²⁾ . (1) <i>INRS Vandoeuvre</i> , (2) <i>LSGC-CNRS-ENSIC Nancy</i> .	85
Essais <i>in situ</i> de filtration dans l'environnement du Métropolitain. S. MAZOUÉ ⁽¹⁾⁽²⁾ , D. GABAY ⁽¹⁾ , A. RENOUX ⁽²⁾ , M. ATTOUI ⁽²⁾ . (1) <i>RATP LAC A67 Paris</i> , (2) <i>LPATC Univ. Paris XII</i> .	91

Influence de la vitesse de filtration sur le colmatage de filtres THE plissés vis-à-vis de différents types d'aérosols. 97
 A. BRIAND⁽²⁾, F. HUREL⁽¹⁾, J.C. LABORDE⁽²⁾, V. MOCHO⁽²⁾. (1) COGEMA Montigny le Bretonneux, (2) IPSN/DPEA/SERAC Saclay.

Influence de la dimension des aérosols sur l'efficacité d'une barrière de confinement dynamique. 105
 N. DUPOUX, J.C. LABORDE, C. PREVOST. IPSN/DPEA/SERAC Saclay.

Un Épurateur centrifuge d'air. 115
 P. SAGET, Paris.

Utilisation d'un système d'aspersion de gouttelettes pour la dispersion d'un nuage toxique. 131
 J. MALET, P. CORIERI, J.-M. BUCHLIN. VON KARMAN INSTITUTE FOR FLUID DYNAMICS ENVIRONMENTAL AND APPLIED FLUID DYNAMICS DEPARTMENT, Bruxelles.

Conférence plénière par Mme C. TIRET, DGA/CEB/CMQ Vert le Petit. 137
 Assurance qualité dans un laboratoire d'études sur les aérosols.

METROLOGIE DES AEROSOLS

Analyse expérimentale de fluctuations de turbidité pour la mesure simultanée de la granulométrie et de la concentration d'un aérosol. 141
 E. GEHIN⁽¹⁾, M. ATTOUI⁽²⁾, G. GREHAN⁽³⁾. (1) LETIEF, Université Paris XII; (2) LPATC Université Paris XII; (3) LESP /CORIA INSA de Rouen.

Mesure des fluctuations d'un jet liquide cylindrique par anémométrie phase Doppler. 145
 G. BOULNOIS, D. BLONDEL, G. GOUESBET, G. GREHAN LESP /CORIA INSA de Rouen.

Nouvelle étude expérimentale sur le dépôt de particules dans une sonde de prélèvement cylindrique à bords minces. 153
 O. WITSCHGER⁽¹⁾, J. MALET⁽¹⁾, D. BOULAUD⁽¹⁾, F. ROGER⁽²⁾, J.F. FABRIES⁽²⁾, P. GÖRNER⁽²⁾. (1) IPSN/LPMA/DPEA/SERAC CE Saclay; (2) INRS Vandoeuvre.

Détermination expérimentale de l'efficacité de captage en air calme d'un échantillonneur à fente annulaire. 161
 F. ROGER⁽¹⁾⁽²⁾, J.F. FABRIES⁽¹⁾, P. GÖRNER⁽¹⁾, R. WROBEL⁽¹⁾, A. RENOUX⁽²⁾. (1) INRS Vandoeuvre. (2) LPATC Université Paris XII.

PHYSIQUE DES AEROSOLS ET APPLICATIONS.

Sur quelques faits remarquables dans l'histoire de la science des aérosols. 169
 K.R. SPURNY, Schmollenberg, Allemagne.

L'aérosol nanométrique et les nanotechnologies, revue : applications à l'électronique. 175
 M.B. ATTOUI. LPATC Université Paris XII.

Observations expérimentales des dépôts d'aérosols hygroscopiques fins sur des circuits électroniques et des dégradations résultantes des performances des circuits contaminés. 183
 A. LITVAK⁽¹⁾⁽²⁾, A.J. GADGIL⁽¹⁾, W.W. FISK⁽¹⁾. (1) Lawrence Berkeley National Laboratory USA; (2) LASH/DGCB/CNRS URA 1652 Vaulx en Velin.

Les dépôts chimiques métalliques par aérosol. 189
 A. FARES KARAM⁽¹⁾, Y. SAIKALI⁽²⁾, G. STREMSDOERFER⁽¹⁾. (1) LIFS Ecole Centrale de Lyon, ECULLY; (2) LCI Université Libanaise, Beyrouth.

Mesures des fluctuations de vitesse turbulente de traceurs d'un écoulement en tuyère. 195
 K. JURSKI, M. MEBENGA, E. GEHIN. L.E.T.I.E.F. IUT Université Paris XII.

La charge électrique des aérosols sous irradiation Gamma. 201
 F. GENSDARMES⁽¹⁾⁽²⁾, D. BOULAUD⁽¹⁾, A. RENOUX⁽²⁾, (1) LPMA /IPSN CEA Saclay, (2) LPATC Université Paris XII.

Interactions chimiques entre les aérosols d'argent métallique et les composés iodés dans l'enceinte de confinement d'un réacteur nucléaire à eau pressurisée en cas d'accident grave. D. SERRA ⁽¹⁾ , O. SAINT-RAYMOND ⁽¹⁾ , T. MONTANELLI ⁽²⁾ , A. ZOULALIAN ⁽²⁾ . (1) LERMAB Université Nancy, (2) IPSN/DRS/SESH/LEATS Cadarache.	205
Caractérisation physico-chimique des aérosols émis par la vaporisation des barres de contrôle d'un REP. R. RABU ⁽¹⁾ , C. PAGANO ⁽¹⁾ , M. TOURASSE ⁽¹⁾ , L. GROS d'AILLON ⁽²⁾ , A. BOUCENNA ⁽²⁾ , D. BOULAUD ⁽³⁾ . (1) CEA/DRN/DEC/SEEC CEA Grenoble; (2) CEA/DRN/DTP/SETEX CEA Grenoble; (3) IPSN/DPEA/SERAC CEA Saclay.	211
Etude théorique de la formation de la bruine par coalescence. F. PIGEONNEAU, F. FEUILLEBOIS. <i>Physique Thermique ESPCI Paris</i> .	217
Simulation numérique de la collecte des aérosols par une série d'obstacles sphériques. N. GAUCHET ⁽²⁾ , D. DUCRET ⁽²⁾ , J. VENDEL ⁽²⁾ , A. RENOUX ⁽¹⁾ . (1) LPATC Université Paris XII; (2) IPSN/DPEA/SERAC CEA Saclay.	223
POSTERS :	
• NOUVELLE LIGNE DE PRELEVEMENT FRACTIONNELLE DE POUSSIÈRES ATMOSPHÉRIQUES POUR LA SPECTROMÉTRIE À FLUORESCENCE DE RAYONS X EN REFLEXION TOTALE. A.C. JOHN ⁽¹⁾ , T.A.J. KUHLBUSCH ⁽¹⁾ , H. FISSAN ⁽¹⁾ , K.G. SCHMIDT ⁽²⁾ , F. SCHMIDT ⁽²⁾ , H.U. PFEFFER ⁽³⁾ , D. GLADTKE ⁽³⁾ . (1) Process and Aerosol Measurement Technology; University of Duisburg, Allemagne; (2) Chemical Engineering, University of Duisburg, (3) Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen, Essen, Allemagne.	229
• PROPRIÉTÉS DES GOUTTELETTES PRODUITES PAR PULVÉRISATION ÉLECTROHYDRODYNAMIQUE D'EAU EN MODE CONE-JET-GLOW. EHOARN P., BORRA J.P. <i>Laboratoire de Physique des gaz et des Plasmas, URA 073, Ecole Supérieure d'Électricité, Gif-sur Yvette Cedex</i> .	235
• INTERCOMPARAISON DES RÉPONSES EN CONCENTRATIONS MASSIQUES DU GRIMM, DU DUST-TRACK ET DU TEOEM DANS LE MÉTROPOLITAIN PARISIEN. B. COUTY ⁽¹⁾ , M.B. ATTOUI ⁽²⁾ , C. PARFAIT ⁽¹⁾ , A. RENOUX ⁽²⁾ . (1) RATP, DES/DEE Paris; (2) LPATC, Université Paris XI.	241
EXPOSANTS :	
• ECOMESURE Etude Contrôle Mesure 3, rue du grand Cèdre 91640 JANVRY.	247
• I T S Intertek Testing Service I. C. S. 91, rue du Général de Gaulle 27109 LE VAUDREUIL.	253
• SCHAEFER TECHNIQUE 1, rue du Ruisseau Blanc 91620 NOZAY.	255
• ARELCO 2, avenue Ernest Renan 94120 FONTENAY SOUS BOIS.	259
• MALVERN Parc Club de l'Université 30, rue Jean Rostand 91893 ORSAY Cedex.	261
EAC'99 European Aerosol Conference 1999, 6-10 septembre, PRAGUE, République Tchèque.	267
Liste des auteurs	269
Liste des participants	271



Le Président

Notre 14ème congrès annuel (CFA 98) s'est donc tenu à l'INA Paris les 8 et 9 décembre 1998. Le double miracle a eu lieu : faible grève de la SNCF, et pas de verglas. De ce fait, nous avons pu réunir plus de 100 participants qui ont écouté près de 40 communications. Merci à tous les conférenciers pléniers, avec une mention particulière à Madame Colette TIRET qui contribue au développement de l'ASFERA, ceci depuis le début, lorsque l'ASFERA s'appelait COFERA.

Grâce au talent de notre Secrétaire Lidia MARTIN, voici réunis les textes des conférences du CFA 98. On trouvera, à la fin de ce recueil, les articles fournis par nos exposants dont la présence, chaque année, nous est très précieuse.

Du 14 au 18 Septembre 1998, à EDINBURGH, s'est tenue l'International Aerosol Conference (IAC). La participation française a été très honorable. Egoïstement, j'ai eu le plaisir de compter dix de mes Elèves, anciens et actuels. On se rappelle que la bourse ASFERA avait été accordée à Mlle Florence ROGER (INRS - LPATC). Sous la présidence du Professeur James VINCENT, elle a fait, «in English», un fort brillant exposé fort apprécié. Elle nous a magnifiquement fait honneur, et je l'en félicite. On trouvera, au début de cet ouvrage, le récit de ses aventures écossaises.

Au cours de cet IAC, j'ai pris mes fonctions de Président de l'European Aerosol Assembly (EAA) pour deux années. Je considère cela comme un très grand honneur, honneur que je dois à tous ceux qui contribuent au dynamisme et au rayonnement de l'ASFERA. Et j'aurai la chance d'avoir à mes côtés le Dr. Denis BOULAUD, qui vient d'être promu Chef du Service SERAC du CEA - IPSN. L'EAA supervise l'European Aerosol Conference (EAC) qui, l'année prochaine, aura lieu à Prague (voir l'annonce à la fin de ce recueil). Venez y nombreux !. A cette occasion, toujours dans les mêmes conditions (droits d'inscription, frais de voyage et de séjour), le bureau de l'ASFERA a décerné sa bourse "PRAGUE EAC 99" à Mlle Christelle HUET, élève du Professeur G. TYMEN à Brest.

A EDINBURGH, Denis BOULAUD et moi même avons participé au bureau directeur de l'IARA, "International Aerosol Research Asssembly". L'IARA supervise l'organisation des

IAC, tous les quatre ans. Nous avons retenu la proposition faite par TAIWAN pour 2002. Avis aux amateurs !.

Je tiens à remercier très chaleureusement notre fidèle soutien, la revue Pollution Atmosphérique qui, comme chaque année, a publié le programme intégral de notre CFA 98. En plus cette revue a publié tous les résumés en français du CFA 97, (Poll. Atm. n° 157 pp. 32-51, mars 1997) et publiera dans un prochain numéro ceux de ce CFA 98. En principe, le Journal of Aerosol Science devrait publier les résumés anglais du CFA 97, mais, cette année, cela traîne un peu !.

Une nouvelle fois, je remercie le bureau de l'ASFERA qui a établi le programme de ce CFA 98. Mes vifs remerciements également à ceux qui, dans l'ombre mais avec quelle efficacité, assurent l'intendance de notre Association : Michel ATTOUI et Lidia MARTIN. Merci également aux Etudiants de mon DESS "SAGA" qui ont su si bien accueillir nos congressistes.

Bien entendu, je me réjouis toujours autant de voir le CFA servir de tremplin aux jeunes Chercheurs français en Science des Aérosols. Malheureusement, il me semble voir arriver à l'horizon de sombres nuages dus aux délires paranoïaques d'un Ministre qui voudrait caporaliser la Recherche et transformer nos Chercheurs en étudiants à vie. Espérons que, pour une fois, les Universitaires sauront réagir et préserver l'indépendance et le sens de l'initiative de leurs futurs Docteurs ...

Tout cela n'empêchera pas la tenue, toujours début décembre, mais 1999, et certainement à l'INA Paris, du CFA 99. Pensons y donc dès maintenant !. Et je rappelle que nos CFA doivent rassembler tous ceux qui, en France, travaillent sur les Aérosols : Physiciens, Chimistes, Biologistes, Médecins, Pharmaciens, Universitaires, Industriels.

J'espère donc vous voir nombreux à PRAGUE en Septembre 1999 et très nombreux à Paris en décembre 1999, montrant ainsi le dynamisme de la Science des Aérosols Française. C'est le voeu que je forme, en souhaitant que, pour vous, cette année 1999 soit la meilleure possible.

André RENOUX

Président de l'European Aerosol Assembly

5^{ème} CONGRES INTERNATIONAL SUR LES AEROSOLS

Je tiens à remercier les membres de l'ASFERA qui ont financé ma participation au 5^{ème} congrès international sur les aérosols, qui s'est tenu à Edimbourg du 13 au 18 septembre 1998. Cette aide m'a permis de présenter une partie des travaux réalisés au sein du laboratoire de M. Fabriès à l'INRS, en vue de ma future thèse de doctorat. L'étude présentée portait sur « le comportement de l'échantillonneur IOM en fonction de la direction et de la vitesse du vent extérieur ».

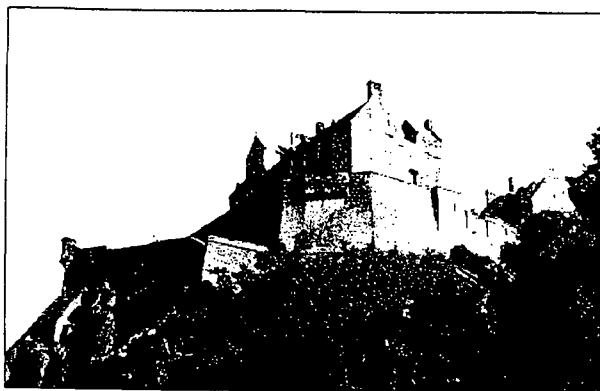


Fig 1 : le château d'Edimbourg.

Le congrès s'est déroulé à l'université d'Heriot-Watt, dans un cadre agréable. La faculté permettait d'accueillir un grand nombre de congressistes et d'organiser cinq sessions en parallèle. Ainsi, de nombreuses communications ont pu être exposées sur divers sujets concernant les aérosols. Les exposés étaient de grande qualité et les sujets très intéressants, en particulier ceux présentés lors des séances plénières. Chaque jour, différents thèmes étaient proposés et traités : le rôle des aérosols dans la physique des nuages, les aérosols biologiques dans l'atmosphère, les effets sur la santé de la pollution particulaire de l'air en milieu urbain, les progrès de la science sur l'échantillonnage d'aérosols et ses applications pratiques, et enfin la caractérisation de l'aérosol atmosphérique.

Ce congrès fut une formidable occasion pour moi de rencontrer de grands scientifiques internationaux. Je pense en particulier aux grands professeurs tels que M. Friedlander, M. Höllander, M. Spurny, M. Gentry, M. Hinds, M. Grinshpun, M. Willeke, M. Pui et M. Liu et à tant d'autres. J'ai mis à profit la semaine pour discuter avec des chercheurs qui travaillent dans le domaine de l'hygiène industrielle, en rapport aux études menées au sein du laboratoire de M. Fabriès. J'ai ainsi fait la connaissance de Mme Kenny et M. Maynard, chercheurs du Health and Safety Laboratory à Sheffield. Tous deux travaillent principalement sur les techniques d'échantillonnage et les différents problèmes rencontrés lors du prélèvement d'aérosols sur les lieux de travail. J'ai aussi rencontré M. Aitken qui s'est proposé de me faire visiter l'Institut of Occupational Medicine. Cet institut, situé à Edimbourg même, poursuit les mêmes objectifs que l'INRS en France. J'ai ainsi pu découvrir les diverses installations réalisées pour tester la performance des appareils de

prélèvement d'aérosols, et connaître les différents projets scientifiques actuels de ce laboratoire. Par la même occasion, nous avons assisté à une démonstration de tests effectués sur des masques anti-poussières dans une cabine. Généralement ces masques sont portés par les travailleurs exposés aux polluants particuliers. L'efficacité de ces masques est étudiée en simulant des conditions réelles de travail. Le masque est donc porté par une personne volontaire qui réalise des exercices physiques dans la cabine tout en étant exposée à un aérosol inoffensif pour son organisme.

Le jour le plus marquant de ce congrès fut évidemment le jour de ma présentation. La session portait sur l'échantillonnage et plus précisément les échantillonneurs personnels. Les présidents de séance étaient M. Mark et M. le professeur Vincent (photographié en ma compagnie figure 2), deux chercheurs spécialisés dans les techniques d'échantillonnage en hygiène du travail. En 1986, ils ont développé à l'Institut of Occupational Medicine un échantillonneur personnel de la fraction inhalable, appelé « échantillonneur IOM » qui est actuellement commercialisé.



Fig 2 : M. le professeur J. H. Vincent, président de séance au 5^{ème} congrès international sur les aérosols et F. Roger.

L'étude présentée, qui a été réalisée au sein du laboratoire de M. Fabriès à l'INRS, portait sur la performance de cet échantillonneur. L'exposé a été l'occasion de montrer de nouveaux résultats concernant cet appareil individuel de prélèvement d'aérosols et de compléter ainsi les données expérimentales existantes. La présentation qui a suivi portait sur l'évaluation de la performance d'échantillonneurs personnels. Quatre appareils de prélèvement d'aérosols, dont l'échantillonneur IOM, ont ainsi été testés au sein du laboratoire des professeurs Willeke et Grinshpun de l'université de Cincinnati. Les résultats expérimentaux concernant la performance de l'échantillonneur IOM sont en très bon accord avec ceux obtenus au laboratoire de M. Fabriès à l'INRS.

La session se termina par une séance de photos avec M. Grinshpun et M. Willeke, réunissant un grand nombre de congressistes français (figure 3). La récompense de tous ces efforts fut un grand repas organisé au musée national d'Edimbourg le soir même. Après avoir goûté au plat national constitué de panse de brebis farcies, des musiciens écossais, habillés en kilt pour la circonstance, ont joué des airs traditionnels à la cornemuse.



Fig 3 : M. Grinshpun et M. Willeke entourés de nombreux participants français au 5^{ème} congrès international des aérosols.

Bien entendu, j'ai profité de quelques moments de détente pour visiter la ville d'Edimbourg, son château (figure 1), les vieux cimetières, le parc Holyrood et le palais. J'ai aussi bénéficié d'une promenade en bateau sur le Firth of Forth jusqu'à l'abbaye d'Inchcolm, fondée en 1192 par Alexandre 1^{er}. L'île sur laquelle a été construite l'abbaye est réputée pour ses défenses côtières lors des deux guerres mondiales. La ballade se termina par la visite de la maison Hopetoun, maison ancestrale construite à la fin du 17^{ème} siècle par le marquis de Linlithgow. Cette maison possède une superbe vue sur le Firth of Forth et notamment sur le célèbre pont Forth.

La semaine a été riche en événements et s'est déroulée dans une ambiance chaleureuse et très animée, laissant un agréable souvenir de ce congrès international et de ce séjour en Écosse.

F. Roger

LES PREPARATIONS POUR INHALATION PROBLEMES TECHNIQUES ET REGLEMENTAIRES

Jean-Marc AIACHE, Laboratoire de Biopharmacie, Faculté de Pharmacie, 28 Place Henri Dunant, B.P. 38, 63001 CLERMONT-FERRAND CEDEX.

Le dernier supplément à la Pharmacopée européenne en vigueur au 1er janvier 1999, donne la définition suivante des préparations pour inhalation [1] :

Ce sont des "préparations liquides ou solides destinées à être administrées dans les poumons sous forme de vapeurs ou d'aérosols, en vue d'une action locale ou systémique. Elles contiennent un ou plusieurs principes actifs qui peuvent être dissous ou dispersés dans un excipient approprié.

Les préparations pour inhalation peuvent, suivant leur type, contenir des gaz propulseurs, des co-solvants, des diluants, des conservateurs antimicrobiens, des solubilisants, des stabilisants, etc. Ces excipients n'exercent aucun effet indésirable sur les fonctions de la muqueuse du tractus respiratoire et de ses cils."

Destinées à une administration pulmonaire, ces formes sont connues depuis la plus haute Antiquité car elles s'appuient sur les observations des médecins les plus illustres, Hippocrate, Galien, Fernel, Bennet, et succède à diverses pratiques telles que fumigations, inhalations et pulvérisations qui ont représenté pendant longtemps les principales méthodes thérapeutiques destinées à traiter les affections pulmonaires.

I - HISTORIQUE DES PREPARATIONS POUR INHALATION [2]

Historiquement, les ancêtres des aérosols semblent être les fumigations, dont on trouve trace dans les documents égyptiens datant des grands pharaons. L'encens brûlait nuit et jour dans les temples car, selon Fleury : "Les prêtres furent, en effet, les premiers à comprendre que l'attraction qu'exercent de nombreuses odeurs sur l'être humain pouvaient être mises à profit au cours de leurs cérémonies, car, parmi tous les stimulants sensoriels qui sont de nature à placer les hommes sous leur charme et qui allaient de pair avec les religions ou le déroulement de leurs cérémonies, ceux qui sont constitués par des odeurs étaient les plus efficaces. L'éclat des précieuses décorations ornementales, la magnificence colorée des habits des officiants et les accords sublimes de la musique sacrée avaient moins d'emprise sur les sens des croyants que l'effet mystique et presque grisant des odeurs engendrées par les fumigations auxquelles personne dans l'assistance ne pouvait se soustraire. Portée par l'air, mais ses volutes ne restant pas invisibles comme ce dernier, la fumée, bleuâtre et odorante s'insinuait partout, se glissait dans les plis des vêtements, pénétrait dans la peau et jusqu'au centre même de la vie mystique. L'homme qui sombrait alors dans un rêve semi-transparent, soumis à cette emprise, croyait avoir eu le privilège d'entrevoir la divinité et son âme restait marquée à jamais par ce séjour dans ce paradis... qui n'était qu'artificiel...".

Mais, ces fumigations de parfum (le "perfumen" en fumée) se transformèrent vite en fumigations hygiéniques, désinfectantes et enfin thérapeutiques, telles que le préconisait Hyppocrate. Les produits utilisés étaient très variés. D'origine animale : corne, fiente, urine, graisse, poils. D'origine végétale : labiées, ombellifères, solanacées. D'origine minérale : ammoniacale, chlore, iode, calomel, cinabre, sublimé corrosif.

Pour préparer ces fumigations, on projetait ces substances sur une plaque ou dans un récipient chauffés et la vapeur obtenue était dirigée sur la partie malade grâce à un entonnoir ou un cornet de papier (Ambroise Paré). S'il s'agissait de traiter le malade entièrement, on le plaçait dans un tonneau et on faisait arriver les vapeurs par une bonde spéciale. Ce dispositif d'Ambroise Paré fut imité d'ailleurs plus tard dans les stations thermales où l'on traitait certaines affections dermatologiques dans des "boîtes à fumigations".

Dans certains cas, nous dit Antylus, Grec du III^e siècle de notre ère, "on fait asseoir le malade et on le met tout entier sous une couverture ; entre ses jambes écartées, on place un vase contenant du feu sur lequel on jette des feuilles d'aristoloche, de clématite, ou du soufre, ou des bourgeons de sapin, ou encore, des fragments de vieilles cordes (celles qui ont servi dans la marine sont les meilleures!). Il faut lui recommander de baisser la tête pour mieux recevoir et aspirer cette fumée".

Cette méthode, d'abord appelée "fumigation pulmonaire", prit plus tard le nom d'inhalation (du latin *inhalare* : souffler en dedans). Tous les grands thérapeutes la conseillaient, à commencer par Galien, qui recommandait à ses malades d'aller inhaler l'air chargé de vapeurs sulfureuses qui se dégageait du cratère Vésuve : ces inhalations pouvaient modifier la viscosité des sécrétions bronchiques.

Le Codex adopta plus tard le carton fumigatoire de Carrié, composé de feuilles pulvérisées de belladone, stramoine, digitale, lobelie enflée, etc. sans oublier l'azotate de potassium. Mais, comme il se consumait incomplètement, on recommandait alors aux malades, à l'exemple des Indiens, de fumer des cigarettes ou des pipes de feuilles séchées de belladone, jusquiame, stramoine, mêlées ou non à du tabac. C'est une formule voisine, d'ailleurs, de celle décrite dans notre dernier formulaire.

Ces inhalations étaient soit réalisées dans des atmosphères confinées où l'air était chargé de substances médicamenteuses comme goudron, thymol, soufre, soit obtenues avec des objets que "tout le monde a sous la main".

Ces appareils, qui ne paraissaient pas toujours répondre aux promesses de leurs inventeurs, eurent pourtant le mérite d'inspirer à Michel Bertrand, célèbre médecin du Mont-Dore, ou à Bernard Niepce, d'Alleverd-les-Bains, l'idée de faire inhaler à leurs malades les eaux minérales de ces villes, inhalations encore en usage de nos jours.

Cependant, on s'interrogeait déjà sur la valeur thérapeutique de ces inhalations. En effet, on s'était vite aperçu que les particules inhalées étaient arrêtées et condensées sur la muqueuse des portions vestibulaires de l'arbre aérien, dans le pharynx et dans la cavité buccale. Seules étaient susceptibles de pénétrer jusqu'aux poumons et capables d'être absorbées les particules très fines provenant des émanations thermales, spontanées, que l'on faisait humer aux malades, pratiques thermales encore en usage aujourd'hui au Mont-Dore.

Ces vapeurs d'eau thermale, très divisées par la nature, conduisirent à l'idée plus nouvelle des pulvérisations, dont Giron fut un des promoteurs acharnés. Le principe des appareils pulvérisateurs est très simple : il consiste à obtenir un jet de liquide qui se brise sur une lentille métallique. La poussière est d'autant plus fine et plus abondante que la pression de l'air est plus considérable. Le malade se place de façon à recevoir la poussière liquide sur les lèvres et de face, et ce, d'autant plus près de l'appareil qu'il devra en inhaler une grande partie et qu'il voudra faire pénétrer dans ses voies respiratoires. Pendant toute la pulvérisation, le malade respire la bouche ouverte sans effort. Le liquide médicamenteux doit être tenu tiède, car sa température s'abaisse au cours de l'opération.

On utilisa cette méthode pour réaliser des interventions aseptiques ou des anesthésies dentaires.

Ces pulvérisations pulmonaires étaient cependant l'objet de nombreuses contestations et une Commission de l'Académie de Médecine vida ce différend scientifique en ayant recours à l'expérimentation : on pulvérisa dans les voies aériennes d'un lapin, une solution de chlorure ferrique. La présence du fer dans les petites bronches fut mise en évidence par la réaction au ferrocyanure de potassium, ce qui était la preuve de la pénétration des pulvérisations.

Ces particules liquides ou solides naturelles en suspension dans l'air, d'un diamètre inférieur à 5 microns, pouvant atteindre les alvéoles pulmonaires, ont été appelées aérosols par Whytlaw, Gray et Patterson en 1932, de *aer* (air) et *sol* (solution).

Malheureusement, ce terme a été étendu, dès 1940, aux récipients contenant des insecticides sous pression utilisés pour chasser les moustiques des îles du Pacifique : ces récipients furent appelés "bombes aérosol" par les soldats américains en raison de leur forme. Elles fonctionnaient selon le principe de la bouteille d'eau de Seltz (1837) et du dispositif proposé par Hebing et Petsch, qui utilisaient du chlorure d'éthyle ou de méthyle dans un récipient métallique ou en verre fermé par un dispositif permettant l'obtention d'un jet fin. Ces dispositifs n'ont cessé de s'améliorer au cours de ces dernières années et leur domaine d'utilisation n'a fait que s'élargir : ménage, cosmétologie, thérapeutique enfin, au niveau nasal, buccal, de la gorge et des bronches.

II - DEFINITION DES PREPARATIONS POUR INHALATION

Revenons maintenant à la définition de la Pharmacopée européenne [1] : "Les préparations qui doivent être converties en aérosols (dispersion de particules solides ou liquides dans un gaz) sont administrées à l'aide d'un des dispositifs suivants :

- nébuliseur,
- inhalateur pressurisé à valve doseuse,
- inhalateur à poudre sèche."

Ces méthodes de préparations impliquent nécessairement un contrôle de la taille des particules, ce qui est prévu dans le paragraphe "Production" de la Pharmacopée européenne. "La taille des particules des aérosols est contrôlée de façon à ce qu'une fraction significative de particules se dépose dans les poumons. Les caractéristiques particulières des préparations pour inhalation sont déterminées par la méthode « *Evaluation aérodynamique des particules fines* » (2.9.18) .

En fait, cette monographie évoque le problème majeur de cette forme pharmaceutique, c'est-à-dire la taille des particules et la dose administrée dont l'évaluation dépend de la vitesse des particules générées qui, elles-mêmes est fonction du dispositif utilisé pour leur obtention. Il est donc évident qu'il faut exposer brièvement les méthodes de préparation avant d'entrer dans le détail de la méthode de détermination de la taille des particules.

Il existe deux grands types de préparations, les préparations liquides et les préparations solides pour inhalation.

Parmi les préparations liquides pour inhalation, on peut distinguer :

- Les préparations destinées à être converties en vapeur obtenues à partir de solutions, dispersions ou préparations solides qui sont généralement ajoutées à de l'eau chaude dont la vapeur ainsi générée est inhalée. C'est une préparation bien connue des personnes âgées et qui représente une façon pratique et rapide de traiter les voies respiratoires supérieures.

- Les préparations liquides dispensées au moyen de nébuliseurs ou au moyen d'inhalateurs pressurisés à valve doseuse.

Nous allons entrer dans le détail de ces deux dernières préparations.

II.1 LES PRÉPARATIONS LIQUIDES DISPENSÉES AU MOYEN DE NÉBULISEURS

Les nébuliseurs opèrent soit en continu, soit avec une valve doseuse qui permet la conversion de solutions, de suspensions ou d'émulsions.

Il existe deux types de nébuliseurs :

II.1.1 Les nébuliseurs à air (ou jet-nébuliseurs)

Ils comprennent :

- * Une source de gaz sous pression.

- * Une chambre de nébulisation formée:

 - . D'un réservoir qui contient la solution à nébuliser.

 - . D'une buse d'arrivée du gaz comprimé (le gicleur) qui se rétrécit à son extrémité pour former un trou étroit appelé "venturi". En aval, il se produit une chute de la pression du gaz et une augmentation de sa vitesse en conformité avec le théorème de Bernouilli. C'est cette dépression, créée par la réduction de section de la buse qui constitue l'effet Venturi [3] (figure 1).

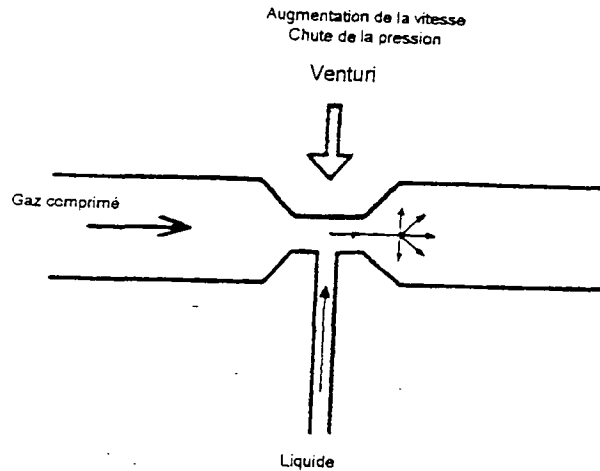


Figure 1 - Effet Venturi [3]

 - . D'une buse d'alimentation (tube capillaire ou système concentrique) dont une extrémité plonge dans le liquide à nébuliser et dont l'autre reçoit le gaz. Celui-ci, par sa dépression, provoque l'aspiration du liquide qui est entraîné sous la forme de fins filaments éclatant en gouttelettes sous l'action des tensions de surface [3] (figures 2 et 3).

 - . De déflecteurs qui piègent les grosses particules. Celles-ci retournent dans le réservoir pour être renébulisées. Seules les petites particules sont libérées du système et peuvent être alors inhalées [3]. Les pièges peuvent être soit des colonnes longues, soit des pointes de Vigreux, soit des billes de verre, soit encore des liquides (principe du narguileh des orientaux).

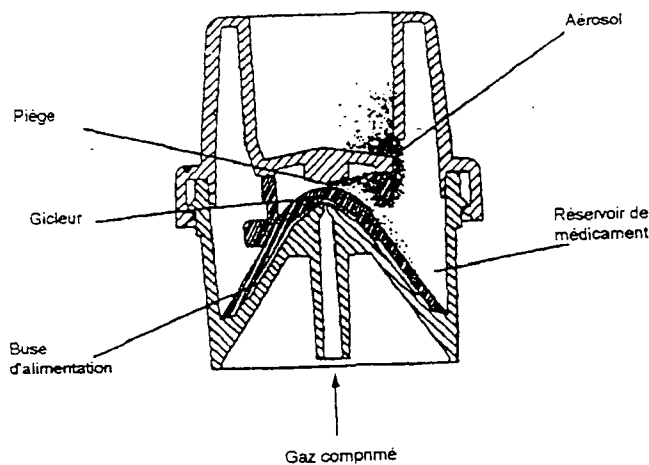


Figure 2 - Système concentrique [3]

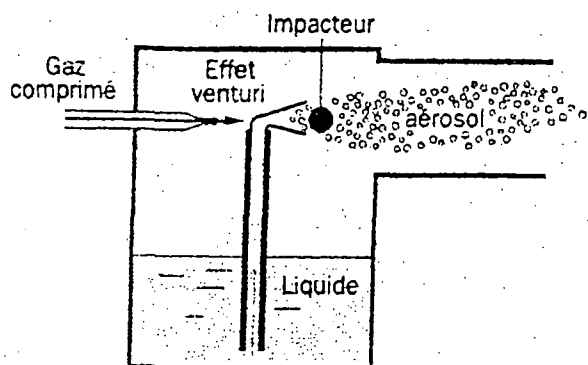


Figure 3 - Tube capillaire [3]

II.1.2 Les nébuliseurs à ultrasons

Ils comprennent :

- * Un appareil électrique composé d'un oscillateur qui convertit la tension du courant en un signal électrique alternatif haute fréquence appliquée à un quartz et, parfois, d'un ventilateur à débit réglable qui crée un flux d'air permettant l'évacuation de l'aérosol vers le patient.

- * Une chambre de nébulisation constituée d'une cuve au fond de laquelle se trouve un transducteur (quartz). La solution médicamenteuse est mise, en général, dans une coupelle de nébulisation déposée sur la cuve préalablement remplie d'eau (figure 4) [3].

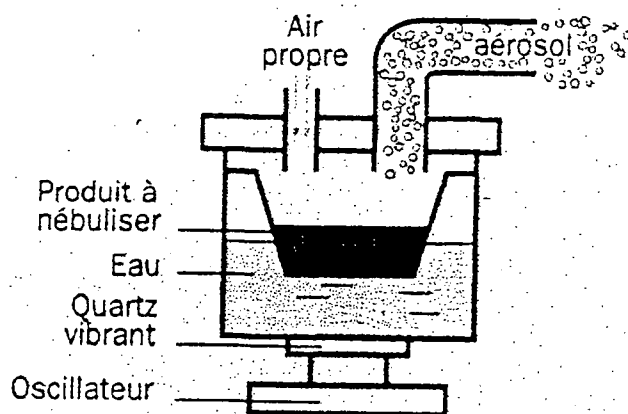


Figure 4 - Nébuliseur ultrasonique

Cette technique de nébulisation fait intervenir deux principes physiques : l'effet piézo-électrique et le phénomène de cavitation. Les ultrasons provenant de la vibration d'un quartz apportent au fluide une énergie mécanique qui se dissipe par vaporisation. En fonction de l'intensité des ultrasons, il se forme, à la surface du liquide, une fontaine qui émet périodiquement un jet de grosses gouttelettes. De la base de ce jet s'échappe un brouillard de petites gouttelettes. A des intensités plus grandes, le jet se transforme en un cylindre de liquide qui émet un brouillard de petites gouttelettes en continu.

Toute l'énergie produite n'est pas utilisée pour la formation de l'aérosol. Une grande partie est convertie en chaleur. Si la solution est en contact avec le quartz, elle peut atteindre une température de 60° C, ce qui peut entraîner la dégradation de certaines molécules.

II.2 PRÉPARATIONS LIQUIDES DISPENSÉES AU MOYEN D'INHALATEURS PRESSURISÉS À VALVE DOSEUSE

Ce "sont des solutions, suspensions ou émulsions conditionnées en récipients spéciaux comportant une valve doseuse et maintenues sous pression avec des gaz ou des mélanges de gaz propulseurs liquéfiés appropriés qui peuvent également servir de solvants. Des co-solvants, des solubilisants et des stabilisants peuvent être ajoutés" [1].

Elles se présentent toujours sous forme d'un récipient (en verre plastifié ou non, en aluminium ou en fer blanc), fermé hermétiquement par une valve permettant au produit contenu de sortir de ce récipient. Sur cette valve, est fixé à l'extérieur, un bouton-poussoir qui permet d'ouvrir ou de fermer la valve et de transformer le produit en particules (figure 5) [4]. Pour pulser le contenu de l'intérieur du récipient vers l'extérieur, on doit utiliser un propulseur qui peut être un gaz comprimé ou un gaz liquéfié.

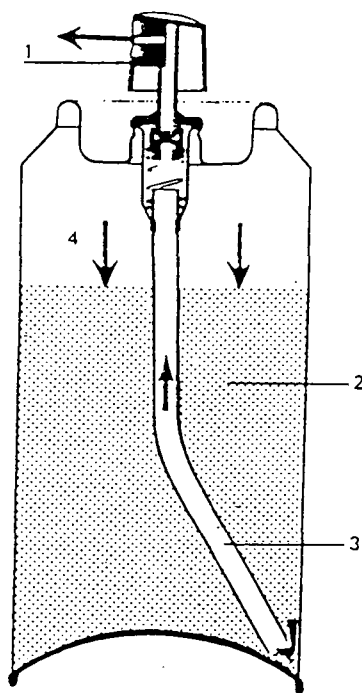


Figure 5 - Coupe d'une forme pharmaceutique pressurisée [4].

1. bouton-poussoir muni d'un glicleur ; 2. phase liquide ; 3. tube plongeur fixé sur la valve ;
4. phase gazeuse. Lorsqu'on appuie sur la valve, la pression du gaz fait monter le liquide dans le tube plongeur et le pousse à l'extérieur du récipient.

Dans le cas de gaz comprimés, les propulseurs sont essentiellement de l'azote et moins fréquemment, le dioxyde de carbone ou le protoxyde d'azote (N_2O). A l'intérieur du récipient, se trouvent deux phases : une phase supérieure ou phase gazeuse constituée par le gaz comprimé sous haute pression et une phase inférieure, constituée par la préparation dans laquelle le propulseur est pratiquement insoluble (ce qui est le cas de l'azote). Lorsqu'on appuie sur le bouton-poussoir, sous la pression du gaz, la préparation est expulsée (en passant par un tube plongeur fixé sur la partie intérieure de la valve) et peut être divisée ou non en particules dont la taille dépend du diamètre de la buse fixée sur le bouton-poussoir et de la pression du gaz comprimé [4].

Les particules obtenues sont assez grossières car elles possèdent généralement un diamètre supérieur à 20 microns.

Compte tenu de ces dimensions, leur usage est assez restreint et se limite, essentiellement par exemple, aux collutoires, gouttes nasales et certains produits à appliquer sur la peau. Mais, en aucun cas, ils ne peuvent être utilisés pour administrer un produit au niveau du poumon profond. En effet, pour qu'une particule élémentaire (en suspension dans l'air ou dans un gaz) puisse atteindre cette zone pulmonaire, il est nécessaire que son diamètre aérodynamique soit inférieur à 8 microns. Dans le cas des préparations pressurisées, cela est possible en plaçant le principe actif en solution ou en suspension dans un propulseur liquéfié sous pression (pression n'excédant pas 6 atmosphères). A l'intérieur du récipient (figure 5) [4], se trouvent toujours deux phases : une phase supérieure gazeuse et une phase inférieure constituée par la préparation dans laquelle est dissous ou dispersé le principe actif. Cette phase est en solution ou dispersion dans le propulseur liquéfié. Lorsque l'on appuie sur le bouton-poussoir, la pression exercée par la phase gazeuse provoque, comme précédemment, la montée du liquide dans le tube plongeur et sa sortie à travers le bouton-poussoir. Quand le propulseur liquéfié arrive au contact de l'atmosphère, il s'évapore immédiatement, augmentant son volume de 200 à 300 fois en fonction de ses proportions dans le liquide. La soudaine explosion du gaz liquéfié provoque la dispersion de la préparation en particules dont la taille dépend essentiellement du rapport propulseur/préparation et de la vitesse d'évaporation de ces propulseurs afin de libérer la particule solide qui était initialement dissoute ou en suspension qui pourra ainsi provoquer une activité thérapeutique au niveau du tissu pulmonaire. Lorsqu'on relâche le bouton-poussoir, la perte de phase liquide provoque une diminution de la pression interne ce qui provoque instantanément une vaporisation d'une fraction de gaz liquéfié qui rétablit ainsi la pression initiale, cette pression se maintenant au même niveau tout au long de l'utilisation du récipient [4].

Les médicaments antiasthmatiques administrés sous cette forme utilisent ce principe et la distribution du principe actif est assurée par une valve doseuse capable de délivrer des doses de 50 à 150 microlitres de préparation où la substance active est le plus souvent en suspension (la taille initiale des particules de la substance active doit être proche de 5 microns). Ils sont d'ailleurs utilisés "tête en bas" car la valve est dépourvue de tube plongeur (figure 6) [4].

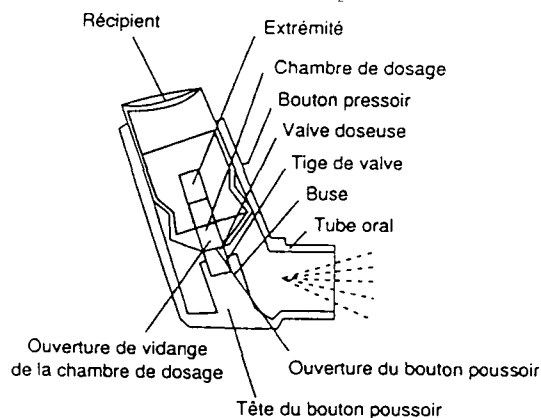


Figure 6 - Principe de l'inhalateur doseur pressurisé [4]

Ces médicaments sont préparés en plusieurs étapes : la première consiste en l'obtention d'une suspension du principe actif dans un solvant. A cette suspension sont ajoutés des excipients qui diminuent les risques d'agglomération des particules dans la suspension, et facilitent leur sortie du dispositif en assurant la lubrification des pièces internes de la valve doseuse. Le solvant utilisé est généralement un CFC, le CFC 11 (trichlorofluorométhane, en particulier dont le point d'ébullition est 23,8 °C). Les tensio-actifs choisis sont de la lécithine ou des dérivés du sorbitane. Cette suspension est ensuite introduite dans un récipient en aluminium et après fermeture par une valve adéquate, est ensuite additionnée d'un second CFC, le plus souvent du CFC 12 (dichlorodifluorométhane, point d'ébullition : -29,8 °C) et/ou du CFC 114 (dichlorotetrafluoroéthane, point d'ébullition : 3,5 °C), qui va favoriser l'explosion du mélange [4].

Compte tenu de l'utilisation simultanée des CFC 11 et 12, la vitesse d'évaporation des gaz va dépendre du rapport des poids CFC 11/CFC 12, de la température ambiante et de la vitesse initiale de la pulvérisation. Tous ces facteurs font que seulement 9 % des particules émises lors d'une pulvérisation peuvent atteindre le poumon profond tout en manifestant cependant une activité pharmacologique incontestable. Pourtant, on a découvert l'effet néfaste de ces propulseurs sur l'environnement. "Le prix Nobel de Chimie en 1995 couronne le trou d'ozone", titrait le Quotidien du Médecin [5]. En fait, ce prix récompense le Néerlandais Paul CRUTZEN, spécialiste des perturbations du cycle naturel de l'ozone mais surtout, l'Américain, Franck Sherwood ROWLAND, inventeur de la théorie des CFC "tueurs d'ozone", théorie dont il a démontré, avec Mario MOLINA, un américain né au Mexique, la réalité expérimentale en laboratoire. Cette décomposition est longue et s'effectue par l'intermédiaire de 30 réactions, réactions identifiées par de nombreux chercheurs et écologistes, une dizaine d'années plus tard, comme étant responsables de la diminution de la couche d'ozone surtout au niveau du Pôle Sud [4].

A la suite d'une réunion des pays industrialisés, a été mis au point, en 1987, le Protocole de Montréal [4] qui a été signé par la majorité d'entre eux. Celui-ci prévoit, non seulement la suppression de l'utilisation de ces hydrocarbures chlorofluorés, mais aussi la cessation de leur production, ce qui impose une reformulation des préparations pressurisées. Certes, les médicaments dits "essentiels", comme l'ont été déclarés certains antiasthmatiques, ne sont pas, en principe, concernés par ce protocole. Mais, si réellement, demain, ces produits n'étaient plus disponibles, il faudra bien continuer à les fabriquer pour le bien des malades.

Les formulateurs ont alors pensé que le travail à effectuer serait une simple substitution d'un propulseur par un autre. En fait, on est très loin de tout cela.

En ce qui concerne la voie pulmonaire, deux propulseurs sont actuellement disponibles : le HFC (hydrofluorocarbure) 134a (tétrafluoroéthane) et le 227 (heptafluoropropane). La toxicité pulmonaire de ces deux nouveaux propulseurs a été étudiée par l'IPACT (International Pharmaceutical Aerosol Consortium and Toxicology) et a été publiée pour le 134a et diffusée auprès des autorités sanitaires concernées. Mais cette toxicité n'a été étudiée que sur l'animal ; pour chaque principe actif associé, des études spécifiques doivent être réalisées dans les conditions d'utilisation prescrites (telle est la recommandation des autorités de l'Union européenne [4]). Pour le 227, les études sont en voie d'achèvement et devraient être connues prochainement.

Un protocole de contrôle du HFC 134a a été récemment publié et contient la liste des impuretés à détecter [4].

En Grande-Bretagne, un Laboratoire pharmaceutique vient de commercialiser le premier médicament antiasthmatique avec comme propulseur le 134a et comme il l'indique dans un certain nombre de publications, ce travail n'a pas été très facile [4]. En effet, les propriétés physico-chimiques du 134a ne sont pas identiques à celles des CFC 11 et 12. Tout d'abord, leur pouvoir solvant est assez différent : en effet, certains principes actifs présentent une solubilité plus importante dans ce gaz que dans les CFC 11 et 12 alors que les tensio-actifs utilisés présentent au contraire une insolubilité qui est assez gênante pour leur utilité. Cela amène donc à revoir le choix des tensio-actifs, choix assez difficile puisque ces produits sont destinés à être administrés par voie pulmonaire.

De même, la densité du propulseur 134a est inférieure à celle du CFC 12, ce qui provoque une décantation du principe actif, pouvant induire une modification de la taille des particules capables d'atteindre le poumon profond.

Pour pallier ces deux inconvénients, il est pratiquement nécessaire d'utiliser aussi un solvant comme dans les anciennes formulations mais le choix n'est pas très facile : le CFC 11 et l'éthanol ont été utilisés.

Il est aussi nécessaire d'étudier les valves car leur géométrie interne, leur taille, peut influencer la dose délivrée au malade en début (nécessité d'une purge) ou en fin d'utilisation.

Il faut noter que le remplissage des récipients n'est pas très aisé en fonction du type de préparation à conditionner (suspension dans un solvant ou suspension directe dans le propulseur 134a). Des systèmes sophistiqués et coûteux de purge, de sertissage de la valve et d'injection de la préparation et du propulseur simultanément ont été ainsi mis au point par les industriels concernés qui doivent de plus protéger leur propre environnement intérieur.

Ces inconvénients, ajoutés au fait que le 134a possède un goût nouveau plus ou moins apprécié par certains malades, font que le problème est loin d'être résolu.

Quant au 227 (point d'ébullition : $-16,5\text{ }^{\circ}\text{C}$), s'il est très utilisé dans les laboratoires de développement, il présente les mêmes problèmes que le 134a et certains essais d'association avec ce dernier propulseur, n'ont apporté aucune amélioration aux problèmes rencontrés.

En dehors de ces deux propulseurs 134a et 227, actuellement, il n'existe pas d'autres options car le butane est, naturellement exclu pour la voie pulmonaire. Si les entreprises n'ont pas fait le choix politique d'un de ces nouveaux propulseurs, 134a ou 227, ce qui n'est pas facile en raison de brevets qui couvrent l'utilisation de ces produits, il leur reste à imaginer d'autres systèmes.

Ainsi par exemple, l'utilisation de pompes permet l'administration du produit dans le nez ou dans la gorge mais non, au niveau des poumons [4].

II.3 INHALATEURS A POUVRE SECHE

On peut aussi administrer certains médicaments antiasthmatiques sous forme de poudre à l'aide d'inhalateurs à poudre sèche (Drug Powder Inhaler (D.P.I.) en anglais). Ces dispositifs commercialisés sous différents noms Spinhaler (Fisons), Rotohaler (Glaxo), Cyclohaler (Pharbita), Diskhaler (Glaxo), Diskus inhaler (Glaxo) [4], Turbuhaler (Astra) (figures 7 et 8). Ils permettent "d'aérosoliser" une dose déterminée de poudre micronisée conditionnée dans une gélule, dans une alvéole ou dans un réservoir, additionnée ou non de diluants inertes. La désagrégation mécanique de la poudre est obtenue par passage à travers un dispositif spécifique activé par l'inspiration du malade.

Cependant, malgré une taille particulière voisine de 5 microns, on estime que la dose unitaire efficace d'un principe actif administré avec ces dispositifs, est habituellement au moins le double de celle administrée par une préparation pharmaceutique pressurisée à base de propulseurs liquéfiés : certains auteurs indiquent que 5 % de la dose administrée atteindrait le poumon profond après administration avec un générateur de poudre [4]. D'autres résultats font apparaître des taux supérieurs [4].

De plus, comme certains principes actifs sont insipides, le malade n'a pas l'impression d'avoir reçu son produit, surtout s'il s'agit de quantités administrées de l'ordre du microgramme [4].

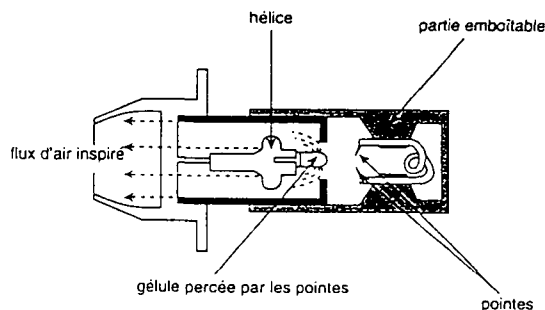


Figure 7 - Exemple d'inhalateur à poudre sèche : Spinhaler [4]

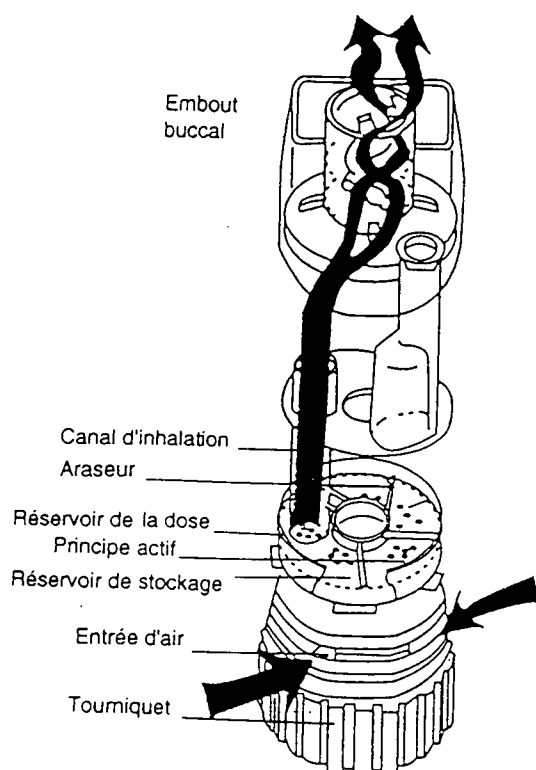


Figure 8 - Exemple d'inhalateur à poudre sèche : Turbuhaler [4]

III - DÉTERMINATION DE LA DOSE DÉLIVRÉE ET DÉTERMINATION DU DIAMÈTRE DES PARTICULES

III. 1 DÉTERMINATION DE LA DOSE DÉLIVRÉE

Cas des préparations liquides dispensées au moyen de nébuliseurs.

Il n'y a, pour l'instant, à la Pharmacopée, aucune monographie sur la détermination de la dose émise. Seul un groupe de travail de l'AFNOR et du CEN a proposé une méthode qui est très voisine de celle proposée pour les préparations liquides dispensées au moyen d'inhalateurs pressurisés à valve doseuse. La quantité de particules émises par le système de nébulisation est capté par un filtre et la quantité de particules fixées est déterminée par dosage du principe actif ainsi nébulisé par l'appareillage. Le modèle proposé repose sur l'utilisation d'une pompe aspirante à débit continu et d'un filtre suffisamment adsorbant pour capter la totalité de la dose émise en fonction d'un temps donné par le dispositif. Cependant, il existe aussi une proposition de détermination de la dose totale émise à partir du nébuliseur, ce qui ne va pas sans créer de problèmes de saturation de ce filtre (figure 9).

Cas des préparations liquides dispensées au moyen d'inhalateurs pressurisés à valve doseuse ou des poudres pour inhalation

D'abord, il faut préciser qu'il existe plusieurs types de doses : la dose délivrée qui est la dose que le patient reçoit de l'inhalateur et la dose prémesurée déterminée par addition de la dose délivrée et de la quantité de préparation déposée dans le dispositif.

Pour ces deux systèmes d'administration, la Pharmacopée européenne propose des dispositifs qui sont représentés dans les figures (figures 10 et 11) [1].

Le principe de ces systèmes est relativement simple. Il s'agit d'un tube qui capte la totalité de la dose qui sort du dispositif en fonction d'une aspiration déterminée par un système de pompe à vide.

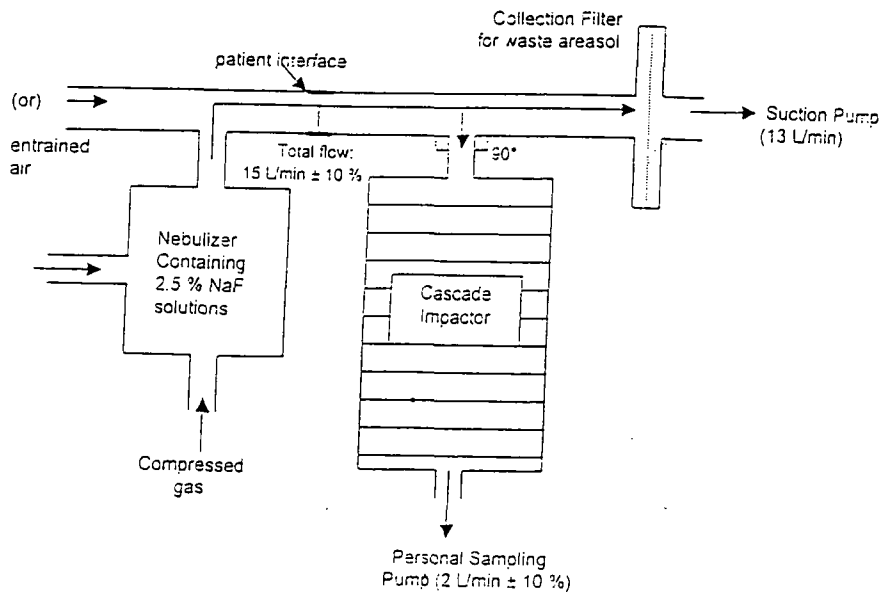


Figure 9 - Représentation schématique du dispositif pour mesurer la taille des particules

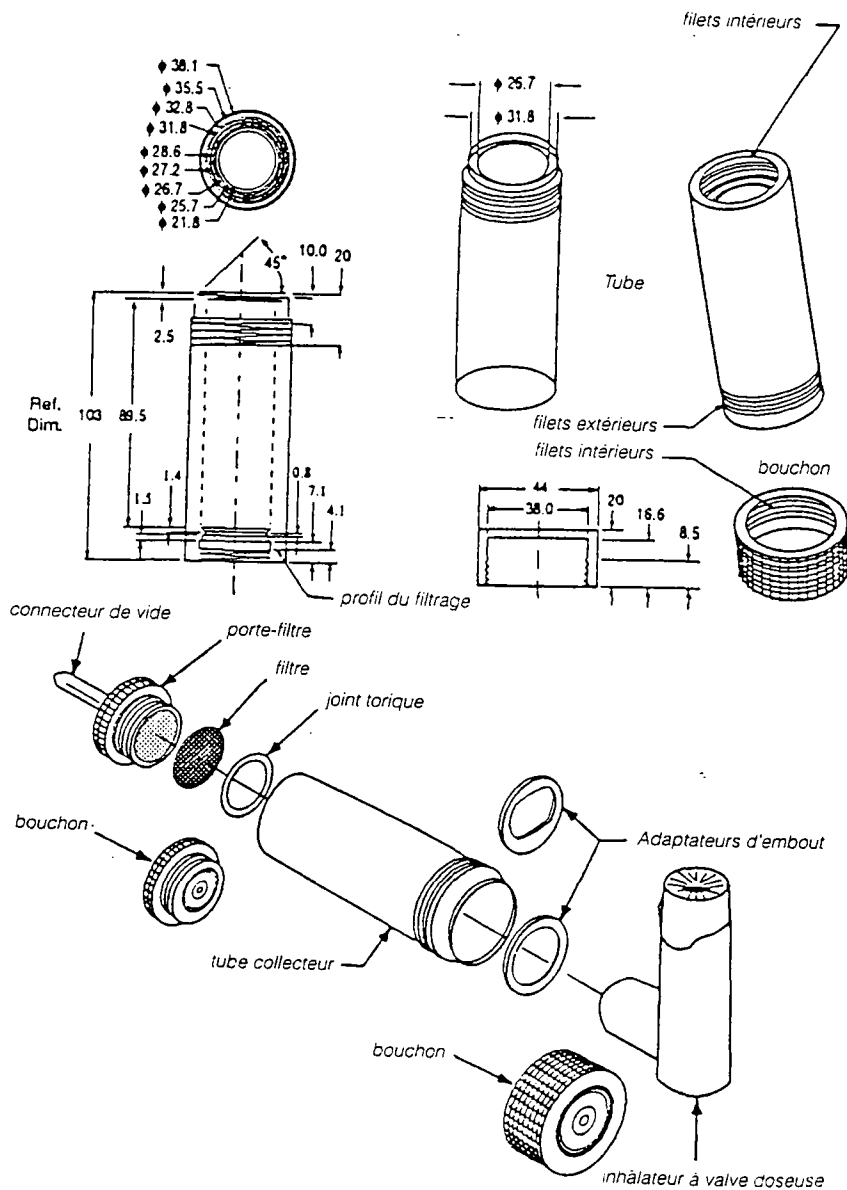


Figure 10 - Appareillage utilisé pour collecter les doses dans les cas des inhalateurs pressurisés à valve doseuse [1]

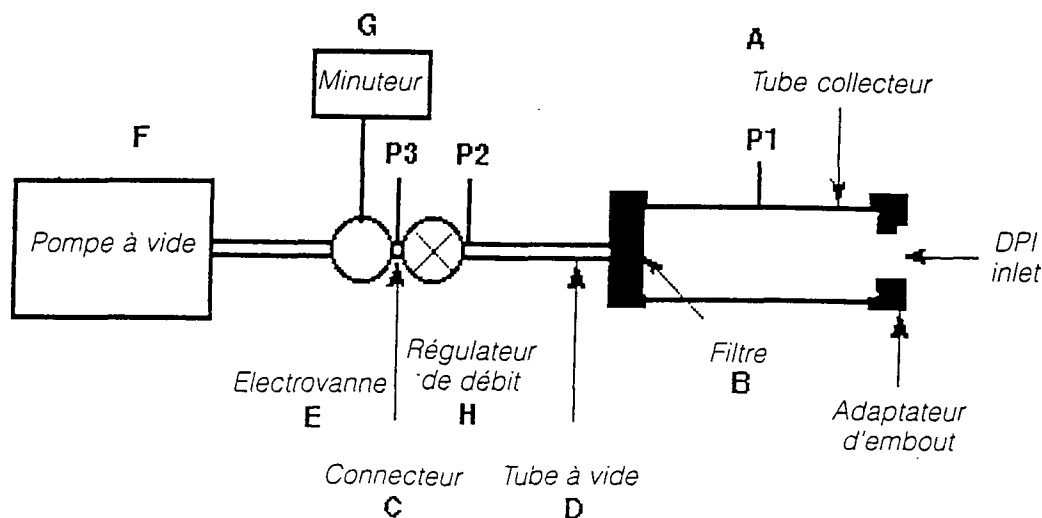


Figure 11 - Appareillage permettant de mesurer l'uniformité de la dose délivrée par les inhalateurs à poudre [1]

Pour les préparations liquides pressurisées, le débit d'aspiration est de 28,3 litres/minute alors que pour les poudres pour inhalation, il faut régler le débit d'aspiration de façon à appliquer à travers l'inhalateur, une pression différentielle avec l'atmosphère de 4 kPa (40,8 cm d'eau), ce qui implique l'utilisation de pompes extrêmement puissantes.

III.2 LA DÉTERMINATION DE LA TAILLE DES PARTICULES

La détermination de la taille des particules d'une dose de principe actif administré sous la forme de préparation pour inhalation est assez complexe. En effet, il est important, comme la monographie le prévoit, de vérifier la taille de ces particules pour qu'elles puissent atteindre le site désiré dans l'arbre pulmonaire, soit les bronches, soit le poumon profond, c'est-à-dire, les alvéoles pulmonaires (figure 12) [6].

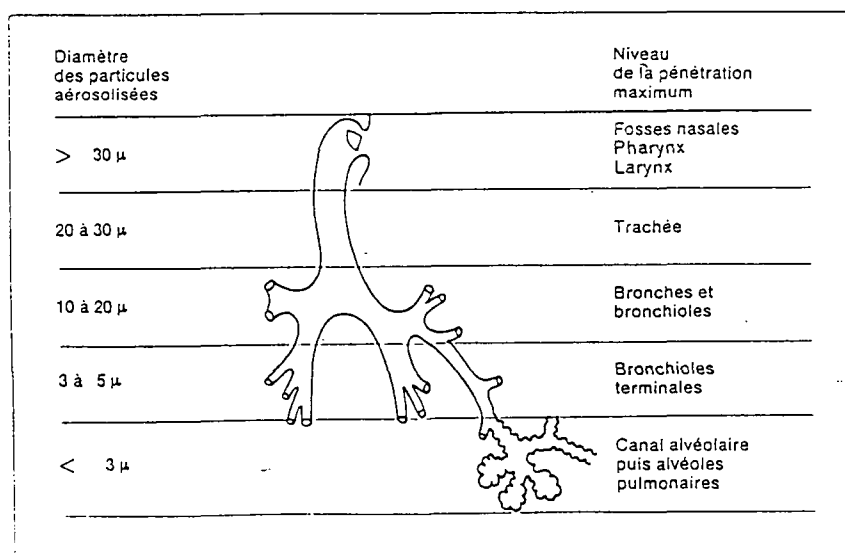


Figure 12 - Niveau de pénétration des particules dans les différents étages de l'arbre respiratoire en fonction de leur taille [6]

Cas des préparations liquides dispensées au moyen d'inhalateurs pressurisés à valve doseuse ou des poudres pour inhalation

En ce qui concerne les inhalateurs pressurisés à valve doseuse, comme dans le cas des poudres pour inhalation, le débit d'aspiration des pompes à travers les "impingers" dépend du système mais par exemple, pour les inhalateurs pressurisés, il est à 28,3 litres/minute (impacteur d'Andersen) ou de 30 litres/minute pour le MSLI. Par contre, pour les poudres, comme précédemment, il faut régler le débit d'aspiration de façon à appliquer à travers l'inhalateur, une pression différentielle avec l'atmosphère de 4 kPa (40,8 cm d'eau).

Cas des préparations liquides dispensées au moyen de nébuliseurs

Par contre, en ce qui concerne les particules provenant des nébuliseurs à air comprimé ou à ultrasons, le même groupe de travail de l'AFNOR propose l'utilisation d'un impacteur à cascade de huit étages mais dont le débit d'aspiration n'est que de un à deux litres par minute, ce qui est actuellement l'objet de nombreuses discussions. Ce dispositif va être soumis à un essai comparatif multinational (figure 13).

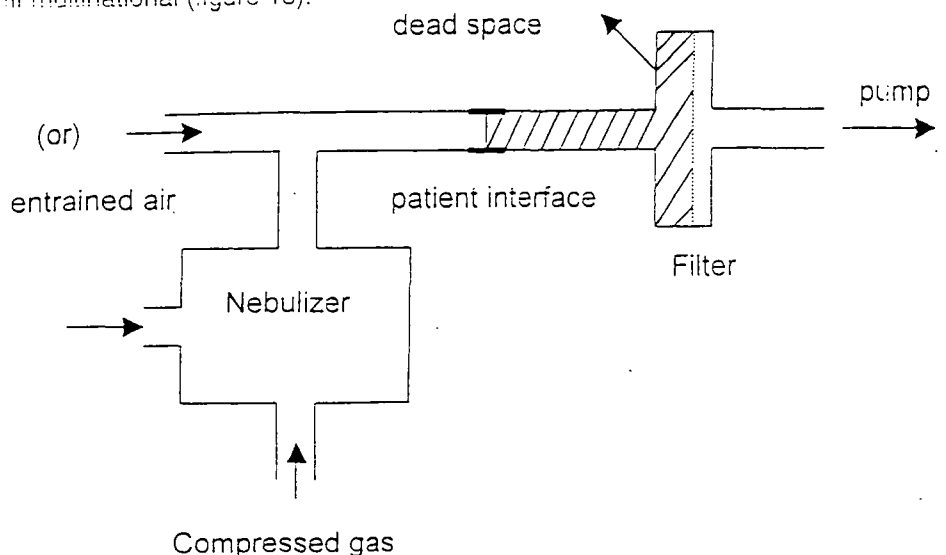


Figure 13 - Représentation schématique de l'équipement permettant de mesurer le pourcentage d'entrée des particules

CONCLUSION

Les préparations pour inhalation couramment appelées "aérosols", constituent une des formes pharmaceutiques les plus intéressantes, pour ne pas dire "uniques", pour le traitement des affections respiratoires. Cependant, les méthodes de préparation et les méthodes de contrôles de ces formes sont extrêmement délicates à réaliser et nécessitent encore de nombreux travaux pour les finaliser.

REFERENCES

- 1/ Pharmacopée européenne, Addendum 1999 (Les préparations pour inhalation).
- 2/ AIACHE J-M., «Aperçu sur les aérosols médicamenteux de leurs origines à nos jours », *Revue d'Histoire de la Pharmacie*, XXVI, n° 241, 1979.
- 3/ Rome-Pouyollon C. "Aérosolthérapie et mucoviscidose". Thèse de docteur en pharmacie, Université de Rennes, 1998
- 4/ AIACHE J-M., "Problèmes posés par la reformulation des inhalations après la suppression des propulseurs "les chlorofluorocarbones" (CFC)", *Annales pharmaceutiques françaises*, 55(2), p.62-68, 1997.
- 5/ De Pange MF., « Le prix Nobel de Chimie couronne le trou d'ozone », *Quotidien du Médecin* du 13 octobre 1995, 5710 : 22.
- 6/ J-M. AIACHE, S. AIACHE et R. RENOUX, « Initiation à la connaissance du médicament », 2ème édition, Paris, 1995.

Mesure dans l'air ambiant du plomb, du nickel, du cadmium, de l'arsenic et du mercure

Isabelle Milluy - Rolin

Laboratoire Central de la Préfecture de Police de Paris

Introduction

La directive cadre n°96/62/CE du 27 septembre 1996 fixe une liste de polluants atmosphériques à prendre en considération dans le cadre de l'évaluation et de la gestion de la qualité de l'air ambiant. Parmi ces polluants sont retenus le plomb, le nickel, le cadmium, l'arsenic et le mercure.

Dans le cadre de la normalisation européenne le plomb, l'arsenic, le nickel et le cadmium font l'objet d'un groupe de travail (GT14) chargé de déterminer une méthode de référence pour leur évaluation. Ces polluants nécessitent la mise en oeuvre de techniques analytiques complexes. Pendant cette phase préliminaire, leur détermination implique un prélèvement en continu sur une période définie de temps et une analyse différée en laboratoire.

Le mercure, présent essentiellement sous forme gazeuse, est prélevé et analysé séparément. La création d'un groupe de travail européen spécifique est subordonnée à l'évolution des travaux du groupe GT8 chargé de l'étude sur la mesure du mercure total à l'émission.

Dans cet optique, le L.C.P.P. en collaboration avec Airparif a mis au point en 1997 une méthode d'analyse permettant de doser le plomb, le nickel, le cadmium et l'arsenic sur un même échantillon et débuté une étude mercure en 1998. Ces études ont pour but d'évaluer au mieux les risques sur la santé à Paris et dans sa région sur la base d'une mesure fiable et objective des niveaux de ces polluants dans l'atmosphère. Les premiers résultats sont présentés ici.

Effets sur la santé

Actuellement les effets sur la santé de ces composés sont reconnus, toutefois seul le plomb est pris en compte dans le nouveau décret n°98-360 du 06/05/98 relatif à la surveillance de la qualité de l'air et de ses effets sur la santé et sur l'environnement, aux objectifs de qualité de l'air, aux seuils d'alerte et aux valeurs limites. Ce décret fixe à $2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ la valeur limite annuelle et l'objectif de qualité à $0.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ en concentration moyenne annuelle. Pour le nickel, le cadmium, l'arsenic qui possèdent des propriétés cancérogènes et pour le mercure classé comme toxique, il n'existe pas à l'heure actuelle de réglementation. L'on peut toutefois s'appuyer sur les recommandations de l'Organisation Mondiale de la Santé qui indique des valeurs guides [tableau 1]. Des valeurs limites sont actuellement à l'étude pour ces polluants au niveau de la commission européenne.

Polluant	Période considérée	Valeur guide 1997
nickel	une vie entière	facteur de risque : 0.38×10^{-3} pour une exposition de $1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$
cadmium	1an	$5\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$
arsenic	une vie entière	facteur de risque : 1.5×10^{-3} pour une exposition de $1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$
mercure *	1 an	$1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

* US EPA propose une valeur guide de $0.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$, basée sur l'étude de Fawer en 1983

Première partie : plomb, nickel, cadmium, arsenic

Le laboratoire Central de la Préfecture de Police mesure le plomb dans l'air ambiant parisien depuis 1971. Il a aussi mesuré le cadmium de 1975 à 1990. Jusqu'en 1996, le plomb était mesuré selon la norme NF X 43-026.

En l'absence de méthode normalisée pour la mise en solution du nickel, du cadmium et de l'arsenic, il est proposé une méthode de minéralisation à l'eau régale. L'emploi de l'acide fluorhydrique est volontairement écarté du fait du risque lié à son utilisation, ainsi que de son agressivité vis à vis des appareils de mesure notamment des parties en verre des spectromètres d'émission plasma.

La mesure des métaux dans l'air ambiant implique deux étapes :

- un échantillonnage sur site avec recueil des particules sur filtre ;
- un transport des filtres suivi d'une analyse en laboratoire.

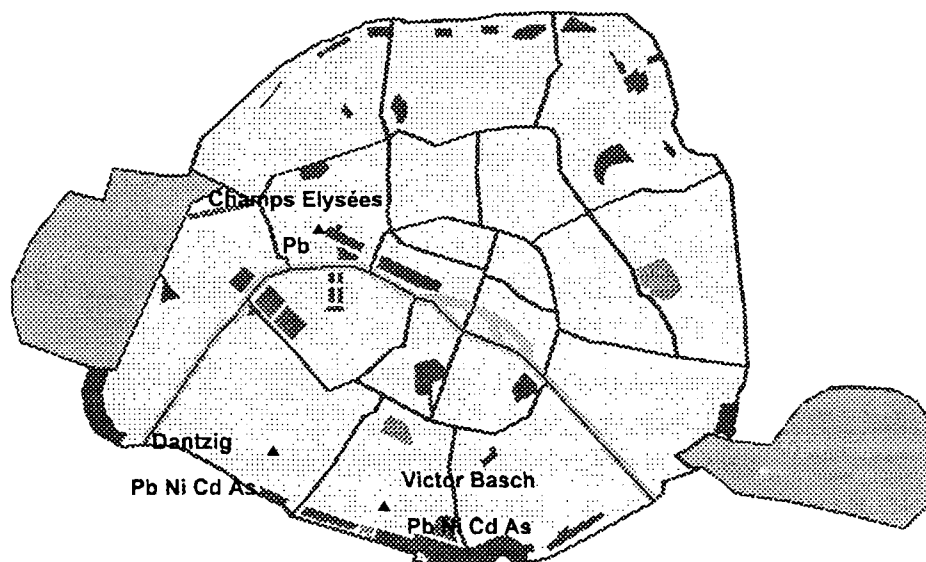
Echantillonnage :

- Réseau actuel de surveillance des métaux lourds en Ile de France :

Le plomb est mesuré sur 2 sites de proximité du trafic automobile (stations 1P75 et 5P75) intégrés au réseau national plomb. Depuis le 1er juillet 1998, il est aussi mesuré sur un site de pollution urbaine de fond (station 15F75). L'arsenic, le cadmium, et le nickel sont mesurés sur une station de fond (15F75). Ils sont aussi mesurés sur une station de proximité du trafic automobile (5P75) depuis le 1er juillet 1998 [tableau 2].

Nom	Adresse	Distance aux feux	Type de voie	Trafic	Hauteur	Distance à la voie
1P75	Avenue des Champs Elysées - Paris 8e	13m	voie large	intense	2.36m	1.6m
5P75	Place Victor Basch - Paris 14e	3.5m	carrefour	très intense	2.36m	0.4m
15F75	Rue de Dantzig - Paris 15e	> 50m	rue moyenne	moyen	15m	3m

Stations parisiennes de mesure des métaux



Les deux sites de proximité du trafic automobile (1P75 et 5P75) sont équipés de préleveurs PPA60 (débit 1,5 m³/h) munis de têtes de prélèvement PM13 et conformes à la norme AFNOR X 43-021. Le débit d'aspiration est de 36m³/jour. La station 15F75, est équipée d'un préleveur PPA60 doté d'une tête PM10 avec un débit d'aspiration de 24m³/jour. Les particules sont prélevées sur des filtres en nitrate de cellulose [Sartorius référence 11304] de porosité 0.8µm, dont le pouvoir d'arrêt est supérieur à 99% pour toutes les particules de diamètre supérieur à 0.3µm.

- Campagnes de prélèvement au moyen de préleveurs Digital DA80 (Mégatec), R&P - Partisol Plus (Ecomesure), PPA 60 (Environnement S.A.) [tableau 3].

	type	débit	diamètre des filtres	têtes
Digital DA80	HVS	réglable de 6 à 60 m ³ /h - 100 à 1000 l/min	150 mm	TPS, PM 2.5, PM10
Partisol Plus	LVS	réglable de 0.3 à 10.8 m ³ /h - 5 à 18 l/min	47 mm	TPS, PM 10, PM 2.5, Pm 1
PPA 60	LVS	fixe 1 ou 1.5 m ³ /h - 16.5 ou 25 l/min	47 mm	PM13 ou PM10

Quatre campagnes successives ont été réalisées [tableau 4]. Quelques problèmes ont été rencontrés lors de l'échantillonnage HVS. On a pu constater la présence d'insectes et fibres végétales ainsi que des traces d'humidité sur les filtres.

	Site	Période	Préleveur	Filtres
Campagne 1	1P75, 5P75, 6P75 SPB1	01/06/96 AU 31/12/96	PPA60, PM13	nitrate de cellulose, 0.8 µm
Campagne 2	15F75	01/01/97 au 31/12/97	PPA 60, PM10	nitrate de cellulose, 0.8 µm
Campagne 3	15F75	05/11/97 au 22/11/97 (17 jours)	DIGITEL DA80, PM10 PPA 60, PM10 PPA60, PM13	nitrate de cellulose, 3 µm - Sartorius nitrate de cellulose, 0.8 µm nitrate de cellulose, 0.8 µm
	Gennevilliers - 3F92	25/11/97 au 05/12/97 (11 jours)	DIGITEL DA80, PM10	nitrate de cellulose, 3 µm
Campagne 4	Créteil - 1F94	06/12/97 au 11/12/97 (6 jours)	DIGITEL DA80, PM10	nitrate de cellulose, 3 µm
	15F75	29/01/98 au 02/02/98 (5 jours)	Partisol Plus, PM10 PPA 60, PM10	nitrate de cellulose, 0.8 µm nitrate de cellulose, 0.8 µm
	Créteil	06/02/98 au 27/02/98 (10 jours)	Partisol Plus, PM10	nitrate de cellulose, 0.8 µm

sites de fond : 15F75, 1F94, 3F92
sites de proximité : 1P75, 5P75, 6P75, SPB1

Analyse en laboratoire

- Instrumentation :

Le plomb, en fonction des teneurs est mesuré soit en émission à plasma d'argon (ICP JY 38 Plus - Jobin Yvon) à la longueur d'onde 220.353 nm soit par atomisation électrothermique (spectrophotomètre Perkin Elmer - PE 5100ZL à correction Zeeman - équipé d'un passeur d'échantillons AS70). Le nickel et le cadmium sont mesurés avec le même spectromètre d'absorption atomique. L'arsenic est mesuré par absorption atomique après génération d'hydrures au moyen d'un FIAS400 Perkin Elmer et d'un passeur d'échantillon AS90.

- Préparation des échantillons [tableau 5]:

Les échantillons sont préparés au moyen d'un minéralisateur micro-ondes Prolabo A301 avec une étape de minéralisation à reflux et une étape d'évaporation de l'acide sans aller à sec. La durée totale de la préparation est de 19 minutes par échantillon. Le minéralisat est recueilli en fiole jaugée de 25 ml. Les paramètres de cette méthode de préparation, proche de celle proposée par la norme ISO 9855 (air ambiant - plomb - annexe A), sont vérifiés au moyen d'un matériel de référence SMR NIST 1648 - Urban Particulate (valeurs certifiées : plomb 0.655 % \pm 0.008, nickel 82 µg/g \pm 3, cadmium 75 µg/g \pm 7, arsenic 115 µg/g \pm 10).

Étape	1	2	3
Réactif	HNO3	HCL	
Volume	3	6	
Vitesse	10	10	
Puissance		30	30
Temps		15	4
Evaporation			oui

Résultats et discussion :

- limites de quantification :

La limite de quantification a été réalisée, pour chaque élément, à partir d'une préparation contenant un filtre en nitrate de cellulose. Les limites obtenues pour l'analyse d'un filtre sont respectivement de 250 ng pour le nickel et le plomb, et de 10 et 15 ng pour le cadmium et l'arsenic.

- reproductibilité de la méthode

Le tableau 6 montre les concentrations obtenues en utilisant cette procédure d'analyse pour l'étalon SMR NIST1648, pour des prises d'essai d'environ 50 mg. Le plomb est mesuré directement par I.C.P., et le nickel par SAAE. Le cadmium est dilué 10 fois et l'arsenic 20 fois.

	plomb	nickel	cadmium	arsenic	n
certifié	6550 ± 80	82 ± 3	75 ± 7	115 ± 10	
mesuré	6555 ± 27	80.4 ± 2.5	74.1 ± 2.3	115.1 ± 4.5	25

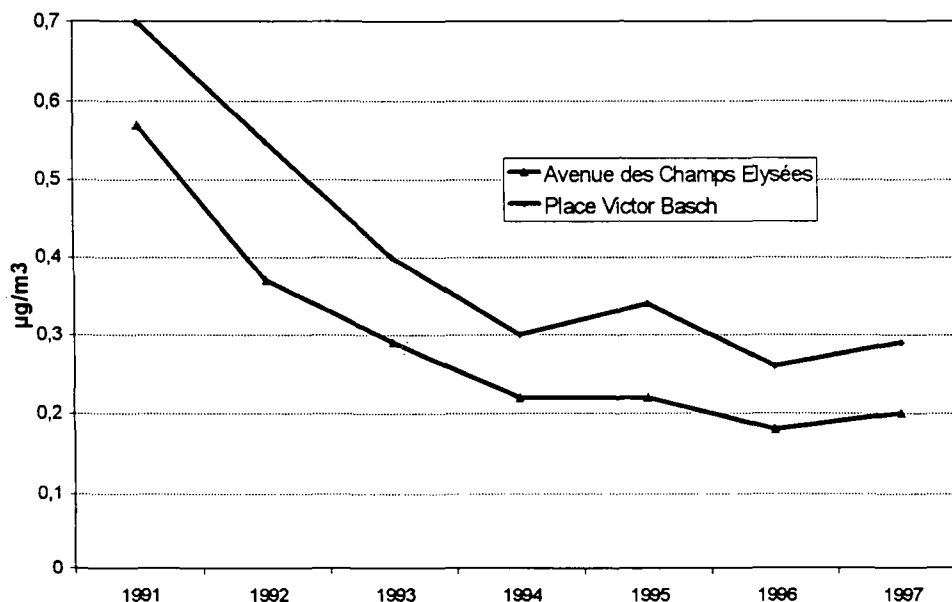
On peut espérer que la matrice de cet étalon est proche des échantillons que l'on doit analyser.

mesures in situ

La mesure des particules plombifères réalisée depuis 1971 sur deux sites de proximité du trafic automobile à Paris (avenue des Champs Elysées - 8ème, place Victor Basch - 14ème) permet les observations suivantes :

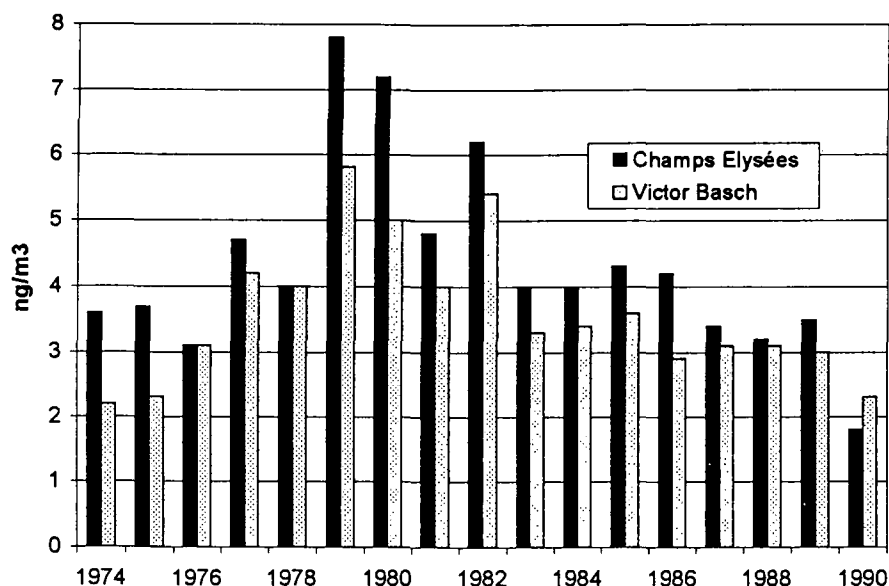
- l'utilisation importante du plomb tétraéthyle pour ses propriétés antidétonantes dans les carburants, a entraîné le rejet de quantité importantes de dérivés du plomb dans l'atmosphère avec un pic à 7.8 µg/m³ observé en 1978 ;
- depuis 1989, avec l'augmentation de l'utilisation de l'essence sans plomb, de la désélisation du parc automobile et de la diminution de la teneur en plomb dans les carburants, on observe une diminution des émissions de plomb à Paris. cette baisse des niveaux peut être évaluée à plus de 50 % ;
- depuis 1994, l'évolution des teneurs en particules plombifères a tendance à se stabiliser. Les niveaux paraissent tendre vers une valeur minimum caractéristique d'une pollution urbaine de fond [graphique 1].

Graphique 1 : Evolution des moyennes annuelles en particules plombifères (Norme N F X 43-021)



La mesure des particules de cadmium a été réalisée de 1974 à 1990 sur les mêmes prélèvements manuels. La teneur moyenne pour cette période est de 3.9 ng/m³ avec un maximum de 7.8 ng/m³ en 1979 [graphique 2].

Graphique 2 : Evolution des moyennes annuelles en cadmium de 1974 à 1990



La première campagne de mesure réalisée à Paris, de juin à décembre 1996, sur des sites de proximité automobile et de fond a donné des teneurs moyennes en particules de cadmium inférieures à 1 ng/m³, et d'environ 15 ng/m³ pour le nickel.

La seconde campagne, réalisée pendant un an sur un site de fond, a donné des niveaux en cadmium et arsenic inférieurs à 1 ng/m³, et variant de 5 à 8 ng/m³ pour le nickel.

Pour ces deux campagnes, la concentration en nickel a été surestimée du fait que la limite de quantification avait été atteinte pour plus de 70% des mesures réalisées avec les systèmes LVS.

Par contre, au cours de la troisième campagne réalisée pendant un mois sur site de fond avec un préleveur HVS (novembre 1997) des niveaux moyens « vrais » de 0.62 ng/m³ pour le cadmium, 0.66 ng/m³ pour l'arsenic et 2.37 ng/m³ pour le nickel ont pu être mesurés.

Seconde partie : Mercure

Introduction

L'échantillonnage et le dosage du mercure dans l'air ambiant sont complexes et prennent en compte de nombreux paramètres aussi importants les uns que les autres. Le mercure est présent à 95% sous forme vapeur. La forme particulaire représente les quelques pourcents restants [8]. La forme mercurielle métallique Hg^0 est la plus fréquente. Elle est présente partout, de la zone rurale à la zone urbaine, avec des pics rencontrés, par exemple, près des usines d'incinération. Les dérivés organiques, Diméthylmercure et Chlorométhylmercure, rencontrés dans des endroits bien spécifiques tels des stations d'épuration sont des formes mercurielles dont la toxicité est en fait assez mal connue. Les concentrations de mercure présentes dans l'air étant très faibles, de l'ordre du nanogramme à la dizaine de ng/m^3 au niveau de l'air urbain en France [9], le système d'échantillonnage doit permettre une préconcentration importante du mercure afin d'atteindre les limites de détection des analyseurs.

Echantillonnage :

Une forte préconcentration du mercure peut être réalisée par piègeage chimique par absorption (barbotage dans une solution oxydante) [méthode EPA 29], amalgamation [10] sur un métal noble (or ou argent), adsorption [11] sur support solide (carbosieve B, tenax, chromasorb P, charbon actif), ou par piègeage physique en réalisant une condensation cryogénique [13].

Les avantages et les inconvénients de ces techniques sont présentés dans le tableau 11.

techniques de prélèvement	avantages	inconvénients
absorption (barbotage)	facile à mettre en oeuvre	difficilement transportable, pas de différenciation des formes chimiques, volatilisation, peu sélectif, fortes contaminations extérieures
adsorption sur support solide (amalgamation)	facile à mettre en oeuvre, sélectif, transport et conservation faciles, rendement élevé	pas de différenciation des formes chimiques, perte par désorption thermique en aval, blancs élevés, peu reproductibles
système de 2 pièges en série [12]	piègeage de deux formes chimiques différentes	nécessite l'analyse de deux systèmes pour un seul échantillon
condensation cryogénique	analyse multiélémentaire, différenciation des formes chimiques	emploi d'azote liquide, régulation de température non automatisée, faibles volumes d'air prélevés, limitation par la vapeur d'eau qui se condense

La méthode d'échantillonnage par amalgamation semblant être la plus efficace et la plus adaptée à l'analyse du mercure, en particulier pour son faible coût, nous avons utilisé un sable enrobé d'or de marque Brooks Rands LTB. Le mercure est échantillonné dans des tubes en verre de 20 cm de long et de diamètre 6/8 mm. Ils contiennent un gramme de sable enrobé d'or retenu par des bouchons de laine de verre.

Instrumentation et Analyse en laboratoire

La mesure de très faibles concentrations de mercure nécessite l'emploi de techniques d'analyses sensibles dont les avantages et inconvénients sont résumés dans le tableau 12.

techniques d'analyse	avantages	inconvénients
spectrométrie d'absorption atomique - flamme	investissement raisonnable	prétraitement de l'échantillon
spectrométrie d'absorption atomique - four	investissement raisonnable	prétraitement de l'échantillon
spectrométrie d'absorption atomique - vapeur froide	investissement raisonnable	prétraitement de l'échantillon
chromatographie en phase gazeuse - CPG	méthode séparative	non quantitatif
spectrométrie de fluorescence atomique	méthode très sélective et sensible, couplage CPG possible	éviter la vapeurs d'eau, interférences avec H_2S , iodure, bromure...
spectrométrie d'émission atomique - ICP-AES	très sensible (ppt)	investissement élevé
ICP/spectrométrie de masse - ICP/MS	très sensible (ppt)	investissement très élevé

Le laboratoire étant doté d'un spectromètre d'absorption atomique, cette technique est choisie comme méthode de détection. Le mercure est désorbé thermiquement à 500°C par un premier four tubulaire. Les vapeurs mercurielles sont entraînées par l'argon (100ml/min.) et adsorbées sur un second tube de diamètre moins important (4/6mm) afin d'augmenter l'efficacité de désorption. Ce tube est à son tour porté à 500°C par un deuxième four. Le mercure ainsi libéré est détecté par absorption atomique au

niveau de l'analyseur dont l'option flamme est remplacée par une cellule en quartz, à la longueur d'onde de 253.7 nm. Le schéma 1 présente l'ensemble de la ligne analytique.

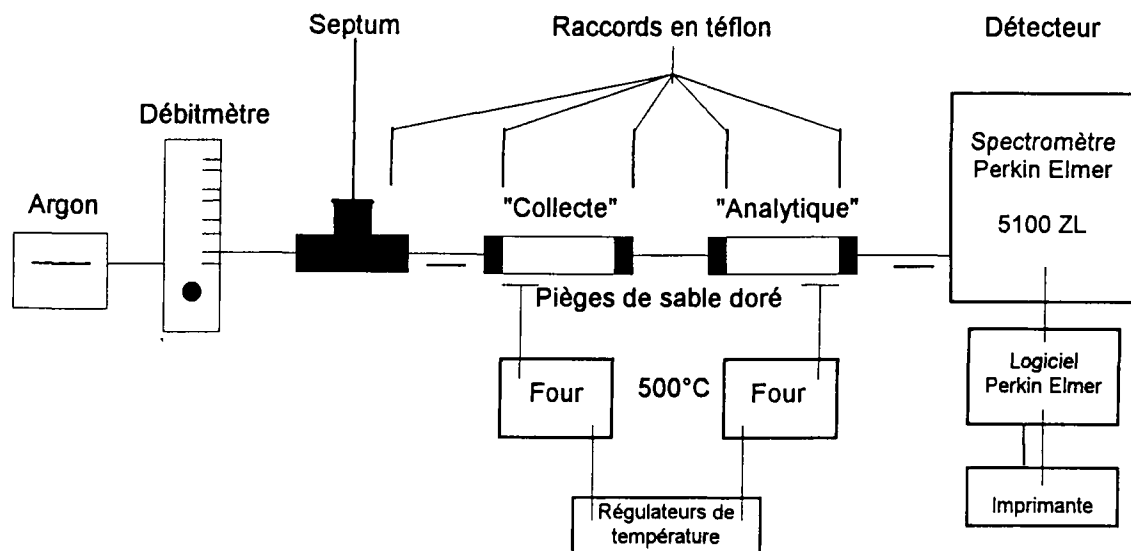


Schéma 1 : ligne analytique complète permettant le dosage du mercure

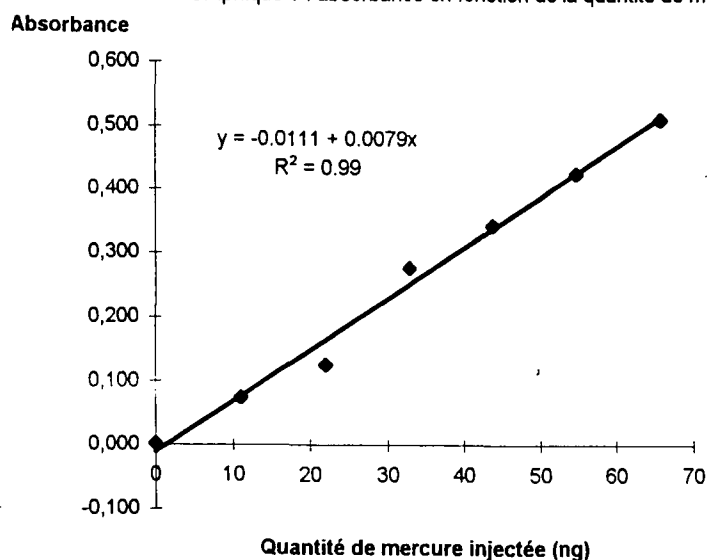
L'étalonnage se fait en injectant un volume connu (μl) de vapeurs d'air saturé en mercure. La quantité de mercure (ng) se calcule en multipliant le volume d'air injecté par la densité de vapeur du mercure à la température lue sur un thermomètre haute résolution.

Résultats et discussion :

Les limites de détection et de quantification sont évaluées à partir d'un étalonnage allant de 0 à 66 ng de mercure soit jusqu'à l'injection de 3000 μl de vapeurs de mercure. Cinq injections sont réalisées pour chaque point. La droite d'étalonnage [graphique1] est tracée à partir des moyennes, l'écart type relatif des mesures varie de 0 à 4.88%. Le niveau de signification de la relation entre la quantité de mercure injectée et l'absorbance est supérieur à 99%. Dix blancs et dix standards sont ensuite mesurés.

Dans les conditions de l'essai, la limite de détection est inférieure à 1ng et la limite de quantification reste inférieure à 10ng, mais présente une assez grande variation avec des écarts types compris entre 10 à 15%.

Graphique 1 : absorbance en fonction de la quantité de mercure injectée



Mise en oeuvre de la méthode sur le terrain

La durée de prélèvement, le débit et le type de pompe à utiliser sont à prendre en compte afin de mettre en oeuvre la méthode sur le terrain. La durée de prélèvement habituellement employée pour l'échantillonnage des métaux lourds est de 24 heures. Les niveaux de concentration en mercure rencontré dans l'environnement pour les sites les moins pollués étant d'environ 2ng/m^3 , un débit compris entre 3.5 et 4l/min sera nécessaire. Pour une surveillance continue de la qualité de l'air, le prélèvement pourra être automatisé. Les analyses seront ensuite réalisées en laboratoire en différé.

Conclusion :

Les résultats obtenus depuis 1996 pour la mesure du plomb, du nickel, du cadmium et de l'arsenic sont dans l'ensemble satisfaisants sur le plan analytique et l'emploi d'un matériau de référence standard permet de contrôler les méthodes utilisées.

Cependant, en dehors de quelques périodes de pollution, les systèmes de prélèvements LVS ne permettent pas d'estimer les niveaux en nickel, cadmium et arsenic. A Paris, en l'absence d'émetteur spécifique important, l'adaptabilité du matériel de prélèvement est à redéfinir.

Les teneurs moyennes en particules de plomb et de cadmium dans l'atmosphère de Paris sont globalement inférieures aux valeurs guides OMS.

L'US EPA proposant une concentration en mercure inférieure à $0.3\ \mu\text{g/m}^3$, la méthode de mesure présentée permettrait largement de vérifier si cette valeur guide est bien respectée dans l'environnement. Toutefois, cette méthode, dont les paramètres restent à améliorer, ne permet pas de mesure en continue.

Bibliographie

- 1 L.C.P.P., *Pollution atmosphérique et nuisances*, rapports annuels 1996 et 1997
- 2 J. Sneddon, *Collection and atomic spectroscopic measurement of metal compounds in the atmosphere : a review*, Talanta, Vol. 30, n°9, 631-648, 1983
- 3 C.C.Y. Chan, R.S. Sadana, *Determination of arsenic and selenium in environmental samples by flow-injection hydride generation spectrometry*, Analytica Chimica Acta, n°270, 231-238, 1992
- 4 C.F. Wang, W.H. Chen, M.H. Yang, P.C. Chiang, *Microwave decomposition for airborne particulate matter for the determination of trace elements by inductively coupled plasma mass spectrometry*, Analyst, Vol. 120, June 1995
- 5 R. Saraswati, T.W. Vetter, R.L. Watters Jr., *Comparison of reflux and microwave oven digestion for the determination of arsenic and selenium in sludge reference material using flow injection hydride generation and atomic absorption*, Analyst, Vol. 120, January 1995
- 6 M.C. Carneiro, R.C. Campos, A.J. Curtius, *Determination of Sb, Ni, and V in slurry from airborne particulate material collected on filter by graphite furnace atomic absorption spectrometry*, Talanta, Vol. 40, n°12, 1815-1822, 1993
- 7 W.H. Schroeder, *Atmospheric mercury measurements at a rural site in southern Ontario, Canada*, Mercury pollution Integration and Synthesis eds Watras, Huckabee, Lewis, 1994
- 8 *Contribution bibliographique à l'étude comportementale du mercure lors de l'incinération des ordures ménagères*, Cran-Laborlux-DCPR-USP, Comité sol-déchets, Ministère de l'environnement, 1989
- 9 D.L. Johnson, R.S. Braman, *Distribution of atmospheric mercury species near ground*, Environmental Science and Technology, vol. 8, n°12, 1003-1009, 1974
- 10 R. Dumarey, R. Dams, J. Hoste, *Comparison of the collection and desorption efficiency of activated charcoal, silver and gold for the determination of vapour phase atmospheric mercury*, Analytical Chemistry, 57, 2638-2643, 1985
- 11 W.H. Schroeder, R. Jackson, *An instrumental analytical technique for vapour-phase mercury species in air*, Chemosphere, vol 13, n°9, 1041-1051, 1984
- 12 N. Bloom, W. Fitzgerald, *Determination of volatile mercury species at the picogram level by low temperature gas chromatography with cold-vapour atomic fluorescence detection*, Analytica Chimica Acta, 208, 151-161, 1988
- 13 C. Pecheyran, *Détermination des formes chimiques des métaux en phase gazeuse dans différents environnements atmosphériques*, Université de Bordeaux I, 1997
- 14 L. Poissant, B. Harvey, A. Casimir, P. Béron, M. Jean, *Continuous measurements of atmospheric mercury vapour in rural areas of southern Quebec, Canada*, 1994
- 15 W.H. Schroeder, *International field intercomparison of atmospheric mercury measurements methods*, 1994

Résumé

En région parisienne, le plomb est mesuré de façon journalière depuis de nombreuses années. La nouvelle directive cadre n°96/62/CE du 27 septembre 1996 fixe une liste des polluants atmosphériques à prendre en considération dans le cadre de l'évaluation et la gestion de la qualité de l'air ambiant. Parmi ces polluants sont retenus le cadmium, le nickel, l'arsenic et le mercure.

Dans ce cadre, sans attendre les exigences du Ministère de l'environnement, Airparif, en collaboration avec le Laboratoire Central de la Préfecture de Police, ont mis en oeuvre la mesure journalière du plomb, du cadmium, du nickel et de l'arsenic. Ces mesures se font sur un même échantillon de poussières prélevées sur un filtre au moyen de préleveurs de type PPA 60 équipés de têtes de prélèvement PM10 et PM13. Elles ont permis de mettre au point les méthodes d'analyses par I.C.P., spectrométrie d'absorption atomique et génération d'hydrures, et d'évaluer l'ordre de grandeur des niveaux de pollution.

Les valeurs mesurées sont proches des limites de mesure des appareils c'est pourquoi l'Adème a proposé l'étude intercomparative des capteurs HVS et LVS afin de définir une méthode d'échantillonnage. Cela va permettre de comparer les niveaux observés à Paris à ceux d'autres villes.

Par ailleurs, le L.C.P.P. étudie la mesure du Mercure après préconcentration par amalgamation sur un piège de sable doré suivi d'une détection par spectrométrie d'absorption atomique.

Abstract

Lead is measured every day in Parisian Region since many years. The European Council Directive n°96/62/EC determine a list of pollutants for assessment and management of quality of ambient air. Cadmium, nickel, arsenic and mercury are retained among these pollutants.

In this framework, Airparif with the Laboratoire Central de la Préfecture de Police carry out the daily monitoring of lead, cadmium, nickel and arsenic. These measures are made on the same airborne particules sample retained on a filter by means of sampling devices such as PPA 60 used to collect the the PM 10 and PM 13 fraction of suspended particules matter. They enable the developpement analysis methods by optical I.C.P., atomic absorption spectrometry with electro-thermal atomisation for nickel and cadmium and atomic absorption spectrometry with hydrides generation for arsenic, and degree of pollution levels to be evaluated.

The measuring results are close to the detection limits of analysis devices. This is why the Adème proposed to compare HVS (High Volume Sampler) and LVS (Low Volume Sampler) samplers to define a sampling method. The concentration levels encountered in Paris and in other cities can then be compared.

Moreover, the L.C.P.P. investigates the mercury measure after collection on a gold-coated sand and its determination is realized by atomic absorption spectrometry.

MODIFICATION D'UNE LIGNE DE PRELEVEMENT STANDARD D'UN CAPTEUR DE POUSSIÈRES
Evaluation de l'influence sur les résultats de mesure

USE OF NON-RECTILINEAR SAMPLING LINES IN AIR QUALITY MONITORING
Effects on Particle Mater mass concentration measurement

P. THOUVENIN¹, M. B. ATTOUI¹, B. A. MESBAH² et R. THIELEKE²

¹ Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations. Université Paris XII, 94010 Créteil.

² AIRFOBEP, association agréée de surveillance de la qualité de l'air. Route de la vierge, 13500 Martigues.

Résumé

Pour la mesure des particules en suspension dans l'atmosphère, les constructeurs de capteurs préconisent l'utilisation d'une ligne de prélèvement standard (ligne rectiligne, longueur inférieure à 6 mètres). Dans la pratique, cette configuration de la ligne de prélèvement pose des problèmes d'encombrement et d'accessibilité.

AIRFOBEP, membre agréé du réseau national ATMO pour la surveillance de la qualité de l'air dans l'ouest des Bouches-du-Rhône, fait ce constat lors de l'installation de ses capteurs de poussières dans les locaux qui lui sont mis à disposition. Face à cette difficulté, AIRFOBEP mène une action d'étude, pour évaluer l'influence, sur les résultats de mesure, d'une éventuelle adaptation géométrique de la ligne de prélèvement standard.

Pour ce fait, on cherche à quantifier le biais apporté par diverses configurations de la ligne de prélèvement. On compare un nombre important de prélèvements effectués, alternativement, à l'aide de la ligne standard et de la ligne modifiée, dans l'atmosphère à travers une tête PM-10. Le biais est évalué par le taux de perte relatif entre les deux lignes.

Une ligne de prélèvement modifiée optimale est ainsi choisie. Elle présente un taux de perte acceptable (~7%). Par la suite les éléments de la ligne choisie sont testés avec un aérosol calibré de 1 µm de diamètre de particules. On confirme le rôle majeur des grosses particules dans le phénomène de pertes dans les lignes de prélèvement. L'utilisation des têtes de prélèvement PM-2.5 et PM-1 devrait permettre la modification de la géométrie des lignes standards avec des taux de pertes négligeables.

Abstract

AIRFOBEP is a member of the French air quality monitoring network ATMO. In its daily mission of pollutants measurement in the west of the Bouches-du-Rhône area, AIRFOBEP has to resolve some field metrology problems. In the present study, problems in Particles Mater (PM) sampling are considered. How can the use of none-rectilinear sampling lines affect the measurement of PM-10 (diameter $\leq 10 \mu\text{m}$) mass concentration ?

Using a laboratory experimental set up, we have evaluated the deviation between measurements results when using a standard (rectilinear) and non-standard (curved) sampling lines.

Several non-standard lines have been tested. An optimal configuration was found, with an acceptable deviation, near to 7% relative lost of mass. Mainly, large particles are responsible in lost of mass in non-rectilinear sampling lines. That was shown in experimental tests using monodispersed aerosol with a mean diameter close to 1 µm. Thus, one should expect that sampling fine particles (PM-2.5 and PM-1) through a curved line can be done with a negligible lost of mass.

Le réseau AIRFOBEP

AIRFOBEP, Association Agréée de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA), a été créée en 1972. Elle est membre du réseau national ATMO pour effectuer la surveillance de la qualité de l'air dans l'ouest du département des Bouches-du-Rhône, sur la zone dite "Région de l'Étang de Berre". Cette région est située à l'est du delta du Rhône et à l'ouest de Marseille. Elle est ouverte sur la plaine de la Crau et le parc naturel de Camargue, avec au centre une étendue d'eau saumâtre : l'Étang de Berre.

La région accueille un des plus importants sites industriels de France, avec notamment des industries de raffinage, de pétrochimie et de sidérurgie. La situation géographique et l'activité économique de la région ont favorisé la création d'un réseau de trafic routier, aérien et naval. Par ailleurs, plus de 400000 habitants se répartissent sur la trentaine de communes de la région.

Toutes ces considérations font de la région surveillée par AIRFOBEP une zone urbaine sous l'influence d'une pollution essentiellement industrielle.

Pour optimiser sa mission de surveillance, AIRFOBEP tient compte de la situation des sources polluantes, de la météo de la région et de sa topographie ainsi que de la répartition géographique de la densité de population. Ceci a donné lieu à un réseau de stations de mesure représentatif de toutes les typologies de zone de la région.

Au sein de chaque station, on trouve un ensemble de capteurs météorologiques et de capteurs de pollution. Les résultats des mesures issues des capteurs sont automatiquement transmis à un poste central où sont effectués tous les traitements. Les polluants actuellement mesurés sont : l'ozone (O_3), le dioxyde de soufre (SO_2), les oxydes d'azotes (NO_x), les hydrocarbures (HC) et les particules en suspension (PS). C'est justement ce dernier polluant qui est considéré dans l'étude que nous décrivons ici.

Problème d'accessibilité des stations et lignes de prélèvement

Idéalement, une station de mesure doit permettre, entre autre, une continuité rectiligne entre le capteur et le point d'échantillonnage extérieur correspondant. Ce qui n'est possible que lorsque le local abritant la station offre la possibilité d'un accès vers l'extérieur par le toit. Malheureusement, la majorité des locaux ne se présentent pas sous cette configuration, notamment sur les sites urbains. Dans ces cas, l'accès vers l'extérieur impose, aux lignes de prélèvement, des orientations géométriques non rectilignes. Ceci ne pose pas de problème métrologique pour la mesure des polluants gazeux. Pour les PS, par contre, cette option constitue un écart par rapport aux recommandations des fabricants de capteurs, qui préconisent des lignes, en aval, de longueur limitée à 6 m et impérativement rectilignes.

Que faire devant cette dualité entre le problème de " terrain " que pose l'accessibilité difficile de certains locaux abritant les stations de mesures d'une part, et d'autre part, l'obligation de se conformer aux exigences des constructeurs de capteurs de poussières? AIRFOBEP a engagé une action d'étude afin de pouvoir évaluer le biais que l'on introduit sur la mesure lorsque l'on modifie, aux fins pratiques que nous avons citées, la géométrie d'une ligne de prélèvement de particules en suspension. Cette évaluation est faite grâce aux résultats de tests expérimentaux réalisés en laboratoire.

Moyens expérimentaux et domaine d'investigation

La figure 1 illustre le dispositif expérimental utilisé dans cette étude. L'aérosol test est introduit dans une sphère d'homogénéisation. Il est échantillonné à travers une tête d'échantillonnage PM-10 (diamètre de coupure de 10 μm), passe dans la ligne de prélèvement puis il est analysé par un TEOM. Ce dernier mesure la concentration massique en poussière présente dans la sphère. Un système de vannes, permet d'effectuer alternativement des prélèvements à travers la ligne rectiligne standard et la ligne modifiée.

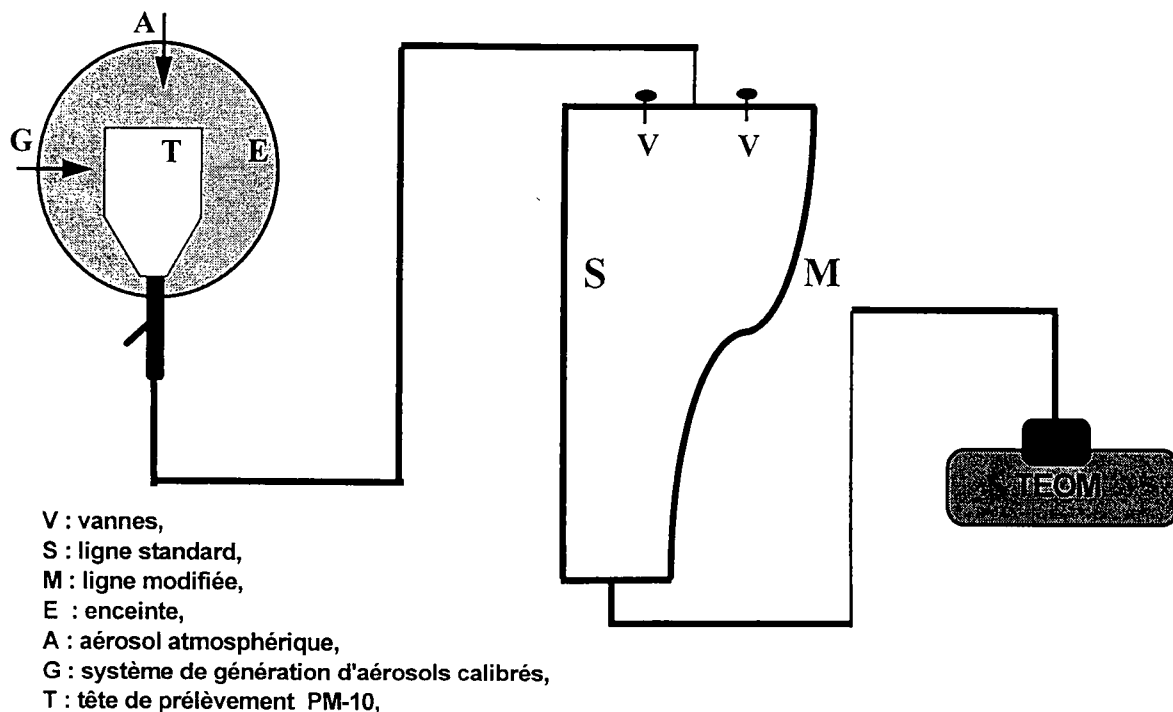


Figure 1 : Dispositif expérimental.

Cette action d'étude est une première investigation, nous avons donc souhaité réaliser des essais proches de la réalité du terrain. Nous avons donc utilisé d'abord comme aérosol test l'aérosol atmosphérique. Cet aérosol, prélevé à Créteil, est variable dans le temps et dans l'espace, son utilisation implique quelques précautions. Nous avons minimisé l'influence des variations de l'aérosol atmosphérique, sur nos essais, en homogénéisant l'échantillon prélevé et en optimisant les temps et les intervalles d'échantillonnage. Les effets de ces variations spatio-temporelles sont ainsi rendus faibles. Cette hypothèse a été vérifiée expérimentalement dans un essai où l'on a comparé deux lignes de prélèvement standards identiques. Cet essai a aussi permis de qualifier l'ensemble du dispositif.

Acquisition et traitement des mesures

La figure 2 montre un exemple d'acquisition de données relatives à un test particulier. Un nombre important d'échantillonnages est effectué pour un meilleur traitement statistique ultérieur.

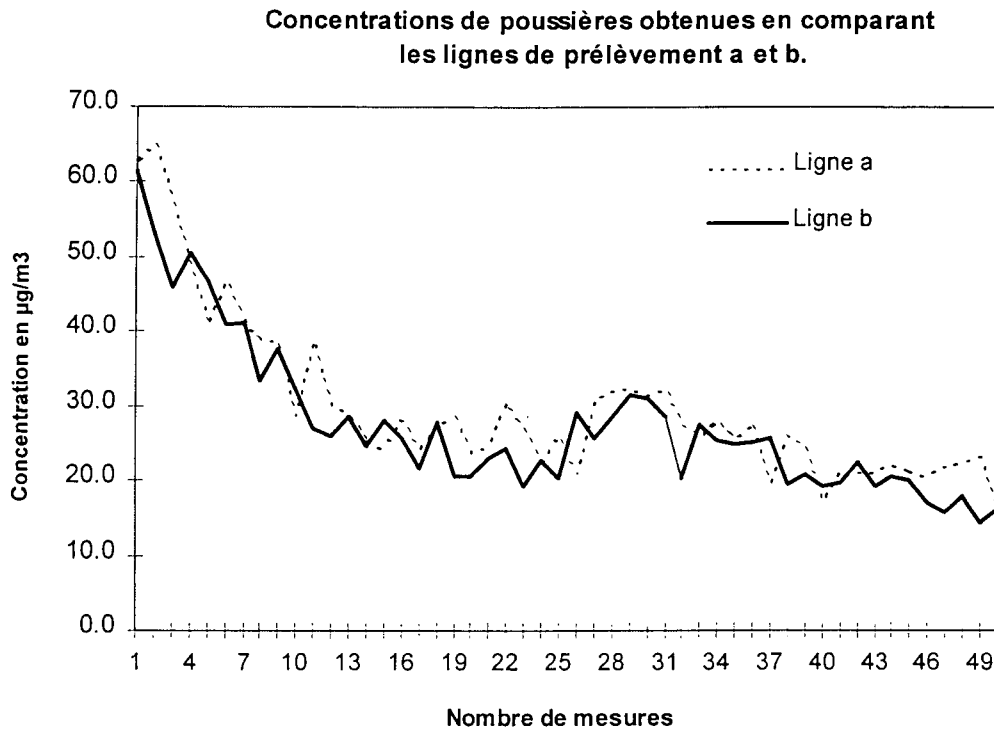


Figure : 2 Exemple d'une acquisition de données

Pour évaluer le biais entre deux lignes, nous définissons une variable biais relatif X_i , qui caractérise l'écart relatif pour un couple de données $C1_i$ et $C2_i$, $C1_i$ étant la référence. $C1_i$ et $C2_i$ sont respectivement les concentrations massiques mesurées par le TEOM pour le $i^{\text{ème}}$ échantillonnage du test, effectué à travers la ligne standard et la ligne modifiée. Par la suite, et après vérification de la normalité de l'ensemble des valeurs de X_i , le biais introduit par la configuration de ligne testée est la moyenne calculée sur cette variable biais relatif.

$$X_i = 1 - \frac{C2_i}{C1_i}$$

Résultats

Les configurations de lignes de prélèvement (a à e sur la figure 3.1) que nous avons testées correspondent à des solutions techniques au problème d'accessibilité dans les locaux dépourvus de toit immédiat. Pour l'ordre de grandeur, la ligne "a" mesure 2 m de longueur.

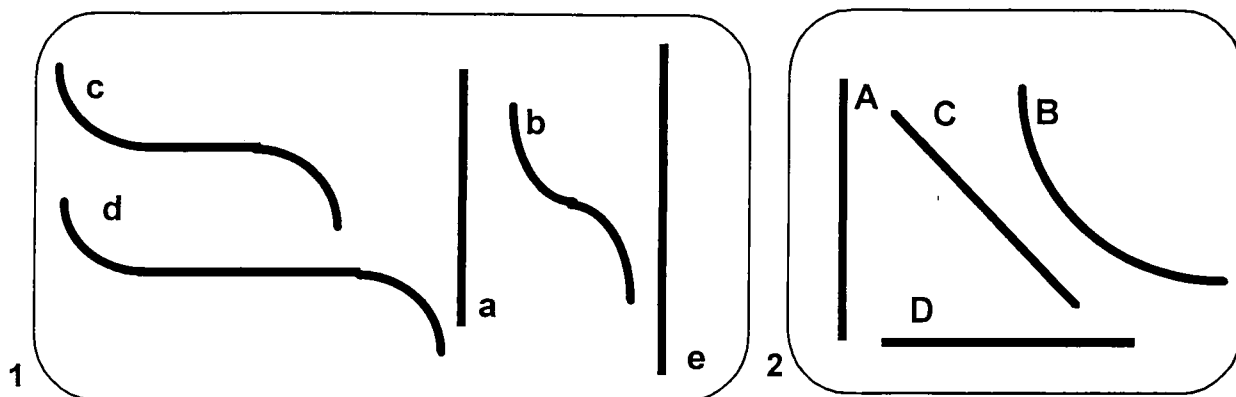


Figure 3 : 1- Configurations de ligne testées. 2- Parties élémentaires testées

Le traitement des résultats est résumé dans le tableaux I. La moyenne exprime le biais pour chaque configuration. L'écart type et l'erreur caractérisent la dispersion; celle-ci est relativement importante à cause des points critiques concernant la variation de l'aérosol atmosphérique que nous avons cité précédemment. Un grand nombre de mesures est effectué pour chaque configuration pour assurer la robustesse du traitement statistique.

Lignes	Moyenne (%)	Ecart type	Nb. mesures	Erreur
a et a	0,0	9,23	41	2,9
a et b	6,6	17,9	150	2,9
a et c	11,6	24,7	150	4,0
a et d	11,9	16,9	150	2,8
e et b	7,6	10,0	140	1,7

Tableau I : Biais des configurations de lignes testées

Sur la première ligne, une moyenne nulle lorsqu'on compare deux lignes identiques implique la validité du dispositif de test et du protocole expérimental choisi. Par ailleurs le reste des résultats montrent que :

- quelque soit la configuration, les biais restent raisonnables, en tout cas pour ce qui concerne l'application "surveillance de la qualité de l'air".
- Ce sont les courbures qui contribuent le plus à ce biais et dans une moindre mesure l'orientation horizontale de la ligne. La contribution de la longueur dans une ligne verticale n'est pas significative dans le domaine d'investigation considéré.

Pour vérifier ces affirmations, le même dispositif de test est utilisé pour évaluer les parties élémentaires des lignes précédentes. L'aérosol test est, cette fois, un aérosol monodispersé ; il s'agit de billes de latex générées par atomisation pneumatique d'une solution diluée. Les tests ont concerné des éléments rectilignes avec différentes orientations et un élément courbe. Les résultats sont traités et présentés comme précédemment. Ces résultats (voir tableau II. Pour l'ordre de grandeur, l'élément A mesure 1.5 m) confirment l'influence de la géométrie et de l'orientation de la ligne sur la valeur du biais ; dans le bon ordre de priorité à savoir la courbure puis l'orientation horizontale.

Lignes	Moyenne (%)	Ecart type	Nb. mesures	Erreur
A et B	2,5	4,2	74	1,0
A et C	0,4	8,8	55	2,4
A et D	1,7	5,2	67	1,3

Tableau II : Biais des parties élémentaires des lignes testées

Ces résultats traduisent la physique des mécanismes de dépôt de particules d'aérosols dans les lignes de prélèvements. Concernant les tests que nous avons réalisés, et en terme de masse de particules, la granulométrie favorise les mécanismes d'impaction et légèrement la sédimentation, aussi bien pour l'aérosol atmosphérique que pour l'aérosol calibré. Nous pourrions aller plus loin dans nos investigations pour mieux comprendre ces mécanismes et peut être y remédier en considérant les autres paramètres qui les gouvernent comme les vitesses ou les régimes d'écoulement mais cela dépasse les objectifs de la présente étude.

Conclusions et perspectives

Le dispositif développé ici nous semble être un bon outil d'évaluation du biais causé par la modification d'une ligne de prélèvement.

Pour une configuration de ligne très pratique, la valeur du biais est acceptable pour un aérosol atmosphérique typique d'une pollution urbaine.

Et vue les mécanismes mis en jeux, la valeur de ce biais le sera encore plus acceptable avec des têtes d'échantillonnage PM-2.5 et PM-1.

Les perspectives futures qui concernent la surveillance de la qualité de l'air sont : l'évaluation des biais pour les différentes typologies de site et, par ailleurs, l'établissement des correspondances, pour des sites particuliers, entre les concentrations massiques PM-10 et PM-2.5.

Une méthode pour caractériser la chimie élémentaire et la granulométrie de la matière particulaire urbaine

A. ROBACHE, F. MATHE, J.C. GALLOO, R. GUILLERMO
Ecole des Mines de Douai
Département Chimie et Environnement
941, rue Charles Bourseul
59508 DOUAI

Introduction

Le diamètre des particules en suspension dans l'atmosphère varie de quelques nanomètres à une centaine de micromètres. Les effets de l'aérosol (nuisances sur la santé, dégradation de la visibilité...) dépendent de la concentration, mais aussi de la nature chimique et de la taille des particules. Celles qui sont inférieures à 10 μm pénètrent dans l'appareil respiratoire humain. Elles constituent la fraction généralement étudiée. Mais les études épidémiologiques récentes semblent montrer que la mesure de la masse de la fraction PM-10 des particules n'est pas suffisante pour expliquer l'impact des aérosols sur la santé. Il serait donc intéressant d'obtenir des informations plus précises sur la granulométrie des particules. Des études ont déjà été effectuées [1, 2], mais elles remontent pour la plupart aux années 70 ou au début des années 80. Depuis des améliorations considérables ont été apportées au matériel de prélèvement (développement de l'impacteur en cascade basse pression, mise en évidence de certains artefacts), ce qui permet d'accéder aux modes submicroniques et d'obtenir des résultats plus fiables.

Nous avons mis au point une méthode qui permet de déterminer la concentration chimique élémentaire en fonction de la taille des particules. Les prélèvements sont effectués à l'aide d'un impacteur basse pression qui collecte les particules dont la taille est comprise entre 30 nm et 10 μm . Les échantillons sont ensuite minéralisés à l'aide d'un minéralisateur micro-onde. L'analyse est effectuée par Spectrométrie d'Emission Atomique Induite par Couplage Plasma (SEA-ICP). La procédure d'analyse a été validée à l'aide de particules de référence « Urban Particulate Matter SRM 1648 » fournies par le NIST (National Institute of Standards and Technology).

Les résultats obtenus pour des prélèvements effectués en atmosphère urbaine ont montré la variabilité de la répartition granulométrique en fonction de l'élément observé et du temps. La répartition granulométrique permet d'émettre des hypothèses sur le processus de formation des particules et de distinguer la contribution de sources différentes pour un même élément.

Prélèvement

Le prélèvement des particules est effectué à l'aide d'un impacteur en cascade basse pression ELPI de marque Dekati travaillant à un débit de 10 L/mn.

Problèmes d'échantillonnage

Les impacteurs en cascade permettent de séparer les particules en tranches granulométriques collectées sur des plateaux.

L'efficacité de collecte, par un plateau, d'une fraction de particules de taille donnée dépend :

- des paramètres dimensionnels de l'impacteur qui détermineront le diamètre de coupure (50 % des particules dont la taille est égale au diamètre de coupure sont collectées). Ceux-ci sont fixés par construction,

- du taux de particules restant sur le plateau après leur impaction. Des phénomènes de rebond et de ré-envol diminuent l'efficacité de collecte. Ils introduisent une sous-estimation de la taille des particules [3]. Ils peuvent être minimisés par l'utilisation de substrats. Nous les appellerons phénomènes de rebond dans la suite de cet article.

Choix du substrat

Pour obtenir la quantité de poussière nécessaire à l'analyse, nous avons recours à des temps de prélèvement de l'ordre d'une semaine. Les particules se déposent alors sur le substrat en échantillons multi-couches, ce qui favorise les phénomènes de rebond.

De nombreux auteurs, pour minimiser ces problèmes, utilisent des substrats à base de graisse ou d'huile. Turner et Hering [4] ont réalisé une étude sur l'efficacité de collecte de différents substrats. Ils ont constaté que les substrats à base de graisse perdent vite leur efficacité lorsqu'ils sont recouverts de plus d'une couche de particules. Les substrats à base d'huile, par contre, ont une efficacité importante et constante, même lorsqu'ils sont recouverts de plusieurs couches de particules.

Nous utilisons le substrat conseillé par Turner et Hering : un filtre Teflon de porosité 10 µm imprégné d'une solution d'acide oléique à 20 % dans du cyclohexane.

Minéralisation

Les particules sont minéralisées sous pression par micro-ondes. Cette technique présente deux avantages par rapport à une minéralisation à pression ambiante sur plaque chauffante : la rapidité et la réduction des risques de contamination et de perte. Le minéralisateur utilisé est le modèle MLS 1200 MEGA de marque Milestone. Les acides utilisés sont des acides Merck de qualité « Pour Analyses » ou « Suprapur ».

Choix des acides

Le mélange acide nitrique, acide perchlorique, acide fluorhydrique (3:7:1 v/v/v) préconisé par Wang et al [5, 6] permet une minéralisation efficace des échantillons. Mais la présence d'acide perchlorique dans les échantillons en Spectrométrie d'Emission Atomique Induite par Couplage Plasma provoque des perturbations dans le plasma se traduisant par une augmentation du bruit de fond.

Nous avons donc opté pour un mélange acide nitrique, acide fluorhydrique. L'intégralité des particules est plus difficile à minéraliser sans acide perchlorique. La présence de résidus noirs après attaque est, probablement, due à la fraction organique des particules. Ces difficultés ont été compensées en augmentant les temps de minéralisation.

Le choix des volumes minima d'acide a été fixé par les limites d'utilisation du minéralisateur micro-onde. Les quantités utilisées lors de la minéralisation sont 2 ml d'acide nitrique et 0,1 ml d'acide fluorhydrique.

Dans le but de protéger les parties de verre et de quartz des outils analytiques, l'acide fluorhydrique est complexé, après minéralisation, avec 5 ml d'une solution aqueuse à 50 g/l d'acide borique. Les échantillons sont ramenés à un volume de 25 ml.

Choix du programme de minéralisation

Les figures 1 et 2 présentent le suivi, en fonction du temps, de la pression et de la température dans un récipient où se déroule une minéralisation. Ce suivi est accompagné des indications sur le programme de puissance utilisé.

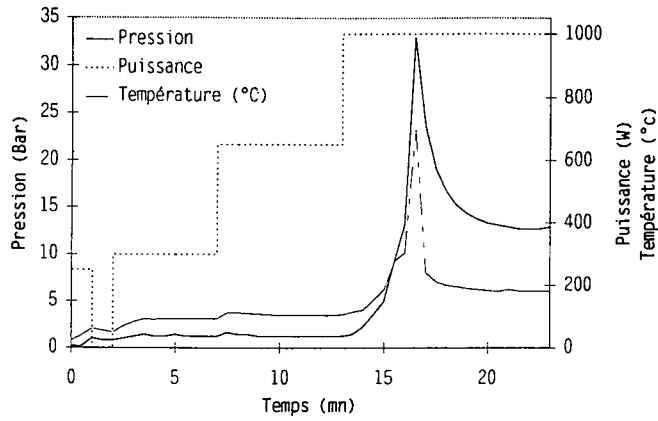


Figure 1 : Suivi de la pression et de la température de minéralisation en fonction du temps (réaction très exothermique)

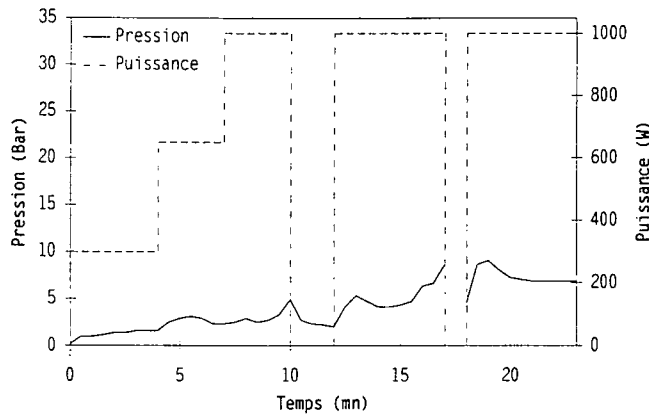


Figure 2 : Suivi de la pression de minéralisation en fonction du temps (réaction contrôlée)

La figure 1 montre une minéralisation lors de laquelle la puissance est maintenue à 1000 W pendant 16 mn. La réaction est très exothermique. La pression et la température montent très rapidement. Les récipients d'attaque sont étanches jusqu'à 30 bars. Cette pression ayant été dépassée, il y a probablement eu perte d'une partie de l'échantillon.

Dans le cas de la figure 2, nous avons modifié le programme de puissance. Des coupures insérées dans l'étape de minéralisation à 1000 W permettent de contrôler la réaction. La pression reste inférieure à 10 bars. A ces pressions, le récipient reste hermétique.

Le temps de minéralisation a été ajusté de façon à minéraliser l'ensemble des éléments présents dans les particules.

La figure 3 présente les taux de recouvrement (le rapport de la concentration mesurée lors de l'analyse sur la concentration théorique) du Chrome et du Zinc dans des particules NIST SRM 1648 en fonction du temps de minéralisation. Chaque point représente la moyenne de la valeur obtenue sur une série de cinq échantillons. Les prises d'essai sont de l'ordre du milligramme. Les programmes de minéralisation sont constitués de plusieurs étapes : une montée progressive en puissance (250 W pendant 2 mn, puis 450 W pendant 4 mn) puis une ou plusieurs étapes à 650 W. L'axe des abscisses représente le temps de minéralisation à une puissance de 650 W. Le chrome a été l'espèce la plus difficile à minéraliser.

Le programme de minéralisation adopté est le suivant :

Etape	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Temps (mn)	2	4	5	3	6	3	6	3	6
Puissance (W)	250	450	650	0	650	0	650	0	650

Tableau 1 : Programme de la minéralisation par micro-ondes

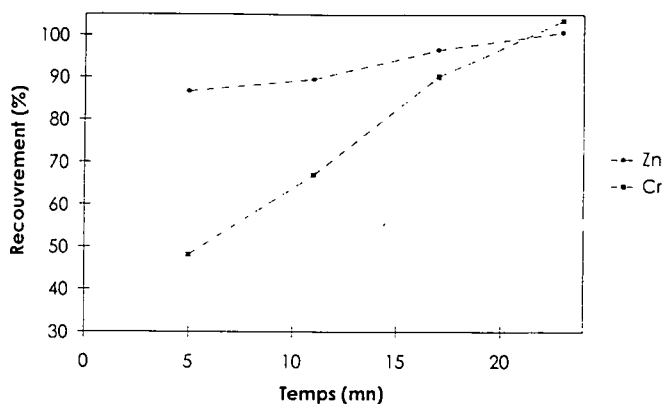


Figure 3 : Suivi du recouvrement du Zinc et du Chrome en fonction du temps de minéralisation

Analyse des particules de référence

Les analyses sont réalisées par un Spectromètre d'Emission Atomique Induite par Couplage Plasma (SEA-ICP) JY 24 de marque Jobin Yvon, couplé à un nébuliseur ultrasonique U-5000 AT+ de marque Cetac.

L'analyse de particules de référence NIST SRM 1648 nous a permis de valider les méthodes de minéralisation et d'analyse. Les résultats présentés dans le tableau 2 sont la moyenne des valeurs obtenues sur une série de cinq échantillons. Les prises d'essai sont de l'ordre de un milligramme.

Elément	S	Zn	Cd	Pb	Fe	Mn	Cr	V	Ti	Cu	Ba
Recouvrement (%)	101	107	113	95	101	100	105	93	99	107	106

Tableau 2 : Taux de recouvrement des particules de référence NIST SRM 1648

Analyse d'échantillons prélevés en atmosphère urbaine

Les répartitions granulométriques présentées ci-dessous sont les résultats de prélèvements effectués sur un site urbain de la ville de Douai à proximité d'une artère importante (35 000 véhicules par jour en moyenne). La durée de chaque échantillonnage a été une semaine. L'analyse a été réalisée, pour chaque fraction granulométrique, selon le protocole présenté ci-dessus.

Les figures 4 et 5 présentent la répartition granulométrique du Baryum à deux périodes différentes.

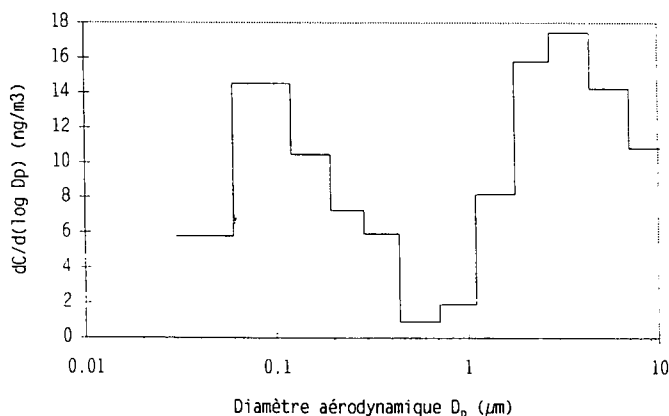


Figure 4 : Répartition granulométrique du Baryum (prélèvement du 1/6 au 8/6/98)

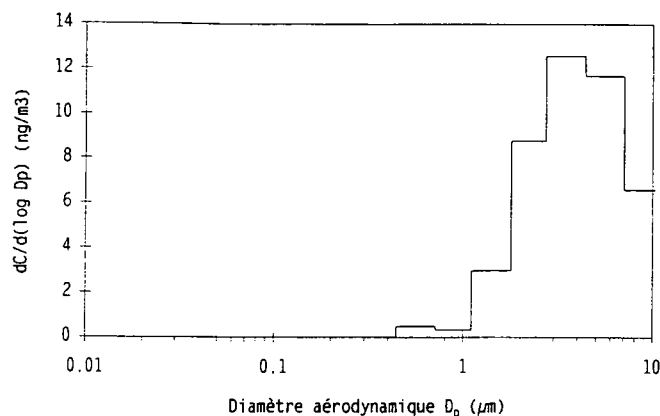


Figure 5 : Répartition granulométrique du Baryum (prélèvement du 9/7 au 16/7/98)

La figure 4 présente une répartition bi-modale. Le premier mode est centré autour de $0,1 \mu\text{m}$, le second autour de $4 \mu\text{m}$. Cette répartition laisse supposer que le Baryum présent dans l'aérosol atmosphérique provient de deux sources différentes. Cette hypothèse est renforcée par la répartition uni-modale de la figure 5. On retrouve le mode situé dans le domaine des grosses particules. Le mode des fines particules a disparu.

Le deuxième prélèvement a été effectué en période de vacances d'été. Nous observons alors une forte décroissance du trafic. Si on attribue le mode fin du Baryum aux émissions automobiles, on explique sa disparition lors du deuxième prélèvement. Monaci et Bargagli [7] ont déjà observé l'enrichissement en Baryum de sols soumis à l'influence du trafic automobile. Cette hypothèse est en accord avec le fait que les processus de combustion produisent des particules fines. Le Baryum contenu dans la fraction des grosses particules a probablement été formé par une action mécanique telle que l'érosion. Il pourrait avoir une origine terrigène.

Les figures 6 et 7 présentent les répartitions granulométriques du Nickel et du Chrome pour un prélèvement effectué du 16/7/98 au 23/7/98.

Nous pouvons observer une similitude très grande entre les répartitions granulométriques de ces deux éléments. Cette similitude laisse à supposer que ces deux éléments sont présents dans les mêmes particules et qu'ils proviennent de la ou des même(s) source(s). Miranda et al [8] ont trouvé, à l'aide d'une analyse par classification hiérarchique, une corrélation forte entre le Chrome et le Nickel pour la fraction des particules de taille inférieure à $2,5 \mu\text{m}$.

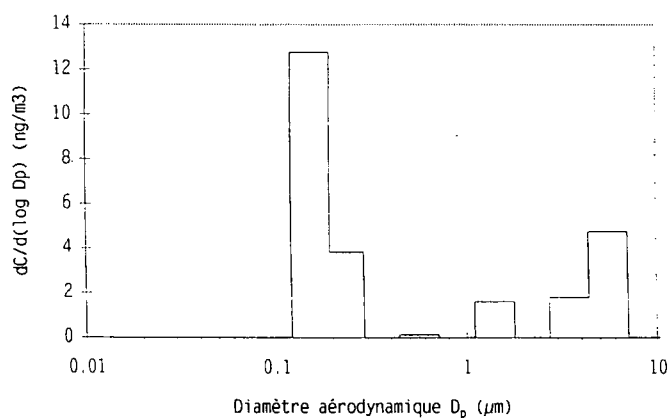


Figure 6 : Répartition granulométrique du Nickel

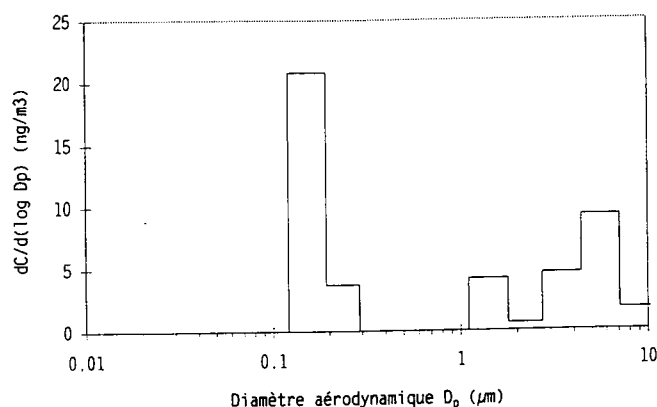


Figure 7 : Répartition granulométrique du Chrome

Conclusion

Nous avons optimisé une méthode de prélèvement et d'analyse permettant de caractériser la composition élémentaire des particules en suspension dans l'air ambiant en fonction de leur taille.

Les résultats obtenus pour des échantillons prélevés en atmosphère urbaine mettent en évidence :

- une variabilité des modes granulométriques fonction de l'élément observé et du temps,
- une similitude de la répartition granulométrique de certains éléments.

Ces informations sont intéressantes dans le cadre d'une recherche visant à caractériser les sources influençant un site :

- la taille des particules observées permet d'émettre une hypothèse sur le processus qui les a produites (combustion, processus mécanique),
- un même élément, suivant le mode granulométrique considéré, peut servir de traceur pour plusieurs sources,
- des similitudes dans leur répartition granulométrique semblent indiquer l'origine commune de certains éléments.

Bibliographie

1. Lyons, J.M., et al., *Size distribution of trace metals in the Los Angeles atmosphere*. Atmospheric Environment, 1993. **27B**(2): p. 237-249.
2. Milford, J.B. and C.I. Davidson, *The sizes of particulate trace elements in the atmosphere - a review*. Air Pollution Control Association, 1985. **35**(12): p. 1249-1260.
3. Dzubay, T.G., L.E. Hines, and R.K. Stevens, *Particle bounce errors in cascade impactors*. Atmospheric Environment, 1976. **10**: p. 229-234.
4. Turner, J.R. and S.V. Hering, *Greased and oiled substrates as bounce-free impaction surfaces*. Journal of Aerosol Science, 1987. **18**(2): p. 215-224.
5. Wang, C.F., et al., *Microwave decomposition for airborne particulate matter for the determination of trace elements by inductively coupled plasma mass spectrometry*. Analyst, 1995. **120**: p. 1681-1686.
6. Wang, C.F., et al., *Assessment of closed vessel digestion methods for elemental determination of airborne particulate matter by ICP-AES*. Analytical Sciences, 1996. **12**(2): p. 201-207.
7. Monaci, F. and R. Bargagli, *Barium and other trace metals as indicators of vehicle emissions*. Water, Air and Soil Pollution, 1997. **100**: p. 89-98.
8. Miranda, J., et al., *A receptor model for atmospheric aerosols from a southwestern site in Mexico City*. Atmospheric Environment, 1996. **30**(20): p. 3471-3479.

Caractérisation des émissions de fumées du parc de véhicules diesel en circulation à Paris. Relation avec les niveaux de particules en suspension dans l'air ambiant.

René ALARY

Laboratoire Central de la Préfecture de Police, 39 bis rue de Dantzig - 75015 Paris
Télécopie 01 55 76 27 05

Abstract

This paper brings to light the condition of the passenger car fleet in Paris regarding air polluting emissions from controls conducted by French national police. During a four months study, a database of randomly chosen gasoline-fueled and diesel-powered passenger cars circulating in Paris has been constituted including vehicles with and without catalytic systems. Hence, the collected sample provides a clear picture of the cruising automobile fleet.

Diesel-powered passenger cars account for 29 % of the total cruising automobile fleet while they cover much more kilometres than gasoline-fueled passenger cars. Data on opacity of exhaust fumes show that 45 % of diesel-fueled passenger cars without catalytic systems violate emission standards (2.5 m-1.). However the good comportment towards ageing of catalysed gasoline-fueled passenger cars is demonstrated. This paper also emphasises on the abnormal increase of smoke emissions with mileage. The recent increase of Black Smoke in Paris is in correlation with the age of diesel cars. The efficiency of the catalytic system to reduce opacity of exhaust fumes has not been demonstrated.

Introduction

Si les caractéristiques d'émissions réglementaires des véhicules neufs sont connues, il existe peu d'informations sur les émissions du parc automobile roulant. L'étude menée par le Laboratoire Central de la Préfecture de Police avec le concours de l'Unité de Contrôles Techniques de la Direction de la Logistique de la Préfecture de Police a permis de déterminer l'état du parc automobile roulant à Paris en regard des émissions polluantes (opacité des fumées pour les véhicules diesel) à partir d'une base de données constituée de 555 véhicules particuliers et utilitaires légers.

1 Mode opératoire

1.1 Méthode de mesure

La méthode de mesure de l'opacité des fumées est réalisée selon la norme NF R 10-025. Il s'agit d'une mesure optique d'absorption de lumière par les fumées. Le coefficient d'absorption est calculé d'après la loi de Beer-Lambert.

$$k = \frac{-1}{L_a} \ln\left(\frac{\tau}{100}\right) \quad k \text{ coefficient d'absorption en m}^{-1}, \quad \tau \text{ transmittance, } L_a \text{ longueur optique}$$

L'opacité est mesurée à moteur "chaud", au cours de plusieurs cycles d'accélération après un premier cycle de nettoyage. **La méthode privilégie les transitoires.**

Certains véhicules diesel (environ 30%) manifestement mal entretenus ont été écartés du contrôle en raison du risque d'endommagement provoqué par les accélérations franches imposées par la norme d'essai.

Il y a lieu de préciser que cette mesure ne peut être comparée aux méthodes gravimétriques de mesures de l'aérosol particulaire et également aux méthodes de comptage par tranche granulométrique.

1.2 Echantillonnage des véhicules

Afin de disposer d'un échantillon représentatif du parc automobile en circulation, les véhicules ont été sélectionnés du 1^{er} décembre 1997 au 31 mars 1998 par tirage aléatoire à partir du dernier chiffre du numéro d'ordre de la plaque d'immatriculation. La marque, le type, le kilométrage, la date de première mise en circulation et la puissance fiscale de chaque véhicule contrôlé ont été relevés ainsi que des renseignements complémentaires concernant son entretien et son utilisation.

Les calculs statistiques ont été effectués à l'aide du logiciel STATGRAPHICS.

1.3 Seuils réglementaires

Les émissions de fumées des véhicules diesel et de monoxyde de carbone pour les véhicules essence sont réglementées au niveau du contrôle technique des véhicules et par des dispositions particulières du Code de la Route.

Tableau 1
Emissions polluantes, analyseurs, seuils réglementaires

Emission de monoxyde de carbone (véhicules à essence)	
Analyseur	SAGEM SOURIAU Optima 4040
seuil contrôle technique (CT) <i>arrêté du 5 juillet 1994</i>	4,5 % vol pour les véhicules non catalysés sortis avant le 1/10/86 3,5 % vol pour les véhicules non catalysés sortis après le 1/10/86 0,5 % vol pour les véhicules catalysés (mesure au ralenti) 0,3 % vol pour les véhicules catalysés (mesure au ralenti accéléré)
seuil Code de la Route (article R69) <i>arrêté du 16/01/75 modifié par arrêté du 5/10/77</i>	4,5 % vol pour tous les véhicules
Opacité des fumées (véhicules diesel)	
Opacimètre	OMITEC OM1030
seuil contrôle technique (CT) <i>directive 92/55/CEE du 22 juin 1992</i>	2,5 m-1 pour un véhicule diesel 3 m-1 pour un véhicule turbodiesel
seuil Code de la Route (article R69) <i>arrêté du 12/11/1963 modifié par arrêté du 13/05/1998</i>	

Dans le cas du véhicule diesel, le seuil de pollution choisi permettant de considérer le véhicule comme "polluant" a été, par convention pour l'étude, fixé à 2,5 m-1 (opacité).

2 Structure du parc automobile roulant à Paris

La base de données a permis d'estimer la structure du parc automobile roulant à Paris. L'échantillon total de 555 véhicules a été réparti en quatre classes selon le type de motorisation : véhicules à essence non catalysés, véhicules à essence catalysés, véhicules diesel non catalysés et véhicules diesel catalysés.

Tableau 2
Structure du parc automobile roulant à Paris

Type		Age moyen	Kilométrage moyen
<i>Essence</i>			
Véhicule non catalysés	47 %	10	116 000
Véhicules catalysés	24 %	3	49 000
Total essence	71 %	8	94 000
<i>Diesel</i>			
Véhicule non catalysés	26 %	6	116 000
Véhicules catalysés	3 %	1	19 000
Total diesel	29 %	5	105 000
Total		7.5	96 000

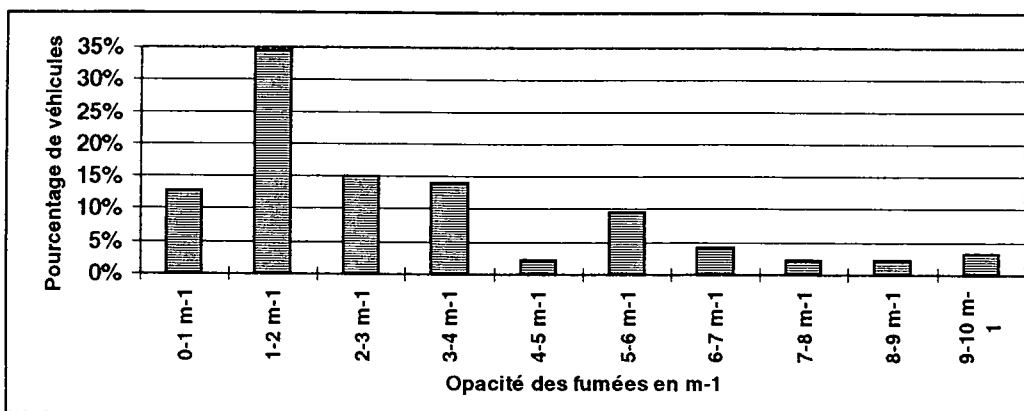
Ces données sont comparables aux données provenant d'autres sources et montrent qu'à Paris le parc de véhicule diesel est plus faible qu'à l'échelon national.

Les voitures à essence parcourent en moyenne 11 800 km par an contre 21 000 km pour les véhicules diesel (soit 78 % de kilomètres en plus).

3 Résultat des contrôles

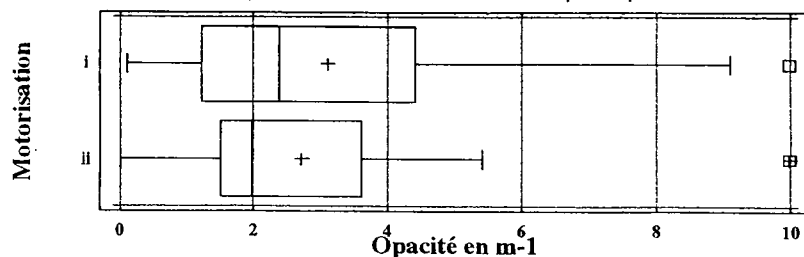
3.1 Véhicules diesel et turbodiesel non catalysés

Figure 1
Répartition des véhicules diesel non catalysés en fonction de l'opacité des fumées



La distribution de l'opacité des fumées du parc diesel non catalysé est très hétérogène et presque bi-modale. 45 % des véhicules diesel non catalysés se situent au-dessus du seuil de 2,5 m-1 et sont donc "polluants". 20 % des véhicules de cette classe présentent une opacité des fumées supérieure à 5 m-1.

Figure 2
Opacité des fumées émises par les véhicules diesel atmosphérique et turbodiesel non catalysés



- i : Echantillon de véhicules diesel atmosphérique non catalysés (68 valeurs)
- ii : Echantillon de véhicules turbodiesel non catalysés (25 valeurs)

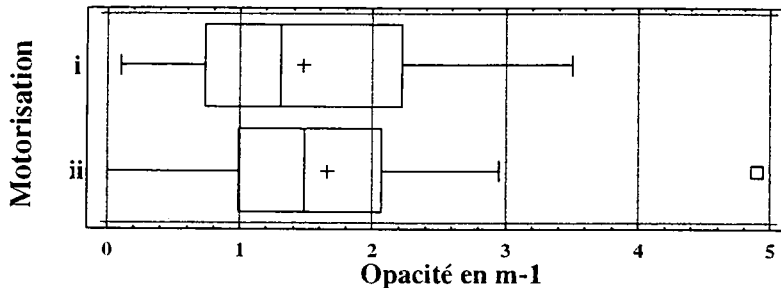
La figure 10 semble montrer que les niveaux d'opacité des fumées relevés pour les véhicules munis de turbo sont plus faibles que ceux observés pour les véhicules diesel atmosphérique (moteurs à aspiration naturelle par opposition aux moteurs diesel turbocompressés). Néanmoins, les deux échantillons ont été soumis à un test d'égalité des variances puis à un test d'égalité des moyennes de Student. Ces tests ont montré que les variances et les moyennes des deux échantillons étaient égales avec un intervalle de confiance de 95 %, les échantillons diesel et turbodiesel peuvent donc être regroupés.

3.2 Efficacité du pot catalytique vis-à-vis de l'opacité des fumées

L'échantillon d'automobiles catalysées est très faible (11 valeurs) car ce parc est très jeune (le pot catalytique n'est obligatoire pour les voitures diesel françaises que depuis le 1^{er} janvier 1997). Sur l'échantillon obtenu, la médiane et la moyenne se situent en deçà du seuil de 2,5 m-1 et un véhicule sur onze (9 %) dépasse cette valeur. La comparaison avec l'échantillon de véhicules diesel non catalysés de kilométrage inférieur à 50 000 km (kilométrage moyen 32 000 km) ne montre pas de baisse sensible de l'émission de particules par la présence du pot catalytique. Les deux échantillons ont été soumis à un test d'égalité des variances puis à un test d'égalité des moyennes de Student qui ont montré l'égalité des variances et des moyennes avec un intervalle de confiance de 95 %.

Figure 3

Opacité des fumées émises par les véhicules diesel catalysés et non catalysés de moins de 50 000 km



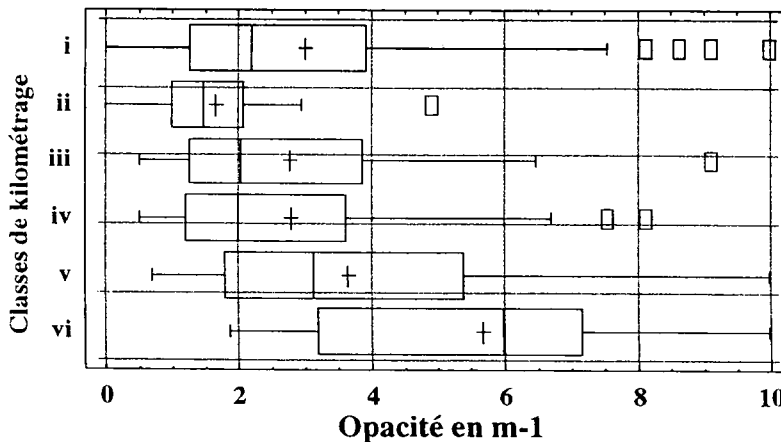
i : échantillon de véhicules diesel catalysés (11 valeurs) - *ii* : échantillon de véhicules diesel non catalysés dont le kilométrage est inférieur à 50 000 km (16 valeurs)

3 3 Opacité des fumées et âge du véhicule

Les véhicules ont été classés par tranche de kilométrage d'intervalle 50 000 km.

Figure 3

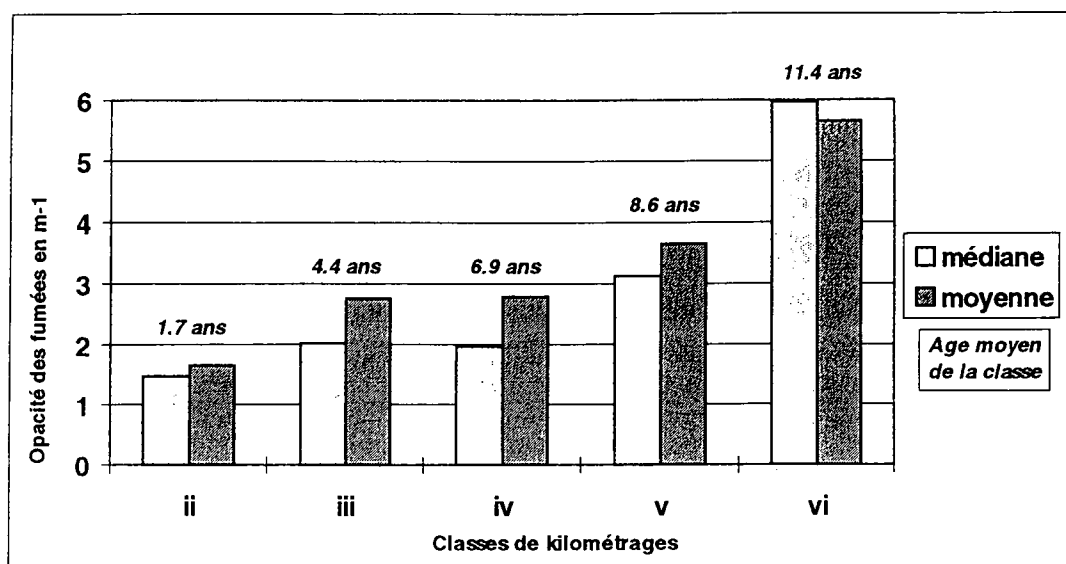
Répartition des échantillons de véhicules diesel non catalysés en fonction du kilométrage



i : échantillon de véhicules total (93 valeurs) - *ii* : de 0 à 50 000 km (16 valeurs)
iii : de 50 000 km à 100 000 km (27 valeurs) - *iv* : de 100 000 km à 150 000 km (26 valeurs)
v : de 150 000 km à 200 000 km (15 valeurs) - *vi* : plus de 200 000 km (9 valeurs)

Par ailleurs une classification selon la puissance fiscale démontre qu'un groupe formé par les véhicules de 5, 6, 7 chevaux est homogène pour l'opacité des fumées tandis que les véhicules de 4 chevaux d'une part, et les véhicules de 8 chevaux et plus d'autre part, forment deux groupes sensiblement différents. Ces groupes sont intimement liés au type de moteur équipant les véhicules.

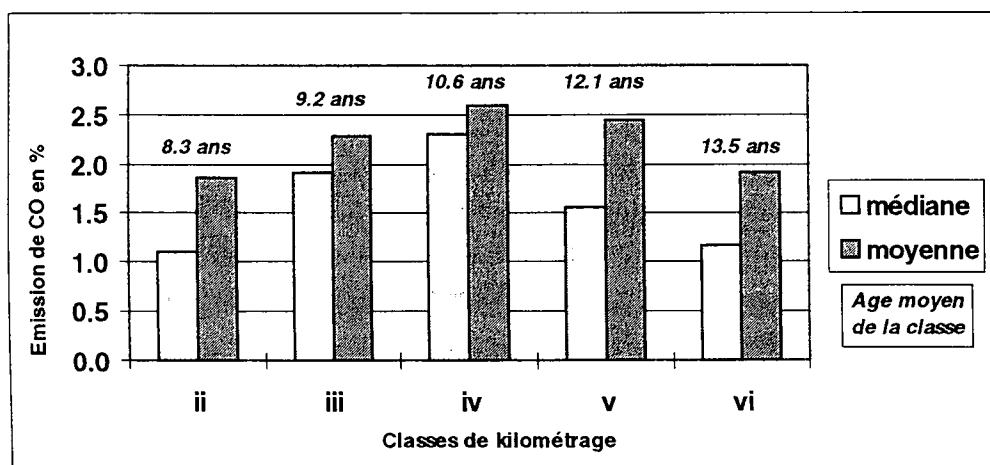
Figure 4
Répartition des échantillons de véhicules diesel non catalysés en fonction du kilométrage



ii : échantillon de véhicules de kilométrage compris entre 0 et 50 000 km (16 valeurs)
 iii : entre 50 000 km et 100 000 km (27 valeurs) - iv : entre 100 000 km et 150 000 km (26 valeurs)
 v : entre 150 000 km et 200 000 km (15 valeurs) - vi : supérieur à 200 000 km (9 valeurs)

Ce graphe montre une croissance de l'opacité des fumées en fonction du kilométrage. Il peut être utilement comparé au graphe ci dessous des teneurs en monoxyde de carbone des gaz d'échappement en fonction de l'âge du véhicule.

Figure 5
Répartition de l'échantillons de véhicules essence non catalysés en fonction du kilométrage



ii : échantillon de véhicules de kilométrage compris entre 0 et 50 000 km (27 valeurs)
 iii : entre 50 000 km et 100 000 km (94 valeurs) - iv : entre 100 000 km et 150 000 km (105 valeurs)
 v : entre 150 000 km et 200 000 km (63 valeurs) - vi : supérieur à 200 000 km (13 valeurs)

La figure 5 montre pour les émissions de monoxyde de carbone des véhicules à essence non catalysés un comportement différent avec l'âge du véhicule.

Un calcul de régression montre que l'opacité des fumées augmente de 0,63 m-1 lorsque le véhicule "vieillit de 50 000 km" (Seuil de détermination $R^2 = 88 \%$). Après 150 000 km, les émissions de fumées se situent nettement au delà des seuils de d'émissions admis. Cette croissance peut être liée à un mauvais vieillissement du moteur diesel et (ou) à un défaut d'entretien de la part du propriétaire.

Etude des variations temporelles de la distribution en taille du Po-218 et du Pb-214 ultrafins, de la fraction libre et du facteur d'équilibre des dérivés à vie courte du Radon-222 dans une habitation.

C. Huet¹, G. Tymen¹, D. Boulaud²

¹ Laboratoire de Recherches Appliquées Atmosphère - Hydrosphère, Faculté des Sciences et Techniques, B.P. 809, 29285 Brest Cedex, France.

² Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols, Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, DPEA/SERAC, CEA-Saclay bât 389, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

I- Introduction

Le Radon-222 est un gaz rare naturel radioactif issu de la chaîne de décroissance de l'Uranium-238 présent en teneurs variables dans les sols et matériaux de construction. Après exhalation, il donne naissance au Po-218, au Pb-214, au Bi-214 et au Po-214 qui sont appelés dérivés à vie courte du radon. Ce sont des particules solides qui peuvent donc se fixer aux aérosols de l'air ambiant. L'inhalation des descendants du radon représente en moyenne 50% de la dose totale de radiations reçues par l'individu. L'effet potentiel sur la santé des dérivés du radon dépend de leur comportement en atmosphère intérieure. Les facteurs influents dans le calcul de doses sont la fraction libre (f_p) qui représente la fraction de descendants sous forme nanométrique définie comme le rapport entre l'Energie Alpha Potentielle libre et l'Energie Alpha potentielle totale, le facteur d'équilibre (F) et la distribution en taille des descendants.

Pendant une année, dans le cadre du programme européen RARAD, des expérimentations ont été menées dans une habitation située en Bretagne. En particulier, la fraction libre et le facteur d'équilibre ont été mesurés en continu dans différentes conditions ambiantes (aérosol naturel, sources d'aérosols: cuisson, cigare...). De plus, des mesures ponctuelles de la distribution en taille du Po-218 et du Pb-214 ultrafins ont été réalisées.

Après la présentation des dispositifs de mesure utilisés, les résultats concernant ces mesures à long-terme sont exposés.

II- Dispositifs de mesure

II-1 Mesure en continu de la fraction libre et du facteur d'équilibre

Afin de pouvoir mesurer en continu la fraction libre (f_p) et le facteur d'équilibre (F) des dérivés à vie courte du Radon-222, nous avons conçu un dispositif composé de deux lignes de prélèvement placées en parallèle qui sont: un canal de diffusion annulaire et un filtre dit "ouvert". En effet, un calcul analytique développé au laboratoire (Kerouanton et al., 1996) a permis de montrer que les performances de collection de l'aérosol ultrafin d'un canal de diffusion annulaire étaient identiques à celles d'un canal rectangulaire qui est considéré comme la géométrie la plus sélective. Nous avons donc adapté le canal à la mesure des activités attachées des descendants du radon. Le canal est

constitué d'un cylindre central, dont nous avons percé une des extrémités afin d'y insérer un détecteur alpha au silicium (PIPS, Canberra). Les particules composant la fraction libre se déposent par diffusion sur les parois du canal ainsi seules les particules de la composante attachée sont collectées sur le filtre (Poretics, 0,2 μm) placé en aval du canal en regard du PIPS. L'autre ligne de prélèvement est un filtre "ouvert" destiné à collecter la totalité de l'aérosol radioactif issu du radon. Un détecteur au silicium est également placé en regard du filtre. Une technique de spectroscopie alpha permet de déterminer à l'aide de la méthode de Tremblay et al. (1979) les activités totales et attachées des descendants du radon. Cette méthode consiste en la mesure du nombre d'émissions alpha provenant des atomes de Po-218 et Po-214 pendant deux intervalles de comptage successifs.

Afin de mesurer en continu ces concentrations, nous avons écrit un programme sous Quickbasic qui nous permet, par l'intermédiaire d'un PC, de contrôler d'une part la pompe, à l'aide d'une interface que nous avons créée et que nous branchons sur le périphérique d'imprimante, et d'autre part le logiciel ACCUSPEC (Canberra) d'acquisition des spectres. Les mesures s'effectuent toutes les trois heures selon le schéma suivant: 0-15 minutes prélèvement, 0-15 minutes premier comptage, 20-75 minutes second comptage. L'activité libre de chaque descendant est obtenue par soustraction des activités totale et attachée. La fraction libre peut alors être déterminée. En outre, le facteur d'équilibre peut être obtenu grâce à la mesure en continu de l'activité en radon à l'aide d'une technique d'électro-précipitation du Po^{218+} .

II-2 Distribution en taille de la composante ultrafine des dérivés du radon

Afin de pouvoir déterminer la distribution en taille du Po-218 et du Pb-214 ultrafins, nous avons conçu une batterie de diffusion à lits granulaires. Celle-ci est constituée de cinq lits granulaires placés dans des tubes en acier de 3,6 cm de diamètre et d'un canal de référence. La longueur des tubes est égale à celle des lits granulaires placés à l'intérieur. Les trois premiers lits de billes sont constitués de billes en acier de 0,85 cm de diamètre, les deux autres de billes de verre de 0,5 cm de diamètre, chaque lit de billes étant soutenu par une grille. Les efficacités de collection de chaque canal sont calculées en tenant compte de l'efficacité du lit de billes et de l'efficacité de la grille. Les caractéristiques de chaque canal sont données dans le tableau 1.

Canal	Diamètre des billes (cm)	Porosité	Longueur des lits (cm)	Diamètre de coupure (nm)
1	0,85	0,427	1,4	0,85
2	0,85	0,427	2	1,1
3	0,85	0,427	3,5	1,6
4	0,5	0,41	3	2,9
5	0,5	0,41	5,7	4,8

Tableau 1: Caractéristiques de la batterie de diffusion.

Après des prélèvements de 5 à 10 minutes, les activités volumiques en Po-218 et en Pb-214 sont déterminées à l'aide d'une méthode de comptage alpha global: la méthode TELS (Hartley et Hartley, 1989). Ensuite, connaissant les activités sur chacun des filtres et la matrice noyau du dispositif de collection, les distributions en taille du Po-218 et du Pb-214 sont restituées à l'aide des méthodes inverses de Twomey (1975) et EVE (Paatero, 1990).

III- Résultats

III-1 Conditions expérimentales

Pendant cette année d'expérimentation dans l'habitation, la température et l'hygrométrie, mesurées à l'aide d'une sonde SOLOMAT, sont restées relativement stables avec des valeurs respectives autour de 20°C et de 50%. Durant les mois d'hiver, la pièce était chauffée à l'aide de deux convecteurs électriques.

La concentration en particules était mesurée en continu, sur certaines périodes, à l'aide d'un compteur de noyaux TSI 3025. Sans source d'aérosols, c'est à dire en présence de l'aérosol naturel, la concentration en particules a varié entre 500 et 5 000 part/cm³ pour une valeur moyenne de 1 200 part/cm³. Cette faible concentration peut s'expliquer d'une part par la faible fréquence de ventilation (0,3 h⁻¹ en moyenne) limitant ainsi l'entrée des aérosols présents dans l'air extérieur. D'autre part, la faible activité à l'intérieur de la pièce est également responsable de cette faible concentration en particules. Lors de l'utilisation de sources telles que les bougies ou la fumée de cigare par exemple, la concentration en particules a atteint des valeurs de l'ordre de 600 000 part/cm³.

En ce qui concerne l'activité en radon, nous avons pu observer des variations entre 240 et 2 800 Bq.m⁻³ pour une valeur moyenne de 1 400 Bq.m⁻³.

III-2 Fraction libre et facteur d'équilibre

Du fait des faibles concentrations en particules en présence de l'aérosol naturel, la valeur moyennée de la fraction libre sur un ensemble de 1 000 mesures est de 0,31 (variation entre 0,08 et 0,67). En ce qui concerne, la fraction libre du Po-218, elle se situe aux alentours de 69% avec des valeurs atteignant parfois 86%. La fraction libre moyenne du Pb-214 représente quant à elle 23% (0 à 61%). Enfin seulement 8% du Bi-214 se trouve sous forme libre. Les variations de la fraction libre, du facteur d'équilibre et du nombre de noyaux sur une période de 5 jours sont représentées sur l'exemple de la figure 1. Nous pouvons observer une fluctuation de la fraction libre entre 0,13 et 0,43 tandis que le facteur d'équilibre oscille entre 0,15 et 0,35. Les valeurs maximales de la fraction libre sont obtenues lorsque que la concentration en particules est la plus faible. A l'inverse, les valeurs maximales du facteur d'équilibre sont observées pour les concentrations en particules les plus élevées. Du fait de la faible concentration en particules, les centres d'attachement sont peu nombreux et ainsi les descendants se trouvent majoritairement sous forme libre. Ces derniers se déposent en partie sur les surfaces entraînant un déséquilibre important entre le radon et ses descendants.

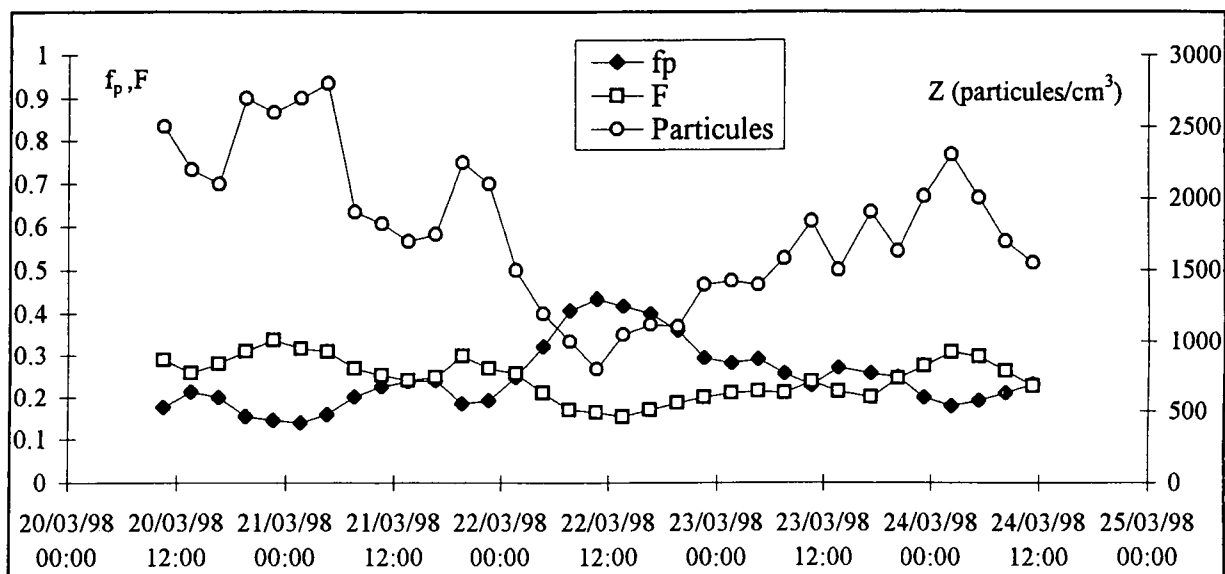


Figure 1: Variations de la fraction libre, du facteur d'équilibre et du nombre de noyaux.

Lorsque des sources sont utilisées, la multiplication des centres d'attachement entraînent la fixation des dérivés du radon sur ces particules d'aérosols réduisant ainsi le déséquilibre entre le radon et ses descendants (tableau 2). Avec certaines sources comme le cigare, le facteur d'équilibre atteint même des valeurs autour de 0,7. La fraction libre chute alors à quelques pourcents et il n'existe plus ou pratiquement plus de Pb-214 et de Bi-214 sous forme libre. Par contre, il peut subsister du Po-218 libre, notamment avec l'aérosol de cuisson (20%).

	Fraction libre	f_{Po}	f_{Pb}	f_{Bi}	Facteur d'équilibre
Cuisson	0,046 (0,01-0,09)	0,2 (0,038-0,3)	0,017 (0-0,09)	0,02 (0-0,06)	0,27 (0,15-0,4)
Encens	0,02 (0,01-0,05)	0,069 (0,047-0,17)	0,017 (0-0,075)	0	0,49 (0,3-0,59)
Bougies	0,032 (0,022-0,047)	0,10 (0,01-0,16)	0,023 (0,014-0,06)	0	0,31 (0,26-0,35)
Cigare	0,024 (0,012-0,039)	0,10 (0,07-0,15)	0,001 (0-0,007)	0,001 (0-0,007)	0,56 (0,26-0,74)

Tableau 2: Fraction libre de l'EAP, fraction libre de chaque descendant et facteur d'équilibre en présence de sources d'aérosols.

III-3 Distributions en taille du Po-218 et du Pb-214 ultrafines

Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, les fractions libres en Po-218 et en Pb-214, relevées au cours des mesures en continu, sont relativement importantes dans nos conditions expérimentales. Ceci nous a donc permis d'utiliser la batterie de diffusion à lits granulaires de façon à obtenir les distributions en taille des composantes ultrafines de ces deux descendants. Les résultats montrent que toutes les distributions restituées, que ce soit pour le Po-218 ou le Pb-214, sont

unimodales. Les diamètres médians en activité restitués par les algorithmes EVE et Twomey varient entre 0,5 et 1,25 nm. En ce qui concerne les valeurs de l'écart-type géométrique, elles varient respectivement entre 1,2 et 1,4 et entre 1,15 et 1,3. En moyenne, le diamètre du Po-218 ultrafin et l'écart-type géométrique restitués par les algorithmes EVE et de Twomey sont respectivement 0,8 nm et 1,25 et 0,95 nm et 1,2. Un exemple typique de la distribution en taille du Po-218 est représenté sur la figure 2. Il correspond à un mode autour de 0,8 nm pour l'algorithme EVE et 0,85 nm pour l'algorithme Twomey avec un écart-type de 1,25. Nous pouvons observer un bon accord entre les deux algorithmes.

En ce qui concerne la taille du Pb-214 ultrafin, les valeurs du diamètre moyen en activité obtenues par EVE se situent entre 0,55 et 1,25 nm avec des écart-types entre 1,2 et 1,35. Quant à l'algorithme Twomey, les valeurs pour le diamètre couvrent la gamme 0,55-1,5 nm, les écart-types s'échelonnant entre 1,15 et 1,4. La moyenne des expériences donne, respectivement pour les méthodes EVE et Twomey, un diamètre de 0,7 et 0,85 nm et un écart-type de 1,25 et 1,3 pour le Pb-214 ultrafin. Un exemple est donné sur la figure 3.

Ces premiers résultats expérimentaux se rapprochent de ceux de Reineking (1998) qui suggère que les modes vers 0,5 et 0,8 nm correspondent à des descendants sous forme neutre tandis que ceux autour de 1,2 nm concernent des descendants chargés.

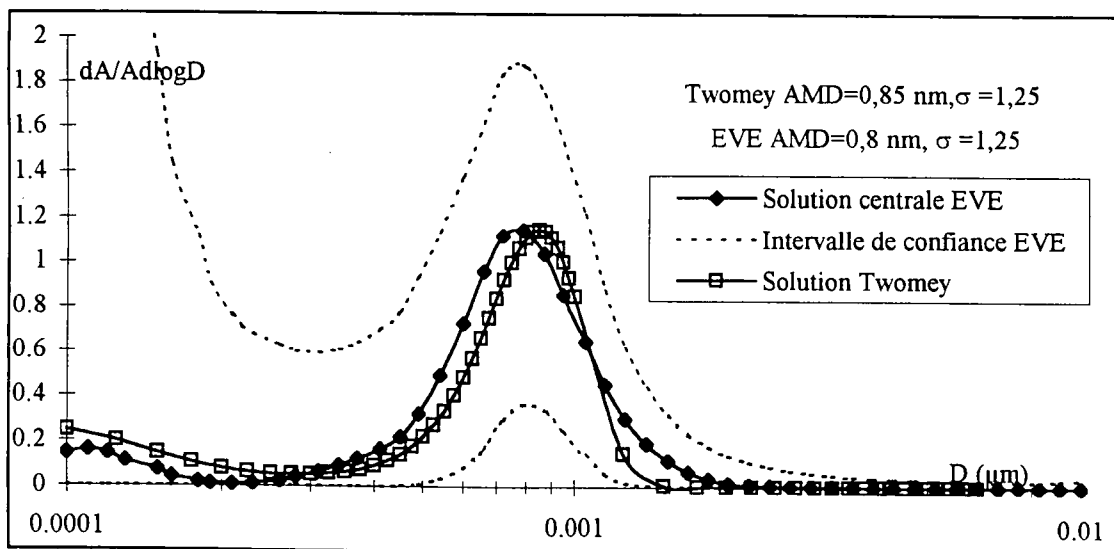


Figure2: Exemple de distribution en taille du Po-218.

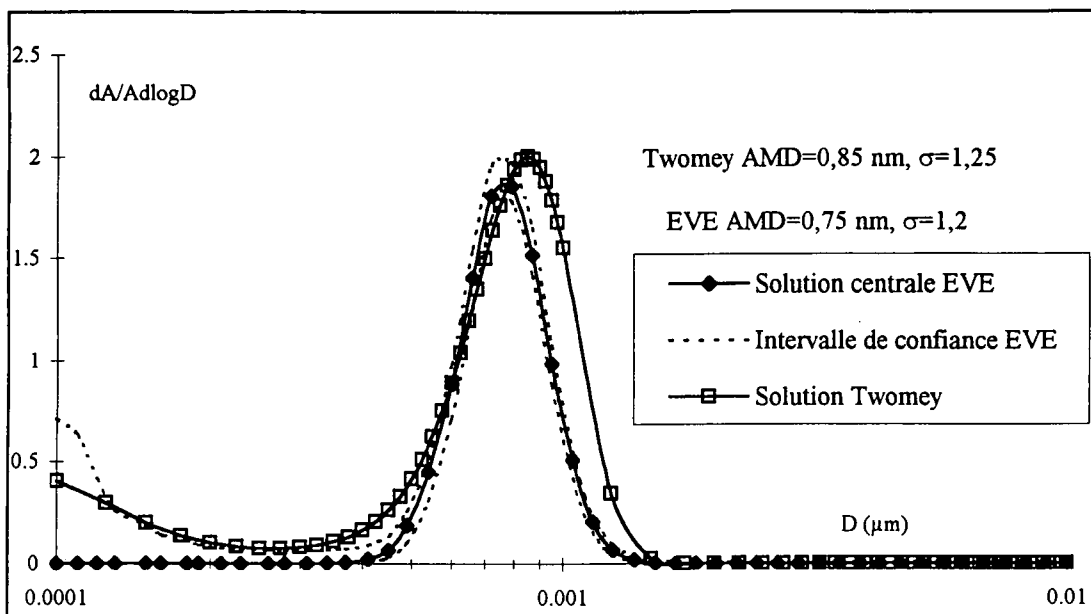


Figure 3: Exemple de distribution en taille du Pb-214 nanométrique.

IV- Conclusion

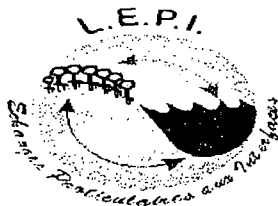
Nous avons caractérisé de façon complète l'aérosol radioactif issu du radon dans une habitation bretonne traditionnelle. Nous avons montré qu'en présence d'un aérosol naturel, les concentrations en particules pouvaient être faibles ($<10^3 \text{ cm}^{-3}$) entraînant un facteur d'équilibre vers 0,16 et une fraction libre autour de 0,4. En présence de sources, la fraction libre devient quasi inexistante tandis que le facteur d'équilibre se situe entre 0,3 et 0,7 selon le type de sources. Nous avons pu estimer le diamètre en activité du Po-218 et du Pb-214 ultrafins à respectivement 0,8 et 0,77 nm. L'ensemble de ces résultats peut ainsi servir de données d'entrée pour le calcul de doses entrepris par le National Radiological Protection Board suivant la publication 66 de l'ICRP.

Un développement futur de nos techniques consisterait à remplacer la batterie de diffusion à lits granulaires par une batterie de diffusion à canaux annulaires, laquelle présente des courbes d'efficacités plus sélectives, dans le but de restituer deux modes ultrafins ce qui n'est pas possible avec le système actuel.

Enfin, il est également nécessaire de caractériser de façon plus précise la fraction chargée de l'aérosol issu du radon et donc de concevoir des dispositifs adaptés.

Références:

- Hartley B. M., Hartley A. M. (1989). *Radiological Protection*, vol. 9, pp. 165-177.
- Kerouanton D., Tymen G., Boulaud D. (1996). *J. Aerosol Science*, vol. 27, p. 345-349.
- Paatero P. (1990). *Report Series in Physics*, University of Helsinki.
- Reineking A. (1998). Mid-term report, CEC contract FI4P-CT-95-0025.
- Tremblay R. J., Leclerc A., Mathieu C., Pepin R., Townsend M. G. (1979). *Health Physics*, vol. 36, pp. 401-411.
- Twomey S. (1975). *J. Comput. Phys.*, vol. 18, pp. 188-200.



COMPOSITION CHIMIQUE DE L'AÉROSOL MARIN EN ZONE CÔTIÈRE PENDANT LA CAMPAGNE FETCH

K. Sellegri, J. Gourdeau, S. Despiou-Pujo

Laboratoire des Echanges particuliers aux Interfaces. Université de Toulon et du Var. ISITV BP 56
83 162 la valette du Var Cedex.

Introduction

L'une des raisons de l'intérêt porté à la composition chimique de l'aérosol marin est la possible existence d'une boucle de rétroaction faisant intervenir population phytoplanctonique, noyaux de condensation nuageuse (CCN) marins et climat. D'après de nombreux chercheurs, la source de CCN au dessus des océans semble être le DMS (Sulfure de Diméthyl, CH_3SCH_3), produit par le phytoplancton et oxydé dans l'atmosphère pour former des aérosols sulfatés. La réflexion (albedo) des nuages (et donc le bilan radiatif de la terre) étant sensible à la densité de CCN, une régulation biologique du climat est possible par l'action de la température et du rayonnement solaire sur la population de phytoplancton et la production de DMS (Charlson et al, 1987). Si la formation de CCN à partir des produits d'oxydation du DMS existe en atmosphère océanique propre, nous ignorons encore son importance en zone côtière où la présence d'un aérosol préexistant en grande quantité (aérosol de pollution) a certainement une influence sur ce mécanisme. La composition chimique de l'aérosol marin est très bien connue pour la gamme de taille supérieure à $1 \mu\text{m}$, elle est moins bien détaillée pour les aérosols submicroniques. La description précise de la répartition des composés chimiques dans cette gamme de très fines particules peut apporter des éléments de réponse pour le mode de formation de l'aérosol marin. De plus, son étude en zone côtière permet d'apporter des données importantes dans des modèles qui sont souvent déficients aux frontières des deux milieux continental ou marin.

Méthode/Mission FETCH

Les prélèvements ont été effectués dans le cadre de la campagne de mesure internationale FETCH (Flux, Etats de mer, Télédetection en Conditions de fetch variable) qui s'est déroulée en mars et avril 98 à bord du navire océanographique Atalante de l'IFREMER. L'installation a été placée sur le pont supérieur avant, à une hauteur de 14 m afin d'éviter la présence d'embruns. La zone d'étude se situe dans le golfe du Lion, différentes radiales ont été suivies par le bateau (allers-retours entre les distances 50 et 150 kms de la côte) suivant les conditions météorologiques : nous avons recherché les événements de Mistral et Tramontane afin de déceler l'éventuelle influence du Fetch (distance parcourue par le vent au dessus de l'eau) sur la composition des particules. Ces conditions de Mistral et Tramontane sont de surcroît des conditions stables de direction et force de vent, permettant la comparaison de plusieurs échantillons prélevés dans des conditions les plus proches possibles. La durée des prélèvements a varié de 6 à 15 heures; ils n'ont pas été plus long dans le but de comparer les échantillons issus d'une zone proche de la côte avec les échantillons issus d'une zone éloignée de la côte, et si possible les échantillons de nuit avec les échantillons de jour. Le prélèvement des aérosols a été effectué à l'aide d'un impacteur en cascade basse pression DEKATI, ayant la particularité d'être constitué de 13 niveaux de coupure, dont huit sont submicroniques. Cette caractéristique permet une découpe fine du spectre en dessous du micromètre. Le débit d'air échantillonné est de 20 l/min. Les substrats collecteurs utilisés sont des filtres en téflon, pour la bonne qualité de leur blanc et leur faible réactivité limitant les artefacts chimiques.

Quelles mesures

Les composés analysés ont été choisis dans l'objectif d'étudier les modes de formation de l'aérosol fin marin. Les deux possibilités considérées sont :

- le conversion Gaz/Particule à partir des produits d'oxydation du DMS par nucléation homogène gazeuse
- la formation de très fines gouttelettes (environ 0.05-0.3 μm) par éclatement de bulles, qui par évaporation peuvent donner des particules dont la taille est proche de 0.01 μm , celle caractérisant le mode nucléation.

Le premier processus de formation engendre la présence de MSA et de sulfates en excès (nss-sulfates¹)(Produits d'Oxydation du DMS) dans les particules de la taille des CCN. Si le deuxième mécanisme a lieu, en revanche, nous devons trouver dans cette gamme de taille la présence de sels de mer. Il est admis depuis longtemps que le sel se situe dans les grosses particules principalement formées par arrachement mécanique. Néanmoins, quelques auteurs (O'Dowd, 1993, Hoppel and Fick, 1989) ont récemment noté la présence de sels dans la partie submicronique du spectre indiquant la possibilité d'une importance non négligeable de ce processus. Douze composés (Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , Oxa, Ac Fo, MSA, Py) ont été analysés par chromatographie ionique, méthode choisie pour sa bonne reproductibilité, et ses basses limites de détection. Nous allons particulièrement nous intéresser ici :

- aux ions sodium et chlorures pour tracer la présence de sels de mer
- à l'ion ammonium et aux nitrates car ils permettent dans certains cas d'évaluer le caractère anthropique de la masse d'air échantillonnée
- aux sulfates en excès et au MSA pour mesurer la part biogénique de la formation de nouvelles particules jouant le rôle de CCN.

Résultats

Les valeurs qui vont être présentées sont les valeurs mesurées moins la moyenne de la valeur d'une vingtaine de substrats de collection blancs ayant subi toutes les étapes de manipulation. On observe sur les distributions issues directement de l'analyse (en μg par gamme de taille) des pics bien dessinés sur les grosses particules (Na sur 1-5 μm) ou sur les fines particules (SO_4 et NH_4 sur 0.2-0.6 μm). L'ensemble des spectres ont été superposés pour comparaison.

NaCl

Les concentrations en Na varient de 0.3 à 4.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, ce qui est légèrement inférieur à ce qui est généralement trouvé en atmosphère marine pure (Putaud *et al* trouvent en 1993 dans l'océan Atlantique des concentrations variant de 0.5 à 8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$). La fig. 1 montre la répartition du NaCl en rapport de la masse totale analysée (ne comprend pas les composés carbonés, les valeurs sont à prendre avec précaution). On vérifie le fait que le sel soit principalement situé sur les particules supérieures à 0.5 μm . On observe quelques échantillons pour lesquels les pourcentages en sel ne sont pas négligeables dans les particules de l'ordre de 0.1 μm mais pour lesquelles nous n'avons pas trouvé de points communs tels que la direction, la force du vent ou l'humidité relative. L'observation est néanmoins délicate vu les faibles quantités de matière récoltées sur ces derniers étages.

¹ La concentration en nss-sulfates est le résultat de la différence entre la concentration en sulfates totale mesurée et la concentration en sulfates présente dans le sel de mer (calculée à partir du rapport massique $(\text{nss-SO}_4/\text{Na})_{\text{eau de mer}} = 0.252$)

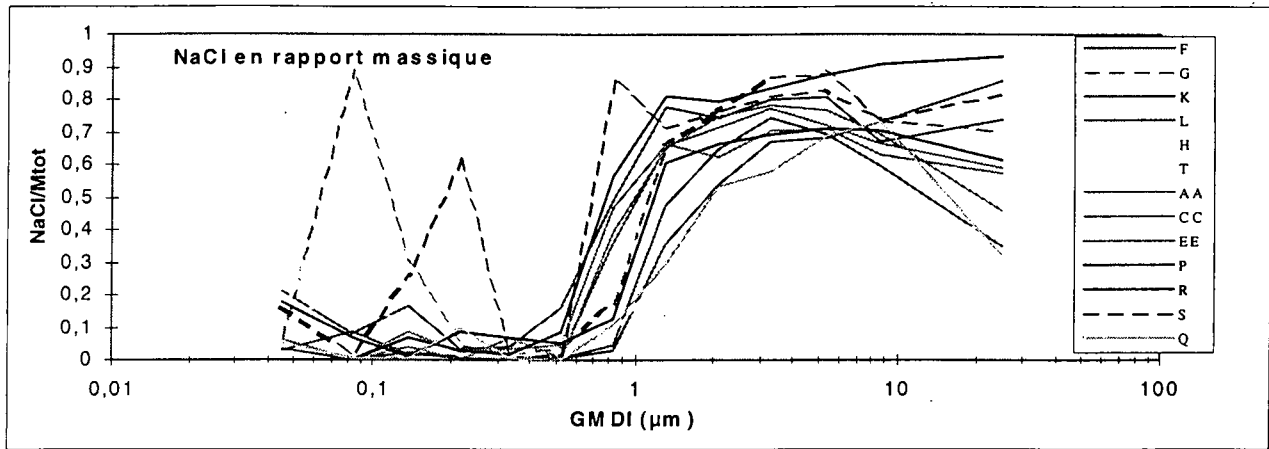


Fig. 1 Superposition des spectres. Les échantillons F,G,K, L correspondent à des situations de Mistral, AA, CC, EE sont des échantillons de Tramontane et P, R, S ont été prélevés par vent de Sud fort.

nss-SO₄

Les concentrations en sulfates en excès sont en moyenne de 3.4 µg/m³, variant de 0.4 à 8.9µg/m³. Les distributions sont très intéressantes : elles montrent des pics systématiquement situés sur 0.3 ou 0.5 µm, correspondant au pic accumulation. mais elles montrent surtout la présence d'une quantité significative de sulfates dans les particules de diamètres inférieurs à 0.1 µm (mode nucléation). On peut se persuader de cette importance en observant l'absence totale de SO₄ dans les particules de diamètres supérieurs à 2 µm, bien que ces particules représentent une grande proportion de la masse totale.

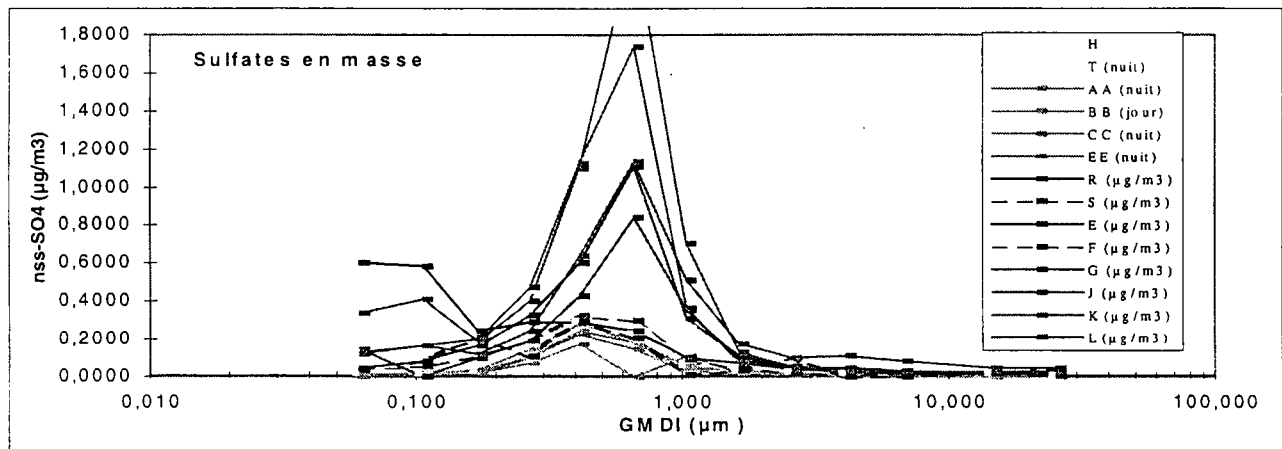


Fig.2 Distributions en masse de sulfates en excès.

NH₄

Les distributions en NH₄ sont voisines des distributions en nss-SO₄ (Fig.4), semblant indiquer que les deux composés soient liés.

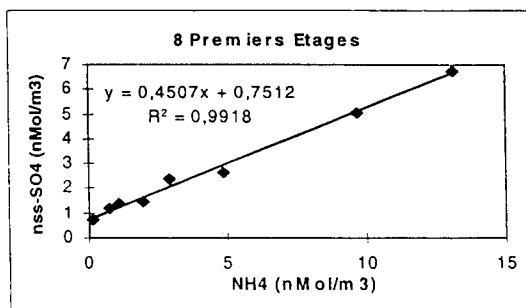
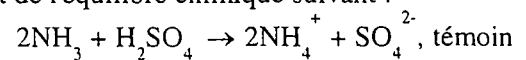


Fig. 3 Correlation par étage (un point correspond à un étage) entre sulfates en excès et ammonium.

En effet, les corrélations par étage sont excellentes (Fig.3), ce qui implique :

-soit que les deux composés sont associés sous la forme de (NH₄)₂SO₄ (en effet, la pente de la droite de corrélation molaire est de 2).

-soit que nous sommes en présence du résultat de l'équilibre chimique suivant :



témoin d'un temps de séjour important de ces constituants dans la masse d'air.

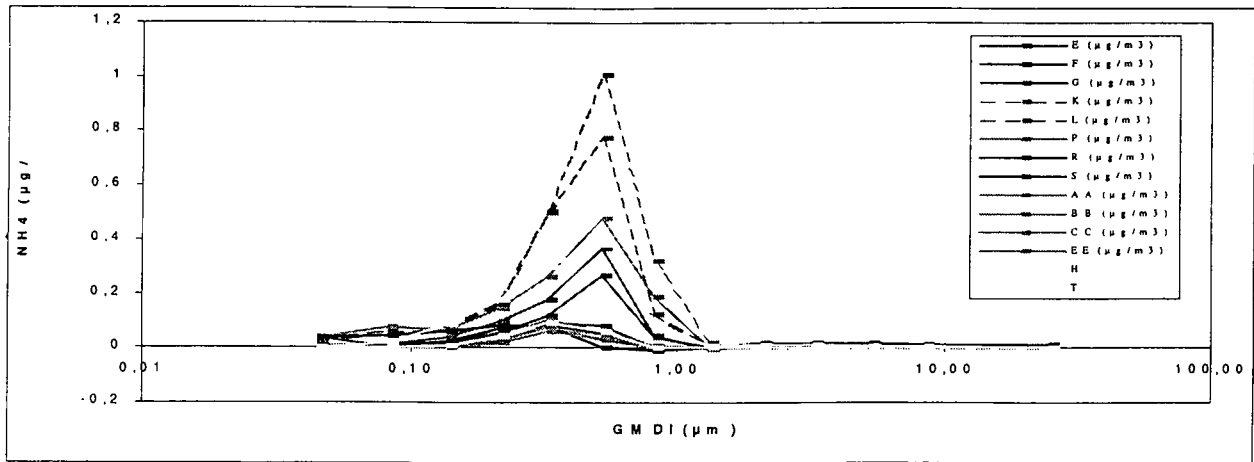


Fig. 4 Distributions de l'ion ammonium

NO_3

Les nitrates, qui sont comme les deux composés précédents, un indicateur du degré de pollution de la masse d'air, se répartissent de manière plus irrégulière sur l'ensemble du spectre. leur concentration varie de 0.3 à 6.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ($[\text{NO}_3] < 1.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ non pollué, $[\text{NO}_3] > 5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ épisode de forte pollution).

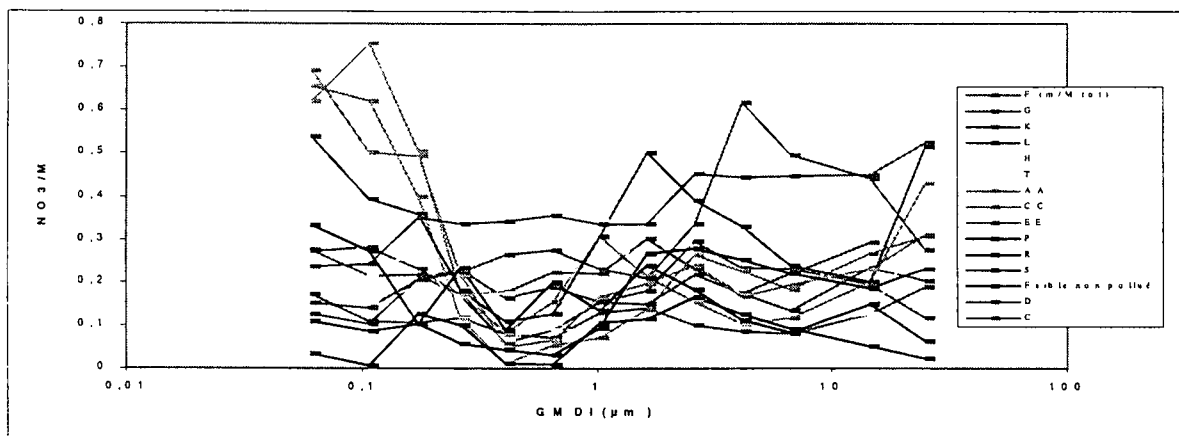
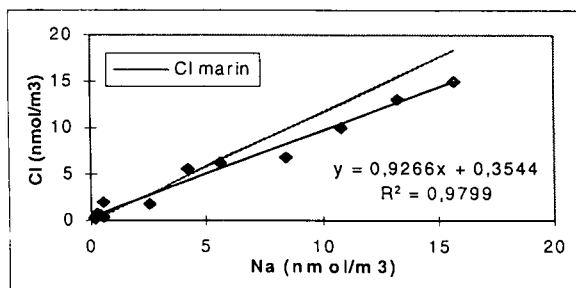
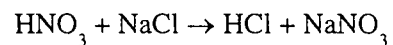


Fig. 5 Distributions en nitrates

Leurs distributions en rapport de la masse totale présente une allure bimodale avec deux pics aux environs de 0.1 et 2 μm (Fig.5). Il semble que les échantillons non pollués contiennent une proportion plus importante de nitrates dans les fines particules que les échantillons pollués.



Le deuxième pic est situé au même endroit que le pic de sodium; il est probablement dû à la réaction suivante :



En effet, nous constatons une légère perte de l'ion chlorure par rapport à sa proportion dans le sel de mer, d'après la corrélation représentée figure 6.

MSA

Les concentrations en MSA varient de 0.006 à 0.12 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Leurs distributions sont disparates et proches de l'écart type sur les blancs (fig. 7), malgré le fait que les concentrations mesurées soient du même ordre de grandeur que celles trouvées dans la littérature. Néanmoins, nous pouvons observer la présence de pics sur 0.3 μm (succession cohérente de valeurs) correspondant au mode d'accumulation

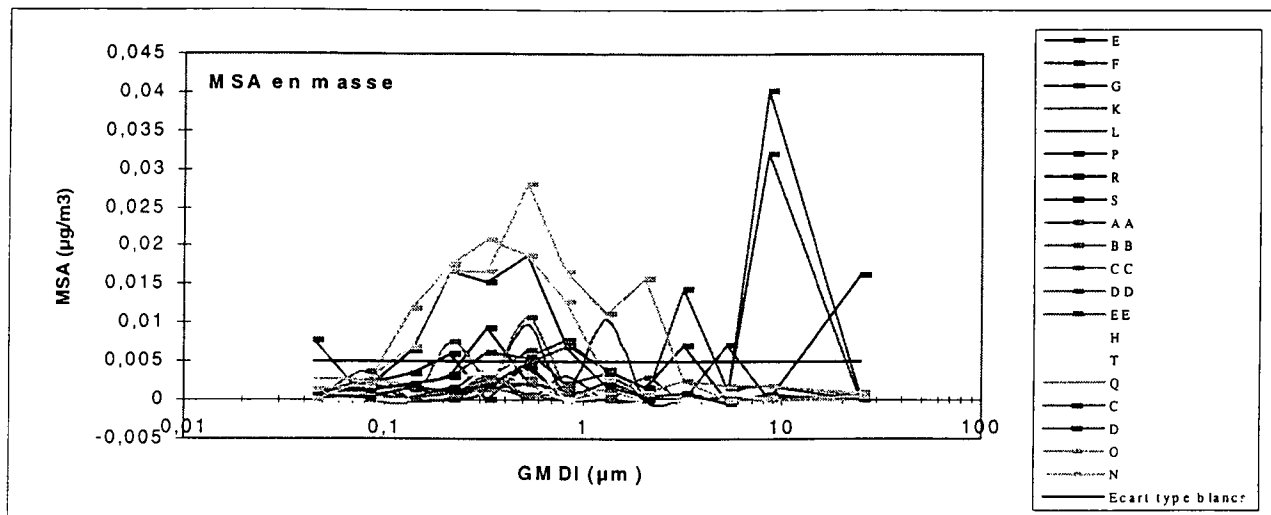


Fig.7 Distributions en MSA

L'absence de pic sur des diamètres inférieurs 0.1 µm amène à penser qu'il n'y a pas de nucléation à partir du MSA ou que c'est un phénomène mineur. De plus, les corrélations MSA/nss-SO₄ sont mauvaises, indiquant que les sulfates d'origine biogénique sont négligeables par rapport aux sulfates d'origine anthropique.

Comparaison des différentes situations météorologiques

Les figures 12 a, b, c, d, e, f synthétisent la composition des particules échantillonnées pour différentes situations météorologiques (chaque situation est la moyenne sur 3 à 4 prélèvements). En masse absolue, nous observons :

- par Mistral, un mode accumulation dominant
- par sud fort, un mode grosses particules dominant
- par Tramontane, la présence des deux modes est équivalente

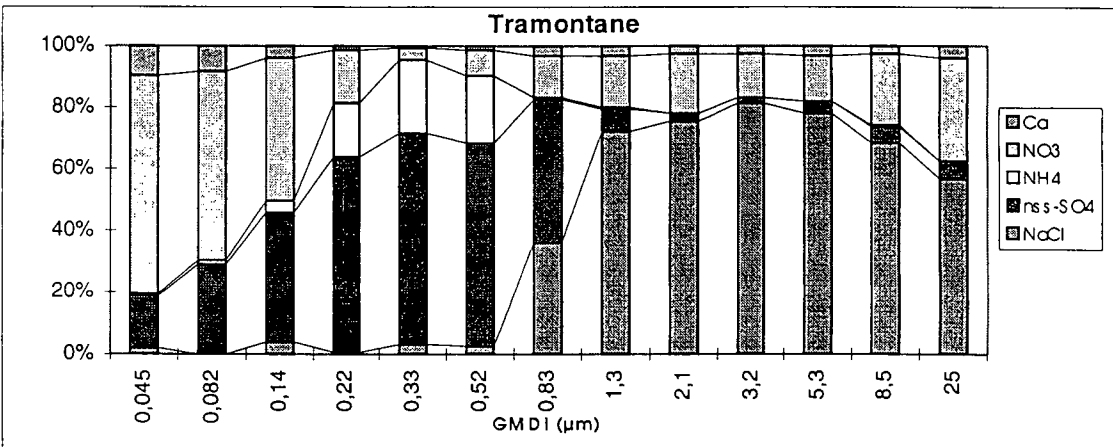
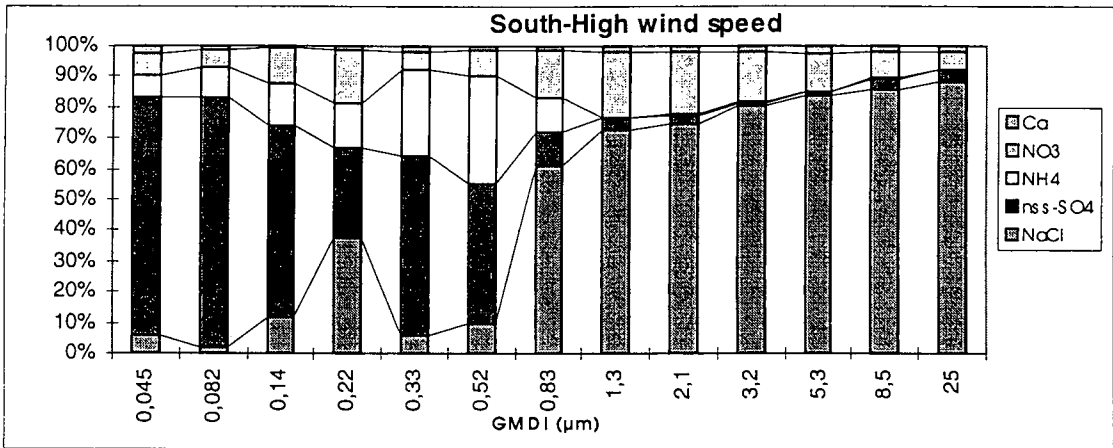
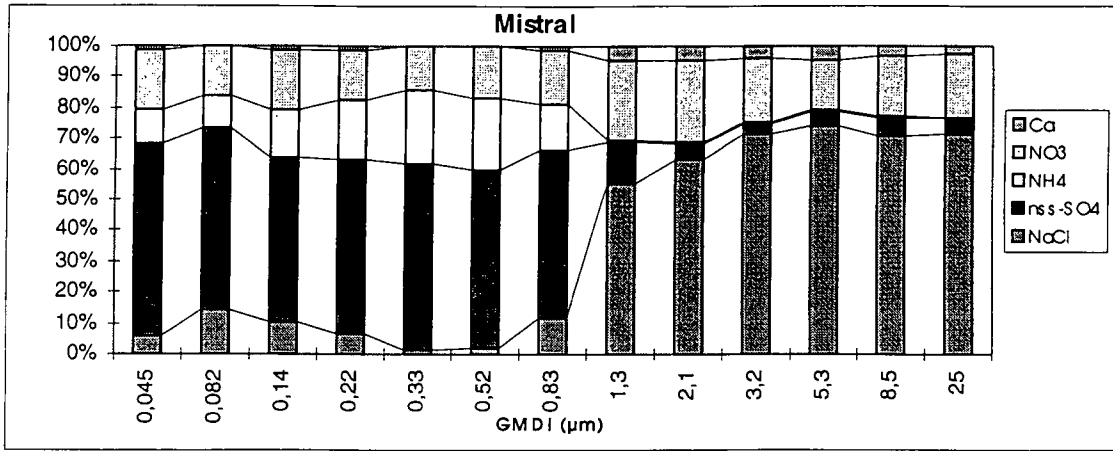
On note la différence d'échelle pour les échantillons de Tramontane, nettement moins concentrés que les autres. Leur composition est également différente : la proportion de NO₃ va jusqu'à 70 % de la masse totale analysée dans les particules de diamètre inférieur à 0.1 µm. On retrouve également le fait que pourcentage le plus important dans le mode nucléation soit représenté par les nss-SO₄ pour les échantillons de Mistral et sud fort plus pollués, ce qui confirme le fait que l'acide sulfurique est le composé le plus apte à nucléer.

Conclusion

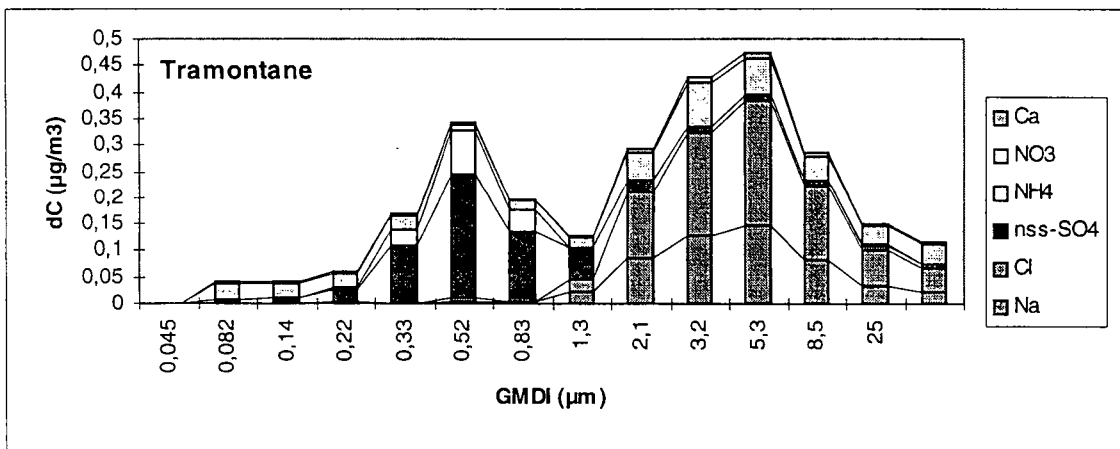
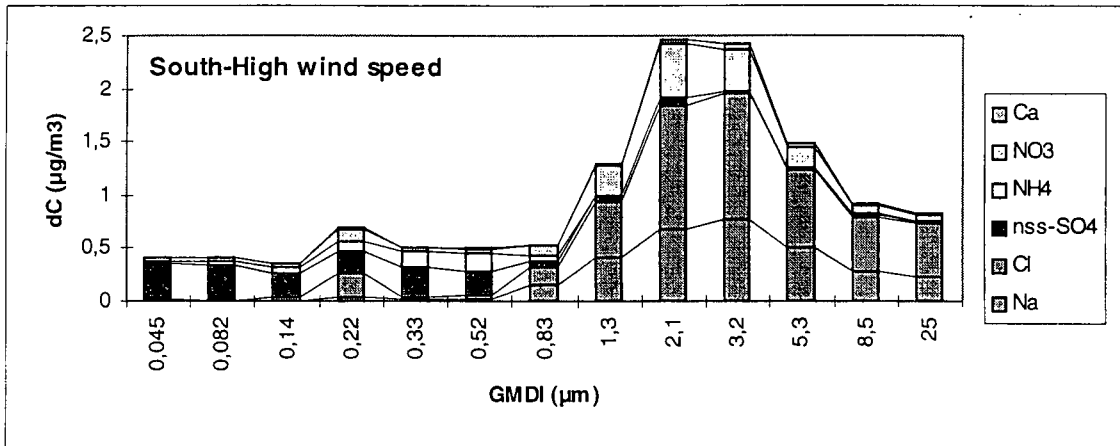
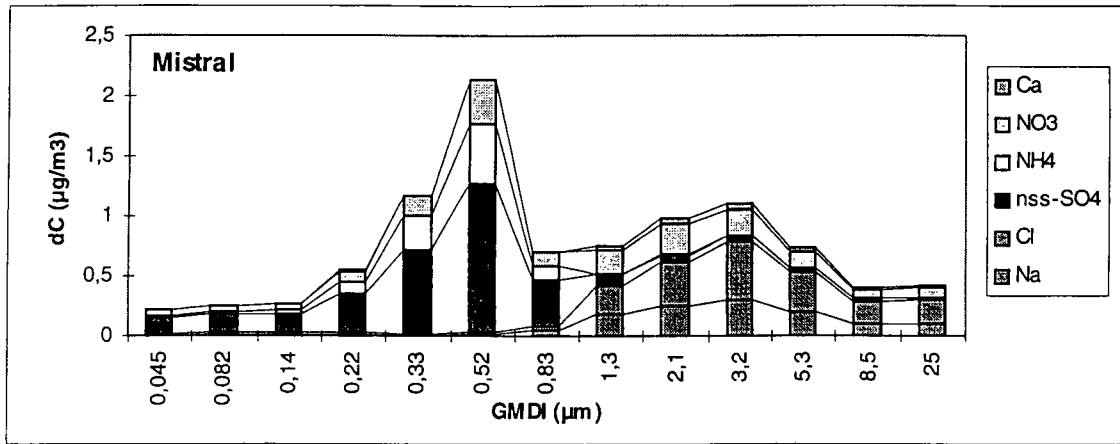
Ces travaux nous ont permis de confirmer certaines observations telle la localisation du sel dans les grosses particules et des sulfates dans les fines particules. Nous avons pu mettre en évidence une composante anthropique marquée, de manière apparemment constante jusqu'à 150 km des côtes au moins (nous n'avons pas observé de différence notable entre échantillons prélevés près de la côte et échantillons prélevés loin de la côte), illustrée par :

- la présence majoritaire de sulfates en excès d'origine non biologique dans le mode nucléation,
- la présence de sulfates et d'ammonium probablement liés dans le mode accumulation,
- la proportion importante de NO₃ pour les échantillons les moins pollués.

D'autre part, nous avons pu apporter quelques informations sur le mode de formation de l'aérosol fin marin en zone côtière. En effet, sachant que les particules de taille inférieure à 0.1 µm sont principalement constituées de nss-SO₄, NH₄ et NO₃, et que le MSA ne se trouve que dans le mode accumulation (0.3 µm), il semble que la nucléation homogène à partir des produits d'oxidation du DMS soit inhibée en zone côtière par la présence d'un aérosol de pollution préexistant.



Figures 8 a, b and c. Compositions moyennes en fractions massiques pour différentes situations.



Figures 9 a, b and c. compositions moyennes pour différentes situations, en concentrations massiques

BIBLIOGRAPHIE

R. J. Charlson , J. E. Lovelock, M. O. Andreae and S. G. Warren (1987), « oceanic phytoplankton, atmospheric sulfur, cloud albedo and climate », *Nature* Vol. 326, pp. 655-661.

W.A. Hoppel and Fick (1986), « Effect of non precipitating clouds on the aerosol size distribution in the marine boundary layer », *Geophys. Res. Lett.* 13, pp.125-128.

C.D. O'Dowd and M. H. Smith (1997), « Physicochemical Properties of Aerosols Over the Northeast Atlantic : Evidence for wind speed related submicron sea-salt aerosol production », *Journal of Geophysical Research* 98, pp.1137-1149.

J. P. Putaud et al (1993), « Dimethylsulfide, Aerosols, and Condensation Nuclei over the Tropical Northeastern Atlantic ocean », *Journal of Geophysical Research*, Vol. 98, No. D8, pp. 14,863-14,871.

MISE AU POINT DE METHODES D'ECHANTILLONNAGE ET D'ANALYSE DES BIOAEROSOLS

J.F. Fabriès⁽¹⁾, P. Görner⁽¹⁾, G. Greff-Mirguet⁽¹⁾, D. Ambroise⁽²⁾, I. Sibille⁽²⁾, P. Hartemann⁽²⁾

⁽¹⁾ INRS, Laboratoire de Métrologie de la Pollution par les Aérosols, BP 27, av. de Bourgogne, 54501 Vandoeuvre les Nancy.

⁽²⁾ Laboratoire d'Hygiène et de Recherche en Santé Publique, Faculté de Médecine, Université Henri Poincaré Nancy I, av. de la Forêt de Haye, 54500 Vandoeuvre les Nancy

Mots-clefs: bioaérosols/biocollecteurs/micro-organismes
Keywords: bioaerosols/bioaerosol samplers/micro-organisms

Résumé

On présente les premiers résultats obtenus dans le cadre d'une étude portant sur les méthodes d'échantillonnage et d'analyse des bioaérosols. La concentration en micro-organismes revivifiables (UFC/m³) a été mesurée par échantillonnage sur milieu nutritif, incubation à température constante, et dénombrement des colonies formées. Ces mesures ont été effectuées en secteur tertiaire et en milieu agricole. Plusieurs types d'échantillonneurs ont été utilisés en parallèle : impacteurs, appareil centrifuge, appareil à filtration. Quelques milieux gélosés et quelques conditions d'incubation ont été essayés.

Les premiers essais visaient à vérifier la bonne adéquation entre les précautions expérimentales (conditions de manipulation, décontamination entre deux prélèvements) et la qualité des résultats. Le choix des milieux nutritifs et des conditions de culture a ensuite été abordé. Dans l'état actuel de l'étude, deux milieux ont été sélectionnés : un milieu trypticase soja + actidione pour les bactéries, et un milieu enrichi au malt pour les moisissures. Pour ces deux milieux, la température d'incubation a été fixée à 22°C, avec un temps d'incubation maximal de 5 jours. Pour les micro-organismes revivifiables, les volumes d'air échantillonné ont été fixés entre 28 et 1000 dm³, suivant les niveaux de concentration rencontrés. Pour les échantillonneurs autres que l'impacteur Andersen, il est apparu que des volumes inférieurs à 100 dm³ ne fournissent pas de résultats exploitables, en raison des temps nécessaires à l'établissement du débit nominal et à l'arrêt des appareils, pour lesquels le mouvement de l'air est assuré par une turbine.

Les appareils utilisés n'étant pas tous étalonnés pendant ces premiers essais, les mesures effectuées ne permettaient pas de comparer les valeurs de concentration mesurées entre différents échantillonneurs. Cependant les résultats relatifs à un grand amphithéâtre, où l'on a essayé de minimiser les facteurs de variabilité, révèlent une bonne répétabilité. D'autre part, on a pu montrer que chaque appareil permettait de suivre de manière synchrone les variations de concentration dans l'air d'un local occupé par plusieurs personnes.

Par ailleurs la concentration de la flore bactérienne totale (bact./m³) a été mesurée en utilisant la microscopie à épifluorescence. Elle apparaît nettement supérieure à la concentration des bactéries revivifiables, confirmant ainsi les résultats de la littérature.

Abstract

The first results obtained within the framework of a general study about bioaerosol sampling and analysis are presented. Airborne micro-organisms were collected with several bioaerosol samplers onto trypticase soy agar + actidione for bacteria and malt extract agar for fungi. The samplers included sieve samplers, one centrifugal sampler, two 2-stage Andersen impactors, and one filtration device. They were used simultaneously in the same area. The collected micro-organisms were cultivated during 5 days at a temperature of 22 °C; colonies were then enumerated manually. The air volume that was sampled could be varied between 28 and 1000 dm³, according to the concentration levels. For samplers except the Andersen impactor, air volumes below 100 dm³ did not yield acceptable results, due to a poor precision. Above 100 dm³, the coefficient of variation relative to measured concentrations (CFU/m³) was close to 30 %. Every sampler used enabled to follow adequately variations of micro-organism concentration inside a room containing several persons.

The concentration of total bacteria (bact./m³) was also measured using epifluorescence microscopy. It was found to be largely higher than the viable micro-organism concentration, thus confirming literature results.

INTRODUCTION

Les micro-organismes contenus dans l'air, formant des aérosols biologiques ou bioaérosols, peuvent présenter pour les personnes présentes un certain nombre de risques infectieux, immuno-allergiques et toxiques [1-2]. Les risques liés aux agents biologiques en milieu professionnel sont précisés dans la directive européenne 90/679/CEE [3] complétée par la directive 93/88/CEE [4]. Les agents biologiques sont principalement les bactéries, les levures, les moisissures, ainsi que leurs toxines. Dans le cadre de l'hygiène du travail on ne parle pas (sauf cas particulier) de virus, problème abordé plutôt dans le cadre de l'hygiène et de l'épidémiologie publiques. L'exposition à des agents biologiques peut se produire à l'occasion de nombreuses activités [5-9]. L'évaluation de l'exposition des salariés n'est pas possible sans le développement d'outils métrologiques spécifiques [10-13], permettant de mesurer la concentration des agents biologiques dans l'air des lieux de travail. L'Institut National de Recherche et de Sécurité pour la Prévention des Accidents du Travail et des Maladies Professionnelles (INRS) a décidé d'entreprendre un programme de recherche intitulé: Bases métrologiques en vue de l'évaluation des risques biologiques liés aux micro-organismes dispersés dans l'air des lieux de travail. La recherche est menée en collaboration avec un laboratoire spécialisé en microbiologie, le Laboratoire d'Hygiène et de Recherche en Santé Publique (LHRSP) de la Faculté de Médecine de l'Université Henri Poincaré - Nancy I. Cette collaboration permet de réunir des compétences en physique et métrologie des aérosols et des compétences en microbiologie. Le but de la recherche est le développement et la qualification de techniques de mesurage des bioaérosols. Cet effort devrait aboutir à l'élaboration de protocoles d'utilisation de méthodes d'échantillonnage de micro-organismes dans les atmosphères des lieux de travail et d'analyses microbiologiques.

TECHNIQUES D'ECHANTILLONNAGE UTILISEES

De nombreux "biocollecteurs" ont fait leur apparition sur le marché des appareils d'échantillonnage d'air. La plupart d'entre eux collecte des germes "revivifiables" sur des surfaces gélosées par impaction ou par filtration. Ces techniques permettent de les mettre en culture, de les dénombrer en unités formant colonies (UFC) et éventuellement de les identifier.

Dans le cadre de notre recherche nous disposons des techniques d'échantillonnage présentées dans le Tableau 1 :

Tableau 1 *Echantillonneurs de germes revivifiables et leur débit*

CODE	NOM D'APPAREIL	FABRICANT	PRINCIPE	DEBIT D'AIR
IA2	Andersen 2 étages	Graseby-Andersen	Impaction, 2 étages	28.3 dm ³ .min ⁻¹
BIM	Bioimpacteur 100-08	Air-stratégie	Impaction, 1 étage	100 dm ³ .min ⁻¹
MAS	MAS 100	Merck	Impaction, 1 étage	100 dm ³ .min ⁻¹
SAS	SAS	Bioblock	Impaction, 1 étage	180 dm ³ .min ⁻¹
OMEGA	AirTest	LCB	Impaction, 1 étage	100 dm ³ .min ⁻¹
RCS	RCS +	Biotest AG	Impaction centrifuge	50 dm ³ .min ⁻¹
COS	Collectron MD 8	Sartorius	Filtration sur filtre gélatine	16 à 100 dm ³ .min ⁻¹

Les techniques par "impingement" constituent une alternative aux principes précédents. Elles permettent la dilution de l'échantillon avant l'ensemencement sur milieu de culture, mais présentent un certain nombre d'inconvénients, dont le risque de voir les micro-organismes se multiplier dans le liquide d'échantillonnage avant l'analyse. Ces dernières n'ont pas été testées pour l'instant dans le cadre de notre étude.

Pour déterminer la concentration en bactéries totales, des prélèvements d'air ont été réalisés sur des cassettes porte-filtre, équipées de membranes noires Nuclepore en polycarbonate, possédant des pores de $0,2 \mu\text{m}$. Le débit était fixé à $1 \text{ dm}^3 \text{ min}^{-1}$. Quatre prélèvements étaient effectués en parallèle à l'aide d'une seule pompe, chaque cassette étant associée à un col sonore permettant de stabiliser le débit. La durée des prélèvements était comprise entre 6 et 10 heures.

VERIFICATION DES CONDITIONS DE MANIPULATION

Dans un premier temps nous avons testé nos modes opératoires afin de nous assurer qu'aucune pollution microbienne provenant du matériel utilisé et de l'opérateur, ne contamine l'échantillon d'air prélevé. Pour ce faire, la manipulation complète des échantillons a été effectuée mais avec un volume d'air prélevé nul (échantillonnage blanc) dans un grand hall avec peu de présence humaine. Cette expérimentation a été conduite avant (appareillage décontaminé) et après des prélèvements réels (appareillage après utilisation.). L'incubation des géloses a montré une contamination faible, de l'ordre de 1 UFC (Unité Formant Colonie) par boîte de Pétri, que l'appareil ait été utilisé précédemment ou non. (Fig.1).

Ce résultat peut être considéré comme satisfaisant; cependant il reste à trouver si cette faible pollution provient de la manipulation elle même ou de l'air ambiant. Pour cela nous avons reconduit l'expérience à l'intérieur d'un Poste de Sécurité Microbiologique (PSM) avec un certain volume d'air échantillonné. Les résultats représentés en Fig.1 montrent la stérilité parfaite des géloses après prélèvement, ce qui témoigne à la fois de la pureté de l'air sous le PSM et du caractère non contaminant des manipulations. La faible contamination des "blancs" constatée dans un local commun provient donc probablement de l'atmosphère ambiante. La réalisation de "blancs" dans une atmosphère à haute concentration de micro-organismes (ferme laitière) montre un niveau de contamination de géloses plus élevé et confirme cette constatation (Fig.1).

CHOIX DES MILIEUX DE CULTURE, CONDITIONS D'INCUBATION

Les milieux de culture et les conditions d'incubation utilisés en échantillonnage microbiologique peuvent être multiples et dépendent du but recherché [7, 9]. Dans un premier temps notre objectif a été de déterminer la concentration globale des micro-organismes dans l'air, sans nécessairement procéder à leur identification. Pour ce faire, un milieu non sélectif du type trypticase soja est bien indiqué; il permet un bon développement des bactéries et des moisissures de l'environnement.

Cependant, afin de faciliter le comptage, nous avons décidé de prélever indépendamment les moisissures et les bactéries. Pour ces dernières un anti-fongique, l'actidione, est additionné au milieu de culture pour éviter que les colonies mycéliennes ne concurrencent les colonies bactériennes. Pour les moisissures un milieu enrichi au malt, propice à leur développement et peu favorable aux bactéries a été adopté [14].

Le milieu R2A étudié au LHRSP pour revivifier les bactéries de l'eau stressées a été également expérimenté. Les résultats des essais avec ces milieux sont présentés dans les Fig. 2 et 3. La Fig.2 montre que des résultats comparables peuvent être obtenus avec les milieux trypticase soja et R2A pour les bactéries. L'addition d'actidione ne gêne pas le

développement des bactéries mais améliore la détection et le comptage des colonies. Dans la Fig.3 on peut constater que le développement mycélien varie peu selon le milieu utilisé.

Pour le milieu trypticase soja+actidione, les dénombrements de plus de 5 jours d'incubation ne sont pas significativement supérieurs à ceux effectués à 5 jours (Fig.4). Une augmentation du nombre de colonies bactériennes est observée sur le milieu R2A jusqu'au dixième jour d'incubation, ce qui pourrait être attribué à la revivification des bactéries stressées. Cette croissance prolongée rend le milieu R2A significativement plus performant que le support trypticase soja+actidione à partir du dixième jour d'incubation.

L'augmentation de la durée d'incubation retarde l'obtention des résultats et rend plus difficile le dénombrement des colonies en raison de leur confluence. Pour ces raisons, les essais suivants ont été réalisés sur milieu trypticase soja+actidione et la durée d'incubation retenue est de 5 jours. L'expérimentation complémentaire avec le milieu R2A prometteur est actuellement en cours.

Dans la littérature, l'incubation des colonies microbiennes se fait à différentes températures [9, 15]. Soit par analogie avec les analyses de biologie humaine, soit pensant mettre en évidence des agents pathogènes, nombreux sont ceux qui réalisent une incubation à 37 °C. Pour les souches environnementales, des températures plus basses de 20 à 25 °C sont proposées. Dans nos essais, la température de 22 °C donne des numérations plus élevées tant pour les moisissures que pour les bactéries (Fig.5, 6).

OPTIMISATION DU VOLUME D'AIR ECHANTILLONNE

Dans une salle de grande taille et faiblement polluée, nous avons entrepris des expériences en vue de déterminer un volume d'air d'échantillonnage optimal. Nous avons choisi un amphithéâtre de 600 places sans présence humaine. La taille importante de la pièce devait assurer une concentration relativement stable, peu sensible à la présence des manipulateurs et aux mouvements d'air engendrés par les appareils d'échantillonnage. Nous avons prélevé successivement 28, 50 100 250 et 500 dm³ d'air à l'aide de cinq échantillonneurs biologiques employés simultanément. Les résultats en UFC/m³ sont présentés en Fig.7. Les concentrations mesurées pour les faibles volumes d'air échantillonné sont assez dispersées. Elles se stabilisent à partir de 100 dm³ d'air prélevé et n'évoluent plus guère avec l'augmentation du volume d'échantillonnage (Fig.7). La dispersion des résultats pour des volumes faibles peut être due d'une part à la non représentativité de l'échantillon et d'autre part aux problèmes techniques liés aux prélèvements de courte durée. La plupart des appareils étant équipés d'une turbine d'aspiration, la mesure du volume d'échantillonnage est rendue difficile par une montée en vitesse et un ralentissement progressif de la turbine. De plus, pendant ces deux phases le débit de l'appareil n'est pas optimal et son efficacité d'échantillonnage s'en trouve affectée.

En augmentant le volume d'air échantillonné au delà de 100 dm³, la concentration semble diminuer très légèrement. Ce phénomène pourrait être expliqué par des impacts multiples en face des orifices d'impaction ou par le stress des bactéries exposées aux écoulements de l'ordre de 10 à 20 m.s⁻¹ pendant 2 min 30 sec ou 5 min.

REPRODUCTIBILITE DE MESURAGE DE LA CONCENTRATION EN BACTERIES

Nous avons procédé à dix prélèvements consécutifs à l'aide de cinq échantillonneurs de type impacteur du Tableau 1 : MAS, IA2, BIM, RCS et SAS. Le volume d'échantillonnage a été fixé à 500 dm³ en raison d'une concentration présumée faible, dans une grande salle sans présence humaine. Cette série de prélèvements a été conduite une fois avec un milieu nutritif trypticase soja+actidione pour la culture et le dénombrement des bactéries et une deuxième

fois en utilisant un milieu enrichi au malt pour les moisissures. Les résultats moyens de dix mesures successives en UFC par m³ d'air sont présentés dans les Fig.8 et 9 avec leur écart-type. On peut observer que les écarts-types atteignent environ 30 % de la valeur de concentration mesurée par chaque appareil. Il est évident qu'on ne connaît pas la stabilité de la concentration ambiante et que sa variation est englobée dans les écarts-types des mesures. Les concentrations moyennes observées avec différents appareils se situent à l'intérieur d'une fourchette [20-40 UFC/m³] pour les bactéries et [5-8 UFC/m³] pour les moisissures.

SUIVI DE LA BIOCONTAMINATION D'UN LOCAL TERTIAIRE

La reproductibilité de mesurage étant relativement satisfaisante pour un échantillonnage biologique, il semblait intéressant d'observer si la sensibilité de la méthode était suffisante pour apprécier des variations de la concentration ambiante. Pour cela, nous avons mesuré l'évolution dans le temps de la concentration bactérienne dans une salle de cours de trente places occupée par des étudiants. Les concentrations ambiantes ont été mesurées pendant une journée par période d'une heure à l'aide de quatre échantillonneurs (Fig.9). Chaque échantillonnage a été répété trois fois à un volume d'air de 100 dm³. La concentration varie entre 10 et 1000 UFC/m³ et dépend fortement de la durée d'occupation. La même expérience a été reconduite pendant quatre jours successifs de la semaine à raison de trois échantillonnages par jour (Fig.10.). L'ordre de grandeur et l'évolution pendant la journée ont été confirmés. On peut observer que les concentrations mesurées simultanément par des appareils différents varient de manière similaire (Fig.9 et 10).

RESULTATS DU MESURAGE DE LA FLORE BACTERIENNE TOTALE

La concentration de la flore bactérienne totale a été mesurée à partir de l'échantillonnage sur filtres Nuclepore noirs, comme indiqué dans un paragraphe précédent, et observation directe des filtres à l'aide d'un microscope à épifluorescence après marquage des bactéries par le fluorochrome DAPI (4',6-diamidino-2-phenylindole). Des mesures ont été pratiquées dans un hall et dans un laboratoire inoccupé. Les niveaux mesurés étaient inférieurs à 1000 bact./m³, alors que les niveaux de concentration en bactéries revivifiables correspondants étaient de l'ordre de 30 à 50 UFC/m³. D'autres mesures ont été effectuées à l'intérieur d'une ferme laitière, dont les résultats sont regroupés dans le Tableau 2. On peut constater que la concentration des bactéries totales est également nettement supérieure à celle des bactéries revivifiables. De tels écarts entre les deux types de mesurage ont déjà été rapportés dans la littérature [16].

L'écart-type relatif à la concentration des bactéries totales est assez élevé, en raison de l'énumération des bactéries parfois regroupées sous forme d'agrégats suivant un nombre limité de champs d'observation. Par ailleurs le niveau élevé de germes présents rend très délicate la méthode par prélèvement sur gélose suivi de la mise en culture, nécessitant des temps de prélèvement très courts par rapport aux temps de mise en régime nominal des appareils.

Tableau 2 Niveaux moyens de concentration en bactéries totales (épifluorescence) et en bactéries revivifiables (culture sur trypticase soja agar+actidione) dans une ferme laitière.

Série	Concentration bactéries totales (bact./m ³)	Ecart-type (bact./m ³)	Concentration bactéries revivifiables (UFC/m ³)
1	15 (10 ⁶)	19 (10 ⁶)	> 15 (10 ³)
2	6,4 (10 ⁶)	2,8 (10 ⁶)	> 15 (10 ³)
3	23,2 (10 ⁶)	9,3 (10 ⁶)	> 25 (10 ³)

CONCLUSION

Les résultats d'une première étape de l'étude d'échantillonnage des bioaérosols ont permis :

- de maîtriser la manipulation des dispositifs de prélèvement sans une contamination secondaire des supports d'échantillonnage,
- de sélectionner les milieux nutritifs pour les bactéries et des moisissures environnementales et de déterminer les conditions d'incubation (22 °C, 5 jours),
- de démontrer l'importance du volume d'air prélevé. Le volume d'échantillonnage ne devrait pas être inférieur à 100 dm³, ce qui pourrait poser problème lors de l'échantillonnage dans des milieux à forte concentration microbienne.
- de prouver que la reproductibilité des mesurages de la concentration microbienne permet de mesurer l'évolution de la concentration dans le temps en fonction de la présence humaine dans une salle.

Les écarts entre les techniques utilisées se sont avérés relativement constants. Il peuvent être dus aux imprécisions en débits et en volumes d'air échantillonné. D'autre part l'efficacité physique d'échantillonnage en fonction du diamètre aérodynamique de particules n'est pas connue pour la plupart de ces appareils [12]. Il reste une dernière inconnue qui est l'efficacité "biologique" de l'ensemble prélèvement – analyse en matière de survie et de capacité de reproduction des micro-organismes. Ces paramètres doivent être étudiés dans l'avenir pour améliorer l'efficacité et la représentativité de l'échantillonnage microbiologique dans l'air.

Une attention particulière doit être portée au développement de la technique d'échantillonnage et d'observation directe par microscopie à épifluorescence, qui permet d'une part le dénombrement des bactéries totales, et d'autre part celui des bactéries dont la chaîne respiratoire est encore active mais qui ne sont plus capables de se reproduire (marquage par fluorochrome CTC : chlorure de 5-cyano-2,3-ditoly). Les micro-organismes peuvent en effet être stressés ou dénaturés par le processus d'échantillonnage. D'une manière générale les techniques de comptage direct des micro-organismes semblent bien adaptées aux environnements très contaminés [17-18].

REFERENCES

- [1] Leprince, A. (1997) Les agents biologiques – Introduction. *Arch. Mal. Prof.*, **58**, 309-311.
- [2] Perdrix, A., Pleven, C. Clavel, T., Risques biologiques non infectieux. *Arch. Mal. Prof.*, **58**, 328-332.
- [3] CEE (1990) Directive n° 90/679/CEE du conseil du 26 novembre 1990 concernant la protection des travailleurs contre les risques liés à l'exposition à des agents biologiques au travail. *Journal officiel des Communautés européennes*, n° L.374 du 31 déc. 1990, pp. 1-12.
- [4] CEE (1993) Directive n° 93/88/CEE du conseil du 12 octobre 1993 modifiant la directive 90/679/CEE. *Journal officiel des Communautés européennes*, n° L.268/71 du 29 oct. 1993. Annexe III de la directive n° 90/679/CEE.
- [5] Würtz, H., Breum, N.O. (1997) Exposure to microorganisms during manual sorting of recyclable paper of different quality. *Ann. Agric. Environ. Med.*, **4**, 129-135.
- [6] Pillai, S.D., Widmer, K.W., Dowd, S.E., Ricke, S.C. (1996) Occurrence of airborne bacteria and pathogen indicators during land application of sewage sludge. *Appl. Environ. Microbiol.*, **62**, 296-299.
- [7] Heida, H., Bartman, F., Van der Zee, S.C. (1995) Occupational exposure and indoor air quality monitoring in a composting facility. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, **56**, 39-43.
- [8] Reinthaler, F.F., Marth, E., Eibel, U., Enayat, U., Feenstra, O., Friedl, H., Köck, M., Pichler-Semmelrock, F.P., Pridnig, G., Schlacher, R. (1997) The assessment of airborne microorganisms in large-scale composting facilities and their immediate surroundings. *Aerobiologia*, **13**, 167-175.

- [9] Cormier, Y., Tremblay, G. Meriaux, A., Brochu, G., Lavoie, J. (1990) Airborne microbial contents in two types of swine confinement buildings in Quebec. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, **51**, 304-309.
- [10] Crook, B., Sherwood-Higham, J.L. (1997) Sampling and assay of bioaerosols in the work environment. *J. Aerosol Sci.*, **28**, 417-426.
- [11] Griffiths, W.D., Stewart, I.W., Fütter, S.J., Upton, S.L., Mark, D. (1997) The development of sampling methods for the assessment of indoor bioaerosols. *J. Aerosol Sci.*, **28**, 437-457.
- [12] Griffiths, W.D., DeCosemo, G.A.L. (1994) The assessment of bioaerosols : a critical review. *J. Aerosol Sci.*, **25**, 1425-1458.
- [13] Macher, J.M., Willeke, K. (1992) Performance criteria for bioaerosol samplers. *J. Aerosol Sci.*, **23**, Suppl. 1, S647-S650.
- [14] Tanner, R.S. (1997) Cultivation of bacteria and fungi. In: *Manual of Environmental Microbiology* (C.J. Hurst *et al.*, eds.), American Society for Microbiology, ASM Press, Washington D.C., pp. 52-60.
- [15] Martinez, K.F., Seitz, T.A., Lonon, M.K., Weber, A.M. (1995) Application of culturable sampling methods for the assessment of workplace concentrations of bioaerosols. *Inhalation. Toxicol.*, **7**, 947-959.
- [16] Nielsen, E.M., Breum, N.O., Nielsen, B.H., Würtz, H., Poulsen, O.M., Midtgaard, U. (1997) Bioaerosol exposure in waste collection: a comparative study on the significance of collection equipment, type of waste and seasonal variation. *Ann. Occup. Hyg.*, **41**, 325-344.
- [17] Eduard, W., Lacey, J., Karlsson, K., Palmgren, U., Ström, G., Blomquist, G. (1990) Evaluation of methods for enumerating microorganisms in filter samples from highly contaminated occupational environments. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, **51**, 427-436.
- [18] Eduard, W., Heederik, D. (1998) Methods for quantitative assessment of airborne levels of noninfectious microorganisms in highly contaminated work environments. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, **59**, 113-127.

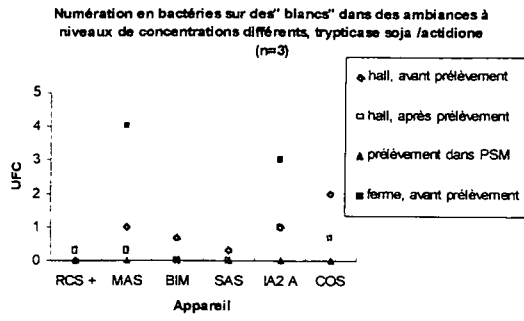


Fig. 1

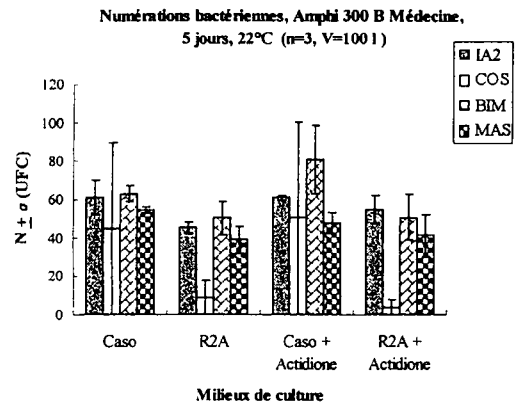


Fig. 2

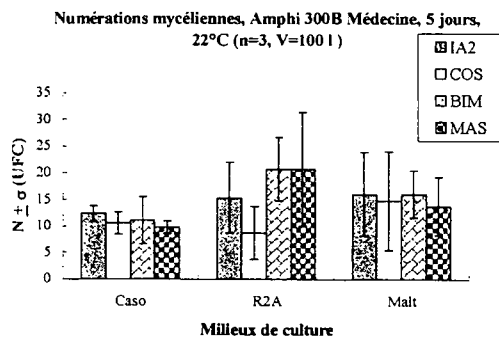


Fig. 3

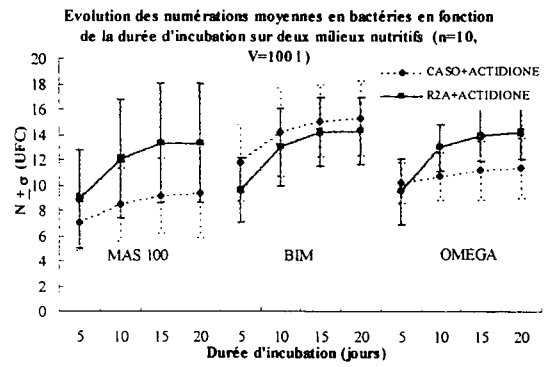


Fig. 4

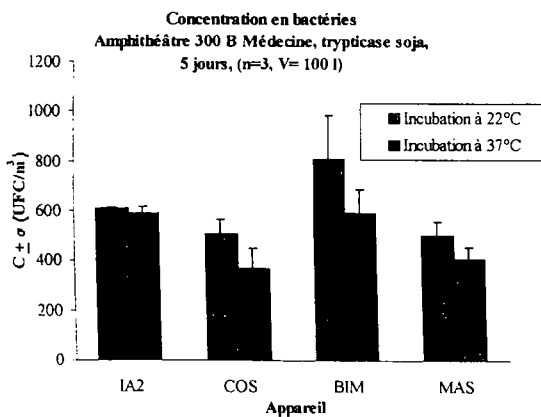


Fig. 5

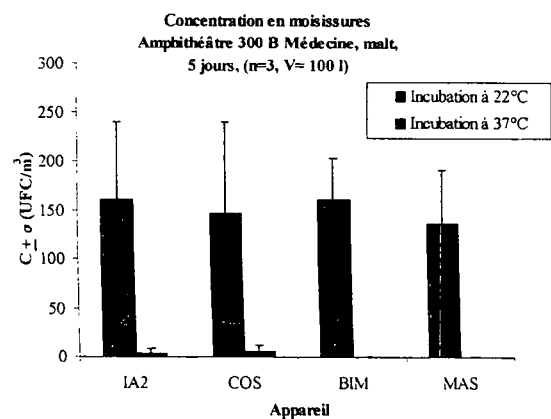


Fig. 6

Evolution de la concentration en bactéries en fonction du volume d'air échantillonné Amphi 600B médecine, trypticase soja, 5 jours, 22°C (n=3)

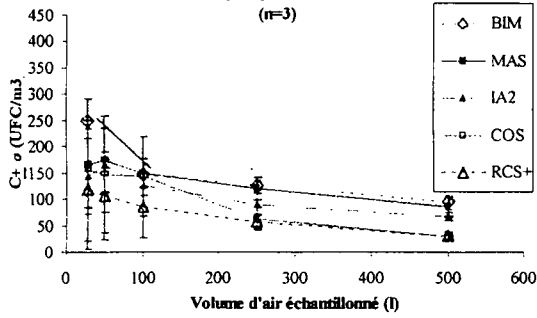


Fig. 7

Concentration en bactéries Amphithéâtre 600 A Médecine, trypticase soja, 22°C, 5 jours, (n=10, V=500 l)

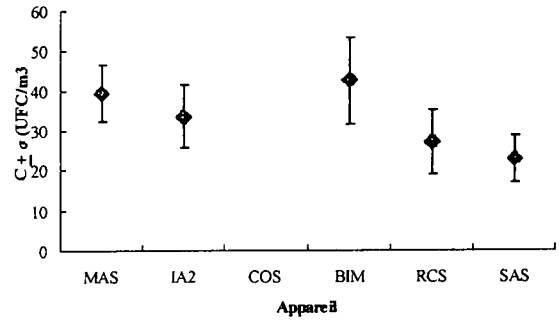


Fig. 8

Concentration en moisissures Amphithéâtre 600 A Médecine, trypticase soja, 22°C, 5 jours, (n=10, V= 500 l)

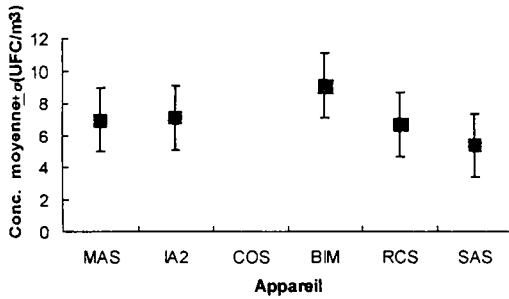


Fig. 9

Evolution de la concentration moyenne en bactéries sur une journée dans une salle de cours du LHRSP occupée par 30 étudiants (n=3, V=100 l)

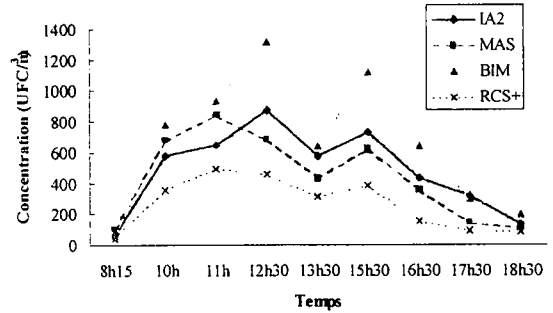


Fig. 10

Evolution de la concentration moyenne en bactéries sur quatre jours dans une salle de cours du LHRSP occupée par 30 étudiants (n=3, V=100 l)

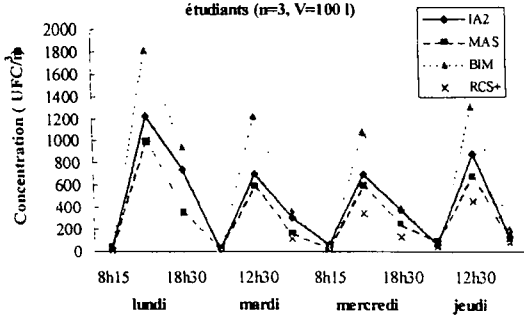


Fig. 11

Survie d'un aérosol de *Pseudomonas fluorescens* et *Enterococcus faecalis* sur des surfaces inertes

E.Robine^{1,3}, M.Attoui², D.Dérangère³, R.Moreau¹

¹ Université Paris XII, UFR Sciences, Microbiologie appliquée,
Avenue du général de Gaulle, F-94010 Creteil.

² Laboratoire de Physique des Aérosols, Université Paris XII.

³ Centre Scientifique et Technique du Bâtiment,
84 avenue J.Jaurès, F-77421 Marne la vallée cedex 02.

RESUME

La survie des micro-organismes dans les environnements intérieurs est liée en partie à la colonisation des surfaces de matériaux. 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.

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. Cependant, l'utilisation de matériaux adaptés à l'usage devient une préoccupation notamment du secteur hospitalier, dans le cadre de la prévention des infections nosocomiales. Actuellement, seules des spécificités relatives à l'usure, au poinçonnement, à l'étanchéité et à la résistance chimique sont requises pour certains produits de construction. Une évaluation hygiénique complète de ces produits ne fait l'objet d'aucun texte de référence.

L'objectif du travail présenté vise l'étude de la survie de bactéries aéropoortées sur trois supports inertes (verre, polychlorure de vinyle, acier inoxydable). Deux bactéries de l'Institut Pasteur ont été sélectionnées : *Enterococcus faecalis* 10.30.15 et *Pseudomonas fluorescens* 56.90. Nous avons observé que la létalité de l'aérosol bactérien augmentait proportionnellement avec l'humidité relative du milieu, le bacille à Gram négatif apparaissant plus fragile que le coque. Une différence significative du taux de survie est mesurée selon les supports testés, la létalité la plus importante étant observée sur les PVC.

INTRODUCTION

De nombreuses particules biologiques aéropoortées 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 [1][2].

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 adhésion et une croissance microbienne dans des conditions environnementales données est méconnus.

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. Au niveau de ces supports solides, leur nature physico-chimique peut conditionner les phénomènes de fixation et de survie des micro-organismes. De part les éléments nutritifs qu'ils procurent (constitutifs et / ou encrassement), les produits de construction et de décoration peuvent devenir des milieux de choix pour la croissance de certains 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.

L'utilisation de matériaux adaptés à l'usage devient une préoccupation, du secteur hospitalier avec la prévention des infections nosocomiales et du secteur de l'agroalimentaire avec le souci de contrôler la contamination de l'air et des surfaces pendant les différentes phases de l'élaboration des produits alimentaires.

Actuellement, seules des spécificités relatives à l'usure, au poinçonnement, à l'étanchéité et à la résistance chimique sont requises pour certains produits de construction. Une évaluation hygiénique complète de ces produits ne fait l'objet d'aucun texte de référence. La spécificité des matériaux de construction à induire et / ou à favoriser une prolifération microbienne et donc à jouer un rôle dans l'aérobiocontamination (avec par exemple la remise en suspension dans l'air de particules biologiques) est méconnue et demande à être caractérisée.

MATÉRIELS ET MÉTHODES

CARACTERISTIQUES DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL D'AEROBIOCONTAMINATION DES SURFACES

DESCRIPTION DU MONTAGE

Le montage d'aérobiocontamination est constitué par un nébuliseur Collison 3 jets (A) 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 7.9 dm³/min avec une vitesse d'air de 1.34 m/s et un débit d'eau de 10.6 ml/h. L'air comprimé est préalablement purifié par une chaîne de filtration (7) composé par un filtre coalescent, un filtre charbon et un filtre à Très Haute Efficacité (THE).

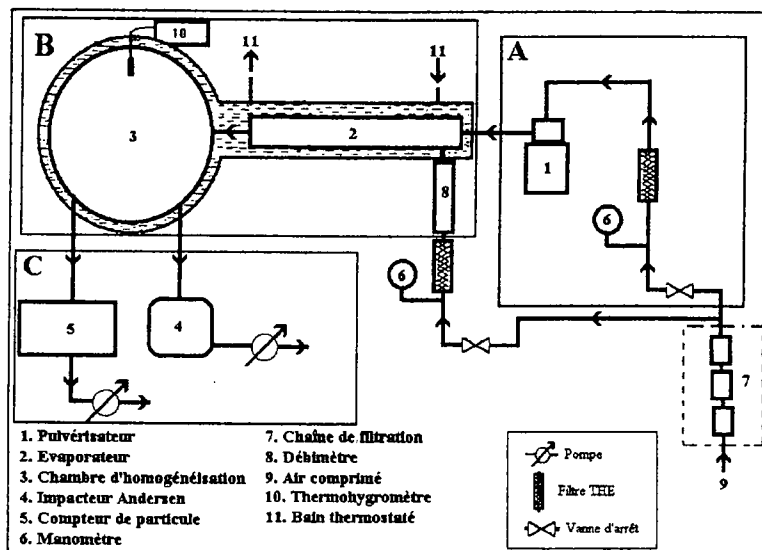


Schéma 1 : Schéma du montage d'aérocontamination

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 est utilisé pour contaminer la surface des 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) [4].

LES MICRO-ORGANISMES UTILISES

Les essais ont été réalisés avec deux souches de Collection de l'Institut Pasteur *Pseudomonas fluorescens* 56.90 et *Enterococcus faecalis* 10.30.15, 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 28°C pour le bacille et 24 heures à 37°C pour le coque. 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.

EVALUATION DE LA SURVIE BACTERIENNE PAR OBSERVATION DIRECTE EN MICROSCOPIE

MICROSCOPIE A EPIFLUORESCENCE

Les échantillons bactériens marqués sont observés à l'aide d'un microscope à épifluorescence (*Axioscop de la société Zeiss*) qui utilise une lampe à mercure de 50W. Deux filtres sont utilisés, le filtre N°2 (excitation 365 nm, émission 420 nm) et le filtre N°9 (excitation 450-490 nm, émission 520 nm). Les observations sont réalisées avec un objectif CP Achromplan 100x/1.25 en immersion, 40X et 10 à sec (*Zeiss*).

ANALYSE D'IMAGES

Le dénombrement des cellules bactériennes est réalisé de façon automatique par un système d'analyse d'images (*société Microvision*). Ce système se compose (Schéma 2) :

- d'un microscope à épifluorescence (*Axioscop, Zeiss*),
- d'une caméra noir et blanc COHU 4912, 560 lignes TV, capteur CCD 1/2 sensibilité 0.016 lux

- d'une Caméra couleur JVC haute résolution 700 lignes avec trois capteurs CCD 2/3 sensibilité 15 lux, d'un kit d'intégration d'images ST-MSP55B qui permet d'augmenter la sensibilité de la caméra par accumulation de charge sur les capteurs, tout en restituant 25 ou 50 images secondes,
- d'une télécommande de la caméra modèle JVC RM-LP55,
- d'un micro-ordinateur PC HP90v1 sur lequel est installé deux logiciels d'analyses d'images développés pour nos applications (Colonia et Histolab, *Société Microvision*).

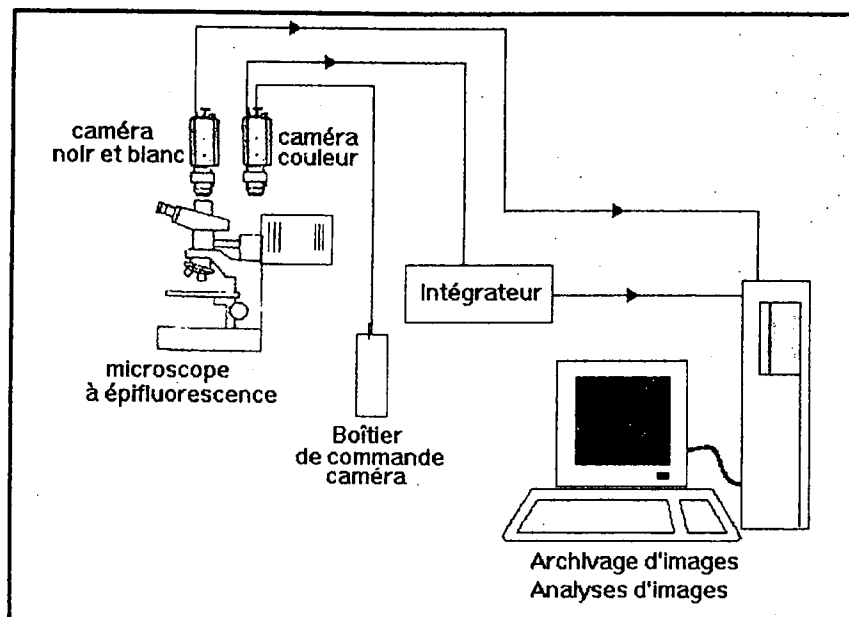


Schéma 2 : système d'analyses d'images

L'image est numérisée en 256 niveaux de gris ou en couleur selon le fluorochrome utilisé. Elle est stockée et archivée avant analyse. L'image est traitée par une technique de seuillage, selon les niveaux de gris ou de couleurs caractéristiques des cellules bactériennes. Les cellules bactériennes sont individualisées par traitement informatique avant comptage sur une surface étalonnée selon l'objectif et la caméra utilisée (caméra noir et blanc 0.08119 $\mu\text{m}/\text{pixel}$ et caméra couleur 0.1123 $\mu\text{m}/\text{pixel}$ à l'objectif X100). Lorsque la contamination bactérienne est dense, le système ne peut procéder à la séparation des cellules. Alors une mesure de surface est opérée, une bactérie de référence est désignée au système qui calcule le nombre de cellules par cm^2 observé.

MARQUAGE FLUOROCHROMIQUE DE LA FLORE TOTALE

Les cellules sont colorées pendant 15 minutes avec une solution de 4',6-Diamidino-2-phenyl-indole à une concentration finale de 0.1 g/l (DAPI, *Société Sigma-Aldrich, St Quentin Fallavier, France*). Ce fluorochrome se fixe préférentiellement sur les bases A-T de l'ADN bactérien. La totalité des cellules bactériennes fluorescent, "mortes et vivantes", après excitation par la lampe à mercure du microscope à la longueur d'onde de 365 nanomètres.

ETUDE DE L'ACTIVITE METABOLIQUE

Les bactéries fixées sur la surface inerte sont mises en contact avec le 5-cyano 2-3 ditolyl tetrazolium chloride (CTC, *société Polysciences Europe GmbH*). Le CTC est un monotétrazolium dont la réduction entraîne la formation d'un sel de formazan. Les micro-organismes métaboliquement actifs réduisent ce composé au niveau de leur chaîne respiratoire en formant un cristal de formazan visible au microscope à épifluorescence. Le cristal obtenu se forme dans les régions intracellulaires des bactéries. Il est excitable par une lumière U.V. de 450 nm avec une émission à 630 nm. Une coloration au DAPI est ensuite effectuée, elle permet d'évaluer la totalité des micro-organismes sur la surface. Le pourcentage des cellules métaboliquement actives par rapport à la population totale est évalué par comptage assisté par le système informatique. Sur un même champ microscopique, les cristaux intracellulaires et les cellules colorées au DAPI sont dénombrés. Les résultats sont exprimés en % de bactéries CTC(+):

$$\% \text{ de bactéries CTC(+)} = \left(\frac{N_{\text{cristaux}}}{N_{\text{Dapi}}} \right) \times 100$$

EVALUATION DE L'INTEGRITE MEMBRANAIRE

L'évaluation de l'intégrité de la membrane cytoplasmique de la cellule bactérienne est visualisée par passage passif de deux marqueurs fluorescents (KIT baclight, colorants A et B de la *Societe Molecular Probe Inc*), ayant respectivement une bande spectrale de 510 à 540 nanomètres (réémission dans le vert, colorant A) et 620 à 650 nanomètre (réémission dans le rouge colorant B). Le marquage en vert des bactéries met en évidence l'intégrité de la membrane cytoplasmique alors que la fluorescence rouge est un signe d'altération de celle-ci. La coloration est effectuée par passage successif des deux colorants A puis B à la concentration finale de 3 µl/ml (1.67 mMol). L'incubation se fait pendant 1 minute à température ambiante pour chaque fluorochrome.

OBSERVATION AU MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE

Nous avons utilisé un microscope électronique à balayage de marque JEOL 5600 LV (low Vacuum) couplé à une microanalyse OXFORD. Ce microscope fonctionne en pression variable et permet une observation directe des échantillons en vide primaire (non poussé) ou en vide secondaire après métallisation des surfaces (métalliseur Jeol JFC-1300 auto fine coater, société JEOL)[5][6].

RESULTATS - DISCUSSION

La survie des bactéries est réduite dans les environnements humides. Une inactivation totale peut même être observée en 30 minutes à une humidité relative proche de 85 % (25°C) (figure 1).

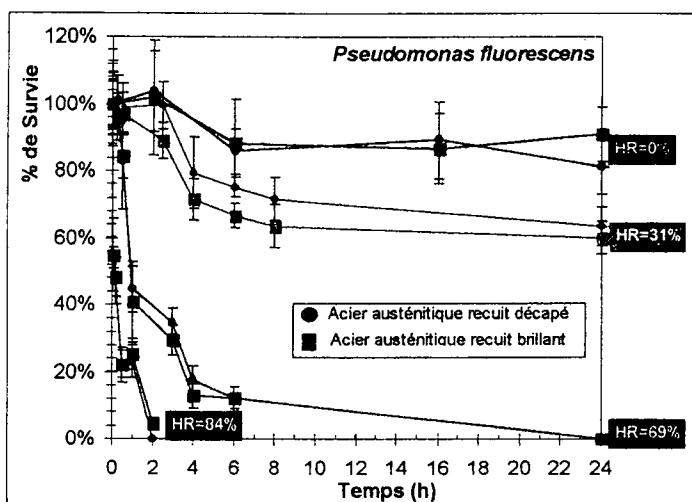


Figure 1 : Cinétique de survie d'un aérosol de *Pseudomonas fluorescens* fixé sur deux aciers austénitiques de relief différents selon l'humidité relative du milieu (0, 31, 69 et 84% à 25°C).

En suspension dans l'air, les cellules bactériennes perdent très rapidement l'eau qu'elles renferment (< 1 seconde). C'est dans cet état qu'elles se fixent sur les surfaces. En raison de leur nature chimique (protéique, polysaccharidique et lipidique) les bactéries peuvent être considérées comme des corps hygroscopiques, dont le taux de dessiccation évolue en fonction de l'humidité relative du milieu (3). Fixées sur les supports et placées dans un environnement humide, elles se rechargent rapidement en eau. Cette réhydratation engendre un changement conformationnel des structures cellulaires, qui a pour conséquence de réduire fortement leur activité (photographie 1). En outre, selon le type de micro-organisme, bacille à Gram négatif ou coque à Gram positif, le choc osmotique lié à la réhydratation a des conséquences plus ou moins létales (figure 2).

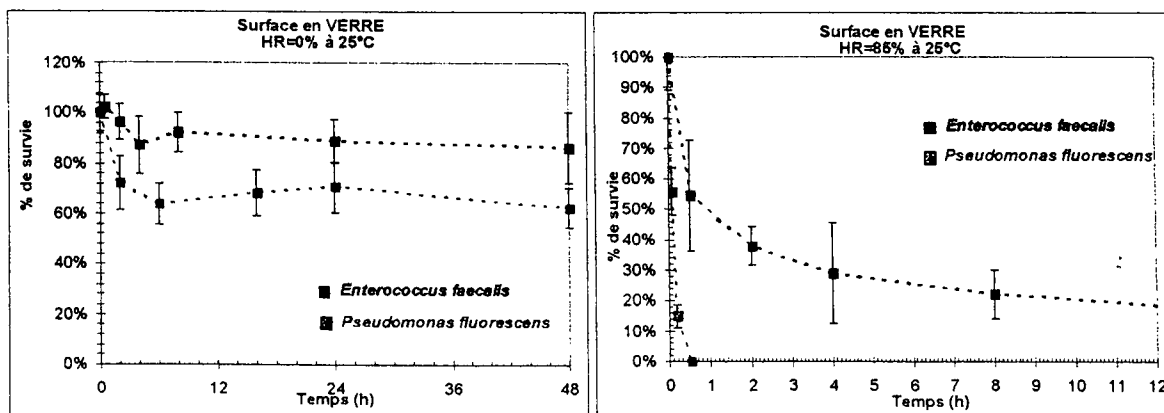
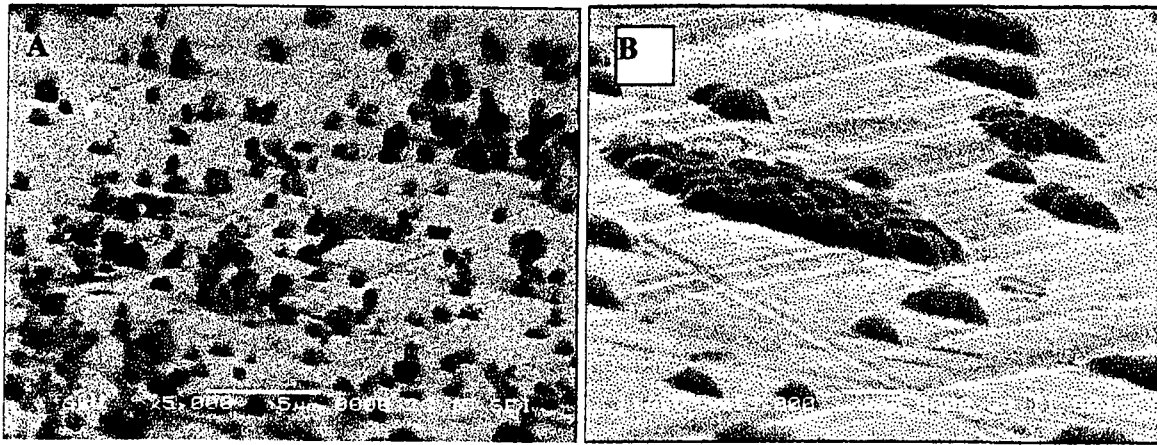


Figure 2 : Cinétique de survie de deux aérosols de *Pseudomonas fluorescens* et *Enterococcus faecalis* fixés sur une surface en verre selon l'humidité relative du milieu (proche de 0% et 85% à 25°C).



Photographie 1 : Observation au MEB d'un aérosol d'*Enterococcus faecalis* fixé sur une surface en acier inoxydable après 24 heures à une humidité relative de 0% à 25°C (A) et après 24 heures à une humidité relative de 100 % à 25°C (B)

Dans des environnements secs, afin de s'affranchir des effets de l'humidité, on observe un effet significatif du matériau sur la survie des populations bactériennes. La mortalité la plus importante est mesurée sur la surface en PVC, puis de façon décroissante sur le verre et l'acier (figure 3).

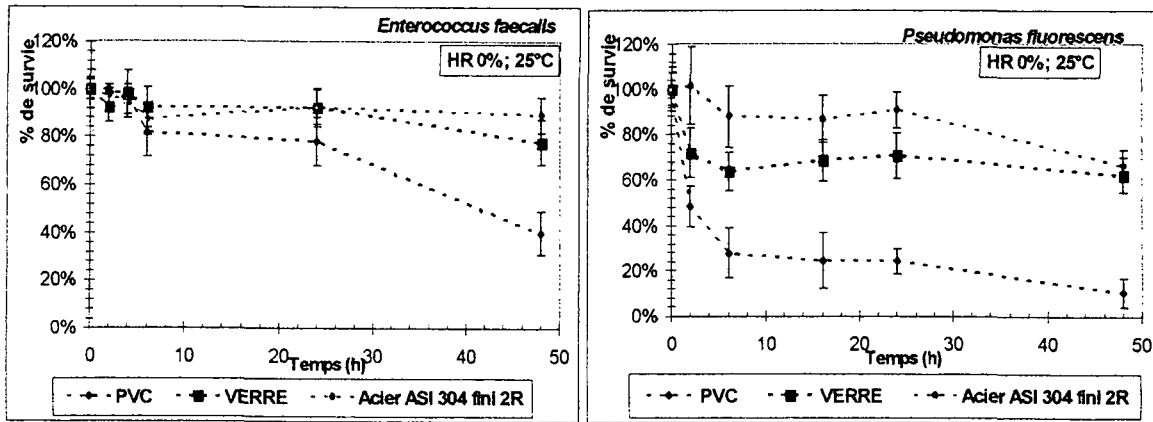
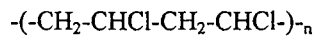


Figure 3 : Cinétique de survie de deux aérosols d'*Enterococcus faecalis* et *Pseudomonas fluorescens* fixés sur différentes surfaces (acier inoxydable, verre et PVC).

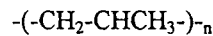
La mortalité mesurée sur les surfaces PVC résulte sans doute de la forte réactivité de ce polymère, avec la présence de sites oxydants, de dégagement d'acide chlorhydrique (HCl) et la présence d'additifs.

En effet, le PVC est le siège de réactions de dégradation amorcées dès sa chaîne de fabrication : des réactions d'oxydation similaires à celles des polyoléfines et des réactions d'élimination d'HCl permises par l'alternance régulière des motifs CH₂ et CHCl dans l'unité monomère.



Les réactions d'oxydation entraînent la formation d'espèces oxydées hautement réactives notamment avec la paroi des bactéries à Gram négatif : hydroperoxyde (P-OOH), hydroxyles (P-OH) et de carbonyles (PP'C=O).

Un essai complémentaire a été réalisé avec un support en polypropylène (PP) :



Ce polymère, utilisé puisqu'il est beaucoup plus stable que le PVC, ne devient réactif qu'à de hautes températures. Nous avons contaminé des supports PVC et PP à l'aide d'un aérosol d'*Enterococcus faecalis* calibré. Puis nous avons évalué le taux de survie des bactéries incubées sur ces différentes surfaces et observé un effet significatif du PVC sur la survie des bactéries, avec une inactivation de l'ordre de 90% de la population initiale après 96 heures à une HR proche de 0 % à 25°C. En revanche, sur le support PP aucune mortalité significative (figure 4) n'a été constaté.

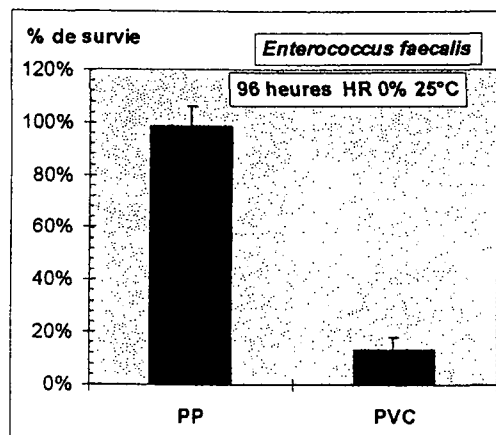


Figure 4 : Mesure de la survie d'un aérosol bactérien d'*Enterococcus faecalis* fixé sur une surface en polypropylène (PP) et polychlorure de vinyle (PVC) après 96 heures d'incubation à une humidité relative proche de 0 % à 25°C.

Ce résultat conforte notre hypothèse de la létalité occasionnée par la structure polymérique réactive du PVC. Dans l'air des mécanismes d'inactivation semblables ont été observés avec l'effet des polluants de l'air extérieur (open air factor) [1]. Les différentes cinétiques réalisées sur la surface en verre montrent une diminution notable de la survie par rapport à l'acier. Contrairement à l'acier employé, le verre possède une couche d'eau adsorbée à sa surface, susceptible d'avoir une action dépressive sur les cellules bactériennes. Au contraire, la surface d'acier paraît inerte vis à vis des germes. Sur une surface d'acier sèche et en milieu sec, les cellules bactériennes peuvent rester dans un état quiescent pendant plusieurs semaines en attendant des conditions plus propices à leur développement.

CONCLUSION

La lutte engagée contre ces particules biologiques parfois indésirables demande une connaissance approfondie des mécanismes qui vont permettre ou non la colonisation d'un nouvel habitat. Les étapes sur lesquelles nous avons le plus progressé durant ces dernières années sont l'adhésion et la survie. Nos recherches ont mis en évidence un certain nombre de facteurs qui influencent l'adhésion et la survie des bactéries sur les surfaces. Il apparaît clairement que la nature et le relief des supports d'accueil des bactéries influencent fortement la fixation et la survie des germes. D'un point de vue pratique, en matière de contrôle de l'hygiène en quelque milieu que ce soit, il serait nécessaire d'engager une réflexion sur l'utilisation de supports moins "réceptifs" avant de parler de "nettoyabilité" des matériaux. L'environnement immédiat des microorganismes est également très important, puisque les milieux humides favorisent l'adhésion des cellules aéroportées et qu'inversement l'humidité a une action létale sur ces cellules si les supports sont exempts de nutriments. En revanche, dans les mêmes conditions, la déshydratation ou plus généralement les milieux secs augmentent jusqu'à plusieurs semaines la survie des cellules immobilisées. L'apport ultérieur de nutriments, même en très faibles quantités, et l'augmentation de l'humidité relative suffisent à assurer la reviviscence de ces microorganismes quiescents.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

1. FLANNIGAN, B., (1992), "Indoor Microbiological pollutants - Sources, species, characterization and evaluation". KNÖPPEL H., WOLKOFF P. Editors, Chemical, microbiological, health and comfort aspects of Indoor Air Quality - State of the art in SBS, Kluwer Academic Publishers, Vol. 4, pp. 73-98.
2. VERHOEFF, A., FLANNIGAN, B., GRAVESEN, S., MOUILLESEAU, A., NEVALAINEN, A., COLOMBI, A., WANNER, H.U., PAPADAKCS, J., SEIDEL, K., (1993), Biological Particles in Indoor Environments, Report n°12 European collaborative action, indoor air quality and its impact on man.
3. COX, C.S., (1989). "Airborne bacteria and viruses", *Sci. Prog. Oxf.*, 73, pp.469-500.
4. ROBINE, E., ATTOUI, M., DERANGERE, D., MOREAU, R., (1996), "Elaboration d'un protocole expérimental de contamination des matériaux de construction par un aérosol bactérien". *ASFERA* - Université Paris XII, 12^{ème} journées d'études sur les aérosols, 4-5 décembre, Paris.
5. ROBINE, E., ATTOUI, M., DERANGERE, D., MOREAU, R., (1997), "Elaboration d'une méthodologie d'évaluation d'une aérobiocontamination de surface: survie d'un aérosol de *Pseudomonas fluorescens* déposé sur une surface inerte". *ASFERA*, 13^{ème} journées nationales de décembre, Paris.
6. ROBINE E., D. DERANGERE, M. ATTOUI, R. MOREAU, (1998), "Aerobiocontamination testing procedure for evaluation of building materials and surfaces hygienic properties", *Journal of aerosol Science*, Vol 29, suppl 2, pp 551-553.

DETERMINATION DE L'EFFICACITE FRACTIONNELLE DE SEPARATION D'UN DEPOUSSIÉREUR POUR POUSSIÉRES DE BOIS PAR TRAÇAGE FLUORESCENT

D. Bémer *, R. Régnier *, S. Callé **

* Institut National de Recherche et de Sécurité, INRS, Avenue de Bourgogne – BP 27
54501 Vandoeuvre Cedex

** Laboratoire des Sciences du Génie Chimique, LSGC-CNRS-ENSIC, 1 rue Grandville – BP 451
54001 Nancy Cedex

Mots clés : Aerosol, Filtration, Efficacité de séparation, Traceur, Fluorescence

1. Introduction

Cette étude, réalisée à l'INRS, s'inscrit dans le cadre de la prévention des risques liés à l'inhalation de poussières de bois dans les locaux industriels. La méthode adoptée pour diminuer l'empoussièrement et augmenter la qualité de l'air recyclé repose sur l'utilisation d'un dépoussiéreur dont l'efficacité de séparation est la principale caractéristique de performance.

La méthode de mesure choisie pour la détermination de l'efficacité fractionnelle de filtration d'un dépoussiéreur repose sur l'utilisation d'un aérosol traceur fluorescent injecté dans un flux de polluant particulaire. Les avantages sont essentiellement une grande sensibilité de détection (concentration particulaire très faible à l'aval du filtre) et une indépendance vis à vis des contraintes industrielles de fonctionnement du dépoussiéreur (fluctuations du débit et de la granulométrie).

Après avoir donné la définition physique de l'efficacité de séparation, la méthode de mesure choisie sera présentée. Afin de valider les résultats obtenus par cette méthode utilisant un traceur fluorescent, des mesures comparatives en présence du polluant ont été réalisées sur un banc d'essai avec une méthode de référence. Enfin, la mesure de l'efficacité de séparation par traçage fluorescent a été appliquée in situ sur le dépoussiéreur d'une menuiserie en conditions réelles de fonctionnement.

2. Définition de l'efficacité de séparation

L'efficacité de séparation d'un dépoussiéreur peut être qualifiée de deux manières différentes : globalement ou de façon fractionnelle, c'est à dire se rapportant à une tranche granulométrique i donnée.

2.1. Efficacité totale de séparation

Elle est égale au rapport du débit massique de particules collectées sur le débit massique à l'amont du dépoussiéreur, soit :

$$E = \frac{q_p^{am} - q_p^{av}}{q_p^{am}} \quad (1)$$

avec q_p^{am} et q_p^{av} , respectivement les débits massiques de particules à l'amont et à l'aval du dépoussiéreur.

2.2. Efficacité fractionnelle de séparation

Sa définition est la même que celle de l'efficacité totale mais pour une tranche granulométrique i donnée, soit :

$$E_i = \frac{q_p^{am,i} - q_p^{av,i}}{q_p^{am,i}} \quad (2)$$

Par la suite, c'est cette donnée que l'on cherchera à obtenir pour caractériser les performances du dépoussiéreur. Les avantages présentés par l'application d'une mesure de l'efficacité fractionnelle de séparation plutôt que totale sont multiples. Elle est tout d'abord indépendante du polluant particulaire si on néglige les effets de charge et de concentration et est plus riche en information. De plus, si la distribution granulométrique de l'aérosol est connue, l'efficacité totale peut en être déduite par calcul.

3. Méthode de mesure

3.1. Description du banc d'essai

Les mesures en laboratoire de l'efficacité fractionnelle de séparation ont été réalisées sur un banc d'essai composé essentiellement d'un caisson de filtration contenant le filtre testé, de deux points de prélèvements à l'amont et à l'aval de celui-ci et d'un générateur d'aérosol en amont du caisson. Le schéma global de l'ensemble est représenté sur la figure 1.

Le filtre testé est un filtre plissé en fibres de verre développant une surface filtrante de 20 m². Le générateur d'aérosol est un générateur de type Collison alimenté par une solution aqueuse du produit à générer. Après sa génération par le système Collison, l'aérosol est neutralisé par mise en contact avec de l'air ionisé produit par décharge couronne (électrode Elcowa Eco 8). Le débit total dans le conduit principal (\varnothing 200 mm) est obtenu grâce à un ventilateur. Sa valeur est déterminée à partir d'un diaphragme étalonné. Le débit Q est égal à 1200 m³.h⁻¹.

3.2. Méthode de référence

Elle est issue de la norme NF X 44-061 (1992). L'aérosol test est généré à partir d'une suspension de microbilles d'acétate de vinyle (PSL : PolyStyrène Latex) polydispersé dans de l'eau désionisée au moyen du générateur Collison. L'aérosol possède en sortie un diamètre aérodynamique médian en masse d_{mae} de 3,1 μ m ($\sigma_g = 2$).

L'efficacité de séparation est déterminée par comptages optiques entre l'amont et l'aval du filtre (compteur optique PMS Lasair 310, 8 canaux : 0,3 - 10 μ m, débit de prélèvement : 28,3 l.min⁻¹) de manière alternative. Le calcul de l'efficacité fractionnelle et celui des incertitudes de mesure sont décrits dans la norme.

1.3. Méthode utilisant le traceur fluorescent

L'objectif étant de se rapprocher au mieux des conditions réelles dans lesquelles seront faites les mesures sur site, des poussières de bois sont générées en parallèle du traceur fluorescent. Ceci permettra de mettre en évidence d'éventuelles interactions entre le bois et le traceur. Le générateur utilisé pour les poussières est à lit fluidisé de type Puldouit (concentration en poussières ~ 17 mg.m⁻³). Le lit est constitué de billes de verre de diamètre proche de 100 μ m. Le traceur est généré au moyen du générateur Collison à partir d'une solution de fluorescéine de sodium dans de l'eau désionisée à la concentration de 10⁴ ppm.

1.3.1. Prélèvements

Les concentrations en particules à l'amont et à l'aval du filtre sont déterminées par prélèvements sur un impacteur en cascade Andersen muni de son présélecteur de diamètre de coupure égal à 10 μ m (8 étages : 0,1 - 10 μ m ; débit de prélèvement : 28,3 l.min⁻¹). Cet appareil permet la mesure de la répartition en masse de l'aérosol en fonction de son diamètre aérodynamique. Pour permettre une meilleure collecte des particules sur les étages de l'appareil, ceux-ci sont préalablement recouverts d'un film de graisse de silicone.

1.3.2. Analyse par fluorimétrie

Après un temps de prélèvements de 5 min à l'amont et de 15 min à l'aval, les plateaux de l'impacteur sont récupérés et placés chacun dans une coupelle contenant 15 ml d'une solution tampon de tétraborate de sodium (pH \geq 9) pour solubiliser les particules de fluorescéine, et 5 ml d'hexane pour dissoudre la graisse et faciliter la mise en solution des particules. Après 20 min dans l'obscurité,

l'échantillon à analyser est prélevé dans la phase aqueuse du mélange au moyen d'une micro pipette. Les poussières de bois sédimentées ne doivent pas être prélevées. La fluorescence de la solution est ensuite mesurée (fluorimètre de type Jenway IC 6800, $\lambda_{\text{ex.}} = 485 \text{ nm}$ et $\lambda_{\text{em.}} = 515 \text{ nm}$).

1.1.3. Interactions entre les particules de bois et le traceur

La méthode présentée précédemment est validée si les interactions entre les particules de bois et celles du traceur sont négligeables. D'après Fuchs (1989), la variation de la concentration en nombre de particules de traceur par coagulation thermique avec les poussières de bois peut être estimée par :

$$n_t(t) = n_t(0) \cdot \exp(-n_p \cdot k_{tp} \cdot t) \quad (3)$$

avec n_t la concentration en nombre de traceur (cm^{-3}), n_p celle des particules de bois (cm^{-3}), k_{tp} le coefficient de coagulation traceur / polluant ($\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) et t le temps (s). L'application de cette relation à un cas classique de mesure de l'efficacité de séparation d'un dépoussiéreur à bois permet de conclure à une absence quasi totale d'interactions entre les deux aérosols ($k_{tp} \sim 10^{-9} \text{ cm}^3$).

1.1.4. Influence du bois sur la fluorescence de la solution

Différents facteurs provenant de la présence des poussières de bois peuvent influencer la fluorescence de la solution de fluorescéine : inhibition, adsorption, fluorescence du bois, ...

1.1.4.1. Choix de la solution basique

Des différentes solutions alcalines testées pour la mise en solution de poussières de bois, la solution tampon de Borax (tétraborate de sodium, à pH ~ 9) est la plus neutre vis à vis d'une variation significative de la fluorescence.

1.1.4.2. Influence de la nature de la poussière de bois

Si on s'affranchit des phénomènes physiques de diffusion de la lumière par les particules de polluants en les laissant sédimenter, la solubilisation en milieu basique de certains composés contenus dans le bois (cellulose par exemple) est susceptible d'entraîner à forte concentration des variations de la fluorescence. La fluorescence d'une solution de fluorescéine en milieu Borax en fonction de la concentration en poussières de chêne (essence la plus contraignante) ne présente un écart significatif par rapport à la solution de référence (sans particules de bois) que pour des concentrations supérieures à $1 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ (avec un temps de mise en solution de 10 min).

Les particules de bois ont donc peu d'influence sur la fluorescence d'une solution de fluorescéine à faible concentration en polluant ($< 1 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$) quelle que soit la poussière de bois. Néanmoins, compte tenu des concentrations élevées en poussières de bois à l'amont des unités de dépoussiérage (qq. $\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$), les temps de prélèvement doivent être limités à quelques minutes.

1.1.5. Calcul de l'efficacité fractionnelle de séparation

Pour chaque tranche granulométrique i correspondant aux diamètres de coupure des étages d'impaction de l'impacteur Andersen, l'efficacité fractionnelle de séparation E_i se calcule par :

$$E_i = \frac{C_p^{\text{am},i} - C_p^{\text{av},i}}{C_p^{\text{am},i}} \quad (4)$$

avec $C_p^{\text{am},i}$ et $C_p^{\text{av},i}$ ($\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$), respectivement les concentrations en particules appartenant à la classe i à l'amont et à l'aval du filtre.

1.4. Comparaison des deux méthodes

Les deux méthodes décrites précédemment ont été appliquées à la mesure de l'efficacité fractionnelle de séparation d'un filtre F7 (conformément à la norme NF EN 779, 1993). Les courbes obtenues sont représentées sur la figure 2.

On constate que l'efficacité mesurée par impaction en masse est sensiblement inférieure à l'efficacité en nombre mesurée par comptages optiques pour les particules de plus faible diamètre. L'écart maximum entre les deux courbes est de l'ordre de 9 %. Cette différence, bien que faible, est cependant significative étant donnée l'erreur faible sur les mesures (~ 2 %). Cet écart entre efficacité en masse et efficacité en nombre peut être attribué à la largeur de classe granulométrique i et dépend des fonctions de distribution à l'amont et à l'aval. L'utilisation de granulomètres de plus grande résolution (augmentation du nombre de canaux) permettrait de limiter ce phénomène.

4. Mesure in situ de l'efficacité de séparation d'un dépoussiéreur réel

4.1. Application de la méthode par traçage sur site

La méthode développée a été appliquée à la mesure sur site de l'efficacité de séparation d'un dépoussiéreur pour poussières de bois. L'installation est composée d'une alimentation en poussières de bois au moyen d'une trémie, d'une zone de prélèvement amont, du dépoussiéreur et d'une zone de prélèvement aval. Le dépoussiéreur est constitué d'un cyclone présélecteur et de manches filtrantes constituées d'un média en fibres de polyester.

La fluorescéine a été injectée à l'amont du dépoussiéreur et l'efficacité fractionnelle a été mesurée par traçage. D'autre part, l'efficacité totale a été déterminée par mesure de la concentration en bois à l'aval du dépoussiéreur, la concentration amont étant calculée à partir de la quantité de poussières introduite dans l'installation.

4.2. Résultats

L'efficacité fractionnelle du dépoussiéreur déterminée par traçage est représentée sur la figure 3. On constate que l'efficacité de séparation des particules de taille supérieure à 1 μm est supérieure à 99,9 %. Ceci est en accord avec la valeur de l'efficacité totale en masse mesurée par prélèvement sur filtre THE et supérieure à 99,9 %. Ce résultat s'explique par la granulométrie grossière des poussières de bois dont le diamètre volumique médian en masse est de quelques dizaines de microns.

Cette donnée de l'efficacité fractionnelle est fondamentale car elle permet de prendre en compte les éventuelles modifications de la granulométrie du polluant lors d'un changement dans le procédé de fabrication. Cependant, on constate une faiblesse du système vis à vis des plus fines particules.

5. Conclusion

Après l'étude de ses limites de son domaine d'application et la validation des données obtenues au moyen d'une méthode de référence, la méthode de mesure par traçage a été appliquée à la détermination de l'efficacité fractionnelle de séparation d'un dépoussiéreur à bois. La méthode semble satisfaisante et présente de nombreux avantages, en particulier son indépendance vis à vis des conditions de génération de la poussière.

Il serait intéressant de pouvoir étendre son application à d'autres types de polluants tels que les brouillards d'huile et les fumées de soudure. Cette méthode pourra de plus être mise à profit afin de permettre le suivi des performances d'un dépoussiéreur industriel lors des cycles de décolmatage (diminution de l'efficacité de séparation avec le détachement du gâteau de particules).

6. Bibliographie

- Norme Française NF X 44-061 - Séparateurs aérauliques - Méthode d'essai des filtres à air utilisés en ventilation générale. AFNOR, 1992.
- Norme Française EN 779 - Filtres à air de ventilation générale pour l'élimination des particules - Exigences, essais, marquage. AFNOR, 1993.
- Fuchs N. A. - The mechanics of aerosols. Dover Publications, inc., 1989, pp. 288-295.
- Norme Française NF X 44-011 - Méthode de mesure de l'efficacité des filtres au moyen d'un aérosol d'uranine. AFNOR, 1972.

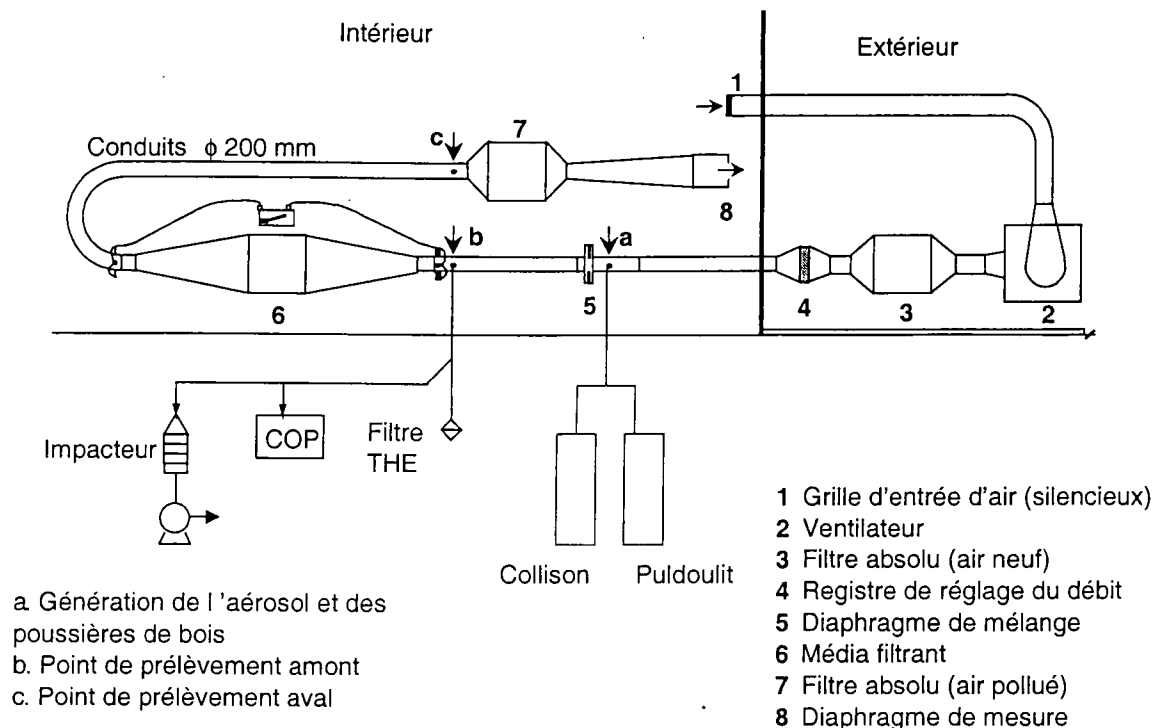
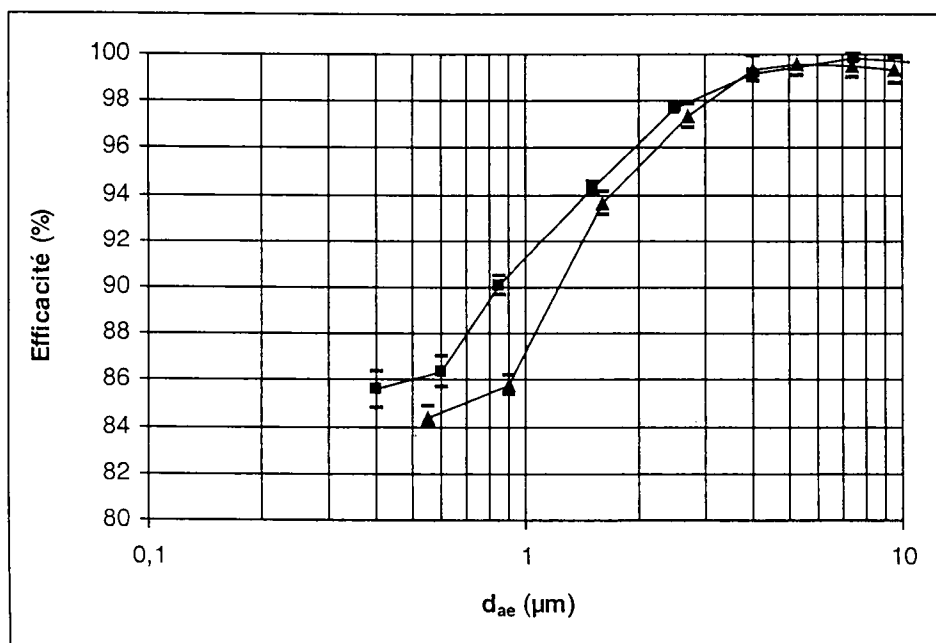


Figure 1. Schéma du montage sur lequel ont été réalisés les essais comparatifs entre la méthode par traçage et la méthode de référence



▲ méthode par traçage (fluorescéine)
 ■ méthode de référence (latex)

Figure 2. Comparaison des efficacités fractionnelles de séparation d'un filtre F7 (selon NF E N 779, 1993) mesurées par la méthode utilisant le traçage fluorescent et par celle de référence (en fonction du diamètre aérodynamique médian des particules (d_{ae}))

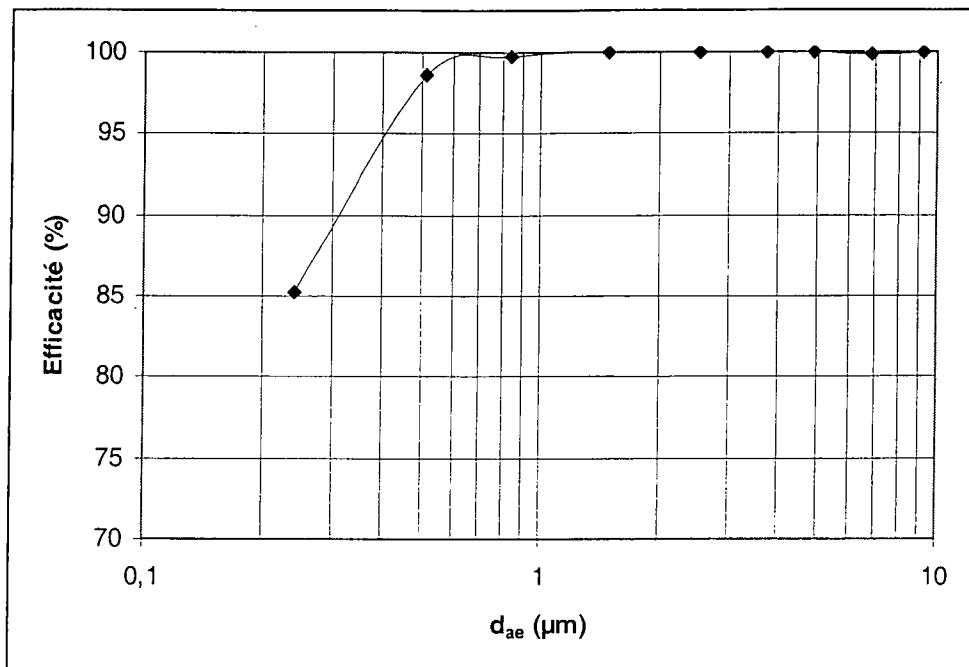


Figure 3. Efficacité fractionnelle de séparation d'un dépoussiéreur industriel pour poussières de bois travaillant avec un débit de $11500 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$.

ESSAIS *IN SITU* DE FILTRATION DANS L'ENVIRONNEMENT DU METROPOLITAIN

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

⁽¹⁾ RATP, Département des Projets, LAC A67, 54 quai de la Rapée, 75599 PARIS CEDEX 12
e-mail : s.mazoue@caramail.com

⁽²⁾ LPATC, Université PARIS XII Val-de-Marne, av. du Général de Gaulle, 94010 CRETEIL CEDEX

Abstract : This paper presents the main results of our *in situ* measurements, which have been realised in the station « Richard-Lenoir » (line 5 of the Parisian underground). The technical solution we used is based on the electrostatic filtration. The experimental setup allows us to settle the filtration efficiency of the chosen device, its reliability and its global cost.

Keywords : aerosol, electrostatic filter, underground

Résumé : Cet article présente les résultats des essais *in situ* de filtration menés dans la station Richard-Lenoir, située sur la ligne 5 du réseau métropolitain parisien. Le système de traitement d'air utilisé repose sur la filtration électrostatique. Le montage expérimental mis en oeuvre nous a permis d'établir son efficacité de filtration vis à vis de l'aérosol du métro, de même que sa fiabilité et son coût à l'achat et à l'entretien.

Mots clés : aérosol, filtre électrostatique, métropolitain

Introduction

Cette étude s'inscrit dans le cadre d'une recherche de solutions techniques à mettre en oeuvre, afin de réduire l'empoussièrément du réseau métropolitain parisien, en cas de crise extrême de pollution ou d'un accident majeur [Mazoué, 1998]. L'analyse des différents systèmes de traitement d'air, actuellement disponibles sur le marché, nous a permis de déterminer leurs principaux avantages et inconvénients en vue de leur intégration dans le milieu souterrain. La filtration électrostatique s'est ainsi révélée comme la solution technique la plus adaptée à l'environnement du métro, et celle qui répond le mieux à ses exigences. Des essais *in situ* de traitement d'air ont alors été entrepris dans la station Richard-Lenoir du métro (ligne 5) à partir du procédé retenu.

I. LA FILTRATION ELECTROSTATIQUE

1.1 Principe de fonctionnement

La précipitation électrostatique n'est pas un procédé de filtration nouveau. En effet, le principe de prélèvement de particules solides ou liquides d'un gaz par application d'une charge électrique entre deux électrodes date de 1824. Ce procédé a connu depuis de nombreux développements, conduisant à la mise au point de systèmes de dépoussiérage de gaz industriels très performants. Son principe de fonctionnement, qui comporte cinq étapes, est présenté sur la *figure 1*.

L'air pollué pénètre dans le filtre électrostatique sous l'effet d'aspiration du ventilateur ①. Le pré-filtre nettoyable retient les grosses particules ②. La section d'ionisation à haute tension⁽¹⁾ charge toutes les particules dans le flux d'air ③. Les particules chargées sont ensuite attirées par les plaques de collection, sur lesquelles elles se déposent ④. Enfin, le post-filtre améliore la distribution d'air. Il permet aussi de capter la matière agglomérée qui se détacherait accidentellement du collecteur ⑤.

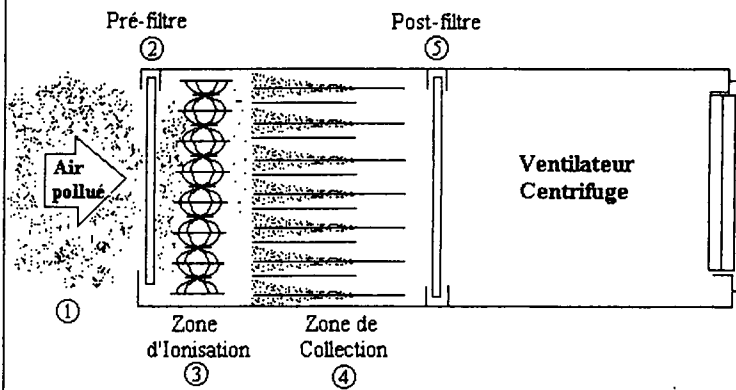


fig. 1 - Principe de fonctionnement d'un filtre électrostatique

1.2 Caractéristiques

Outre une bonne efficacité de filtration sur la tranche granulométrique 0.5-10 μm , les filtres électrostatiques présentent les avantages suivants :

- une perte de charge relativement faible (inférieure à 100 Pa), comme le suggèrent les travaux de Bergman et Jaeger [1993]
- un effort de maintenance réduit, puisque tous les composants de collecte sont nettoyables à l'air comprimé, ou encore à l'eau associée à un détergent
- une consommation énergétique peu élevée (variable selon les applications, de 0.1 à 0.5 mA par m^2 de surface d'électrodes)
- des performances du filtre électrostatique non altérées par une humidité importante

Rappelons que l'humidité relative des espaces souterrains du métro est comprise entre 30 et 70%.

Nous avons cependant noté un certain nombre de contraintes majeures du filtre électrostatique, qu'il convient de mentionner. Ce sont en particulier :

- une légère production d'ozone due à l'effet couronne, nécessaire à la charge des particules. Les travaux de Boelter *et al.* [1997] montrent en particulier qu'un effet couronne négatif génère plus d'ozone que l'effet couronne positif. Ces concentrations sont toutefois très inférieures au seuil de protection pour la santé, fixé, par l'Union Européenne, à 110 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ sur 8 heures.

- une sécurité haute tension

Il est nécessaire de disposer d'une installation délivrant une tension élevée, à savoir environ 12000 V dans la zone d'ionisation (filaments à haute tension positive), et 6000 V dans la zone de collection. Cette haute tension implique de recourir à certaines règles de sécurité. Il est notamment indispensable de placer le filtre hors de portée des voyageurs, ou dans un caisson de protection, et de ne pas le soumettre à un lavage en cours de fonctionnement, au risque de provoquer un court-circuit.

⁽¹⁾ Une description détaillée du principe de charge par effet couronne positif ou négatif est proposée dans l'ouvrage de Chang, Kelly et Crowley [1995].

- des nuisances sonores

Le filtre électrostatique est généralement équipé d'un ventilateur, qui a pour rôle une meilleure régulation de l'air. A forts débits, le ventilateur peut engendrer des nuisances sonores, susceptibles de provoquer une gêne pour les voyageurs et le personnel de la RATP, amenés à séjourner à proximité du filtre. La RATP se doit, en outre, de respecter un certain nombre de réglementations relatives aux nuisances sonores. Ainsi, la valeur limite de 65 dB_A ne doit pas être dépassée au niveau des quais.

- un coût élevé

Le filtre électrostatique est relativement onéreux à l'achat. Cependant, il peut s'avérer rentable lorsqu'il s'agit de traiter de gros débits d'air à concentrations particulières élevées, les frais d'exploitation étant relativement faibles.

Le prototype de filtre électrostatique, que nous avons utilisé, se présente sous la forme d'un caisson de 82 kilos. Le fonctionnement du dispositif nécessite une puissance moteur de 0.55 kW. Enfin, le débit d'air traité est de 2250 m³/h.

II. MONTAGE EXPERIMENTAL (figure 2)

Notre méthode d'essai consiste à déterminer l'efficacité de filtration du dispositif par une mesure des concentrations particulières en amont (C_{amont}) et en aval (C_{aval}) du caisson, à partir d'un seul compteur de particules.

$$E (\%) = \frac{C_{amont} - C_{aval}}{C_{amont}} \cdot 100$$

Un anémomètre à hélice est disposé en amont du filtre, de manière à étudier l'influence de l'effet piston des trains sur les vitesses d'air frontales. Les données recueillies à la fois par le compteur optique et l'anémomètre sont stockées dans le disque dur d'un ordinateur, dont l'unité centrale est positionnée sur la plate-forme supportant l'ensemble du système. Les essais sont poursuivis jusqu'au colmatage du filtre.

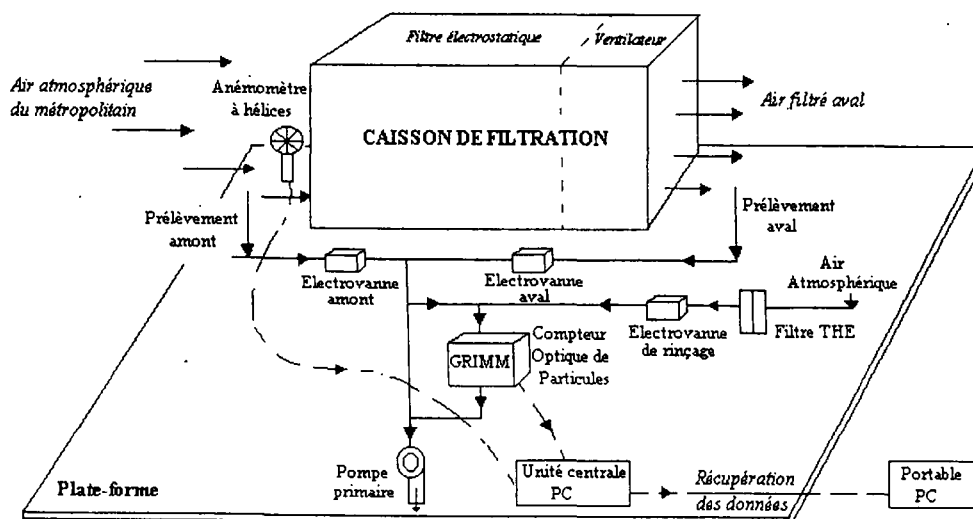


fig. 2 - Dispositif expérimental

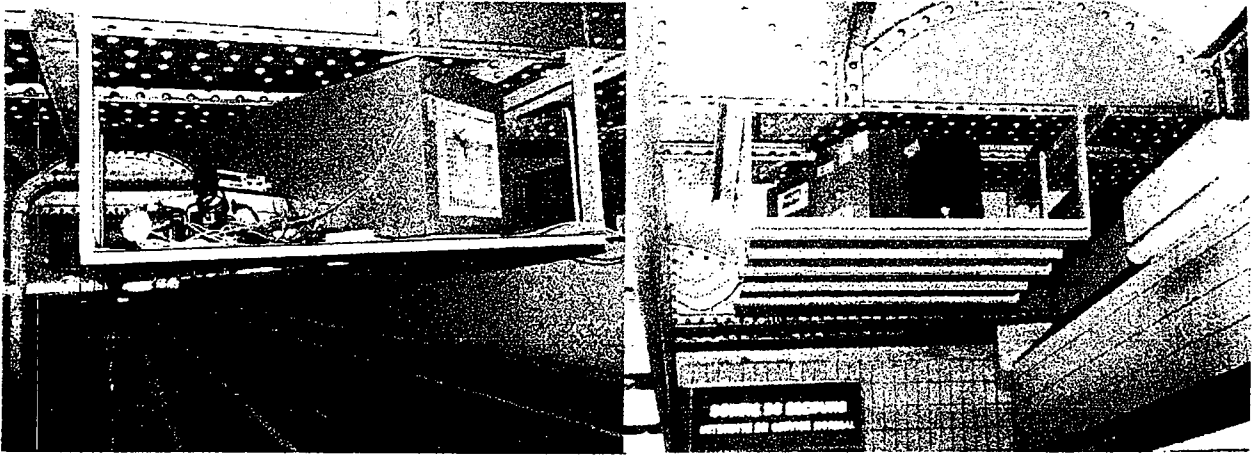


fig. 3 - Montage expérimental, vu de dos et de face, dans la station Richard-Lenoir

III. RESULTATS EXPERIMENTAUX

III.1 Vitesses d'air frontales

Pour une section frontale de l'appareil de 0.17 m^2 , la vitesse d'air imposée par le ventilateur en amont du caisson est de 3.6 m/s . Or, nos mesures expérimentales montrent que les vitesses d'air frontales fluctuent en permanence autour de cette moyenne (fluctuations dues aux turbulences à proximité du point de mesure). Signalons par ailleurs que l'anémomètre à hélices n'est pas l'appareil le mieux adapté à l'étude des écoulements instables ! Toutefois, le sens du flux d'air n'est pas perturbé par le trafic ferroviaire, car les valeurs sont homogènes de jour, comme de nuit, c'est-à-dire en présence ou non de trafic ferroviaire.

III.2 Efficacité de filtration

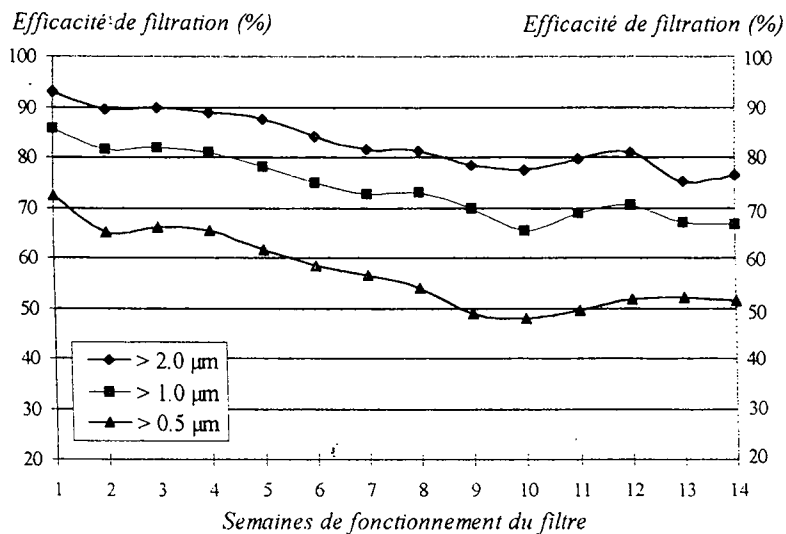


fig. 4 - Efficacité de filtration en nombre, par plages granulométriques, en fonction du temps de fonctionnement du filtre électrostatique

La figure 4 présente les efficacités de filtration calculées, en fonction du temps de fonctionnement du dispositif, pour trois classes granulométriques différentes. Nous constatons ainsi une efficacité initiale de 93% pour les particules de dimensions supérieures à 2 μm , qui caractérisent le diamètre moyen, en masse, de l'aérosol du métropolitain. Cette efficacité atteint respectivement 88% et 72% pour les particules de diamètre supérieur à 1 et 0.5 μm . Après 14 semaines de fonctionnement (3 mois et demi), les valeurs ont sensiblement diminué, de manière symétrique pour chaque classe granulométrique. L'efficacité de filtration n'est ainsi plus que de 78% pour les particules de dimensions supérieures à 2 μm .

III.3 Colmatage du filtre

La capacité de colmatage, ou d'emmagasiner, d'un filtre est d'autant plus importante qu'elle constitue un facteur décisif sur la durée de vie du dispositif et donc sur les frais d'exploitation engendrés. Dans le cas des filtres électrostatiques, l'accumulation des particules sur les plaques de collection n'entraîne pas d'augmentation significative de la perte de charge du procédé. En revanche, elle conduit généralement à une diminution du potentiel entre les plaques, et de ce fait, à une baisse de l'efficacité de captation du filtre.

En raison de l'état défectueux du voyant lumineux qui aurait dû nous signaler l'apparition d'un phénomène d'encrassement du filtre, nous n'avons pas pu établir, avec précision, la période de colmatage de notre système. Toutefois, l'apparition d'un dépôt noir sur la grille de sortie du caisson de filtration, après 4 mois d'essais, suggère un réentraînement de particules. Notons que, selon les informations fournies par le fournisseur du filtre, la capacité de colmatage moyenne est de l'ordre de 400 g de poussières. La littérature [Lloyd, 1988][Remil, 1990][Masuda, Hosokawa, 1995] montre par ailleurs que la nature diélectrique de l'aérosol étudié joue un rôle essentiel sur l'efficacité d'un filtre électrostatique.

III.4 Maintenance du dispositif

Ces essais *in situ* nous permettent de déterminer la fréquence d'entretien du filtre électrostatique. Ainsi, afin de maintenir une efficacité d'épuration élevée dans la station (supérieure à 80%), et d'améliorer significativement la qualité de l'air du milieu, il nous apparaît nécessaire de procéder au lavage du filtre tous les trimestres.

IV. COUT D'INVESTISSEMENT NECESSAIRE AU TRAITEMENT D'AIR D'UNE STATION DE METRO

Pour cette estimation, nous utilisons les données suivantes :

- volume d'air global de la station : 5000 m^3
- débit de filtration de l'appareil : 2250 m^3/h

La mesure des vitesses d'air en station nous permet d'établir le débit d'air entrant en absence de trafic ferroviaire, ainsi que le renouvellement d'air de la station, à savoir respectivement 6 m^3/s (21 600 m^3/h) et 4 h^{-1} .

Par conséquent, dans le cas idéal d'une bonne répartition du volume d'air entre les caissons de filtration, et en ne tenant pas compte des mouvements d'air imposés par la circulation des trains (état de crise), il faudrait répartir judicieusement une dizaine de caissons de filtration

pour traiter le volume d'air total de la station. Le coût d'investissement atteint alors approximativement 250 kF.

Il est cependant important de signaler qu'en présence de ventilation mécanique, le taux de renouvellement d'air s'élève alors à 30, voire 40 h⁻¹ (débit d'air de 40 à 60 m³/s). Il est alors nécessaire d'augmenter soit le nombre de caissons de filtration, soit le débit de filtration, afin de traiter le volume d'air global de la station. Le coût d'investissement est de ce fait plus fort. Cependant, l'air « neuf » introduit dans la station, par le tunnel ou encore par les accès, selon le mode de ventilation, favorise également l'élimination des particules. Aussi, il est possible d'envisager un compromis entre ce renouvellement d'air et la filtration, de manière à réduire le taux d'empoussièrement du milieu, sans pour autant accroître considérablement le nombre de filtres en station.

V. CONCLUSION

Ces essais *in situ* de filtration de l'air d'une station de métro sont particulièrement encourageants. En effet, des efficacités de filtration, vis à vis de l'aérosol du métro, supérieures à 80% ont été mesurées, à partir du prototype de filtre électrostatique utilisé.

De nombreux efforts doivent néanmoins être fournis, afin d'optimiser ce dispositif (réduction des nuisances sonores...).

La généralisation du procédé sur l'ensemble de la station doit à présent nous permettre de déterminer son efficacité de filtration sur la qualité de l'air globale de la station. Enfin, parallèlement à ces expériences, il est indispensable de rechercher de nouvelles solutions techniques, capables de compléter efficacement notre dispositif initial.

Références Bibliographiques

- BERGMAN W., JAEGER R. (1984). *Electric air filtration movie*. In : Aerosol, Science, Technology and Industrial Applications of Airborne Particles, Liu B.Y.H, Pui D.Y.H., Fissan H.J., 593-596.
- BOELTER K.J., DAVIDSON J.H. (1997). *Ozone Generation by Indoor, Electrostatic Air Cleaners*. Aerosol Science and Technology, 27:689-708, Elsevier.
- CHANG J.S., KELLY A.J., CROWLEY J.M. (1995). *Gas discharge phenomena*, In : Handbook of Electrostatic Processes, 152-157.
- LLOYD D.A. (1988). *Electrostatic Precipitator Handbook*. Hadam Hilger, 42.
- MASUDA S., HOSOKAWA S. (1995). *Electrostatic Precipitation*, In : Handbook of Electrostatic Processes, Chang J.S, Kelly A.J., Crowley J.M., 454.
- MAZOUÉ S. (1998). *Elaboration et validation d'un système de traitement d'air pour les espaces souterrains du métropolitain parisien*, Thèse de Doctorat, Université PARIS XII Val-de-Marne.
- REMIL J. (1990). *Procédés de dépoussiérage des gaz dans l'industrie*. Pollution atmosphérique, 125:53-60.

CFA 98
14^{ème} Congrès Français sur les Aérosols - 8 et 9 décembre 1998 - PARIS

Influence de la vitesse de filtration sur le colmatage de filtres THE plissés
pour différents types d'aérosols

A. BRIAND*, F. HUREL**, J.C. LABORDE*, V. MOCHO*

*Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire
Département de Prévention et d'Etude des Accidents
Service d'Etudes et de Recherches en Aérocontamination et en Confinement
CEA/Saclay - Bâtiment 389 - 91191 GIF-SUR-YVETTE CEDEX, France

** COGEMA BCR/QS
1, rue des Hérons - Montigny-le-Bretonneux
78182 SAINT-QUENTIN-EN-YVELINES CEDEX, France

RESUME

La communication proposée présente des résultats relatifs à une étude menée à l'Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN), en collaboration avec la COGEMA, afin de caractériser le colmatage des filtres THE par des aérosols de différentes natures : solide, liquide, aérosols de combustion. Les expériences, menées à différentes vitesses de filtration (inférieures ou égales à la vitesse nominale de filtration), mettent en évidence un colmatage différent entre les filtres THE plans et plissés, pour un même type d'aérosol ; il en ressort en particulier que, quelle que soit la nature des aérosols, pour une masse de particules déposées donnée, la résistance aéraulique d'un filtre plissé augmente lorsque la vitesse de filtration diminue. Aucun des modèles physiques testés à ce jour ne permet de retranscrire les résultats expérimentaux obtenus.

INTRODUCTION

Deux des grandeurs les plus importantes pour caractériser les filtres THE (filtres à Très Haute Efficacité) sont leur perte de charge (ΔP) et leur efficacité de collecte (E) ; ces grandeurs sont fonction de la composition du filtre (compacité, diamètre des fibres, épaisseur, ...), des conditions opératoires (vitesse de filtration, température, ...) et des caractéristiques de l'aérosol (nature, granulométrie).

De nombreux modèles ont été proposés pour calculer l'efficacité de collecte et la perte de charge des filtres en régime stationnaire. En revanche, moins d'études existent sur l'évolution de ces grandeurs en filtration dynamique ; dans ce cas, le colmatage du filtre par les aérosols induit de profondes modifications de la structure du filtre entraînant une variation de l'efficacité et de la perte de charge au cours du temps. La plupart du temps, ces modèles ont été développés à partir d'études menées sur des filtres plans, alors que les filtres industriels ont un médium filtrant plissé. Or, il s'avère indispensable de disposer de données réalistes, car la connaissance du colmatage des filtres est un phénomène fondamental conditionnant la durée de vie d'un filtre, en régime nominal de fonctionnement d'une installation comme en régime accidentel (incendie par exemple).

Ainsi, en cas d'incendie, le colmatage peut entraîner une diminution du débit d'extraction d'air d'une cellule ou une rupture du médium filtrant, si des moyens appropriés ne sont pas mis en oeuvre.

Les données obtenues peuvent ensuite être intégrées dans des codes globaux de ventilation, comme par exemple le code SIMEVENT, qui permettent d'évaluer les conséquences d'une perturbation telle que le colmatage sur le maintien du confinement des substances radioactives dans une installation nucléaire. Les actions de recherche communes entre COGEMA et IPSN sur le thème de l'incendie entrent dans ce cadre.

1. GENERALITES SUR LE COLMATAGE DES FILTRES THE

L'évaluation des contraintes liées au colmatage des filtres par les aérosols revient tout d'abord à déterminer la perte de charge à laquelle va être soumis un filtre compte tenu de la masse d'aérosols déposés, pour un type d'aérosols et une vitesse de filtration donnés ; pour cela, deux approches peuvent être a priori suivies :

- le recours à des modèles physiques si ces derniers sont adaptés,
- le recours à des lois empiriques propres à un aérosol donné, aérosol de combustion par exemple.

Au cours du colmatage, les particules se déposent principalement à l'intérieur du milieu poreux puis en surface. L'influence de la tailles des particules est un paramètre important du colmatage ; pour une même masse, un aérosol solide est d'autant plus colmatant que son diamètre est faible [1].

Modèles physiques disponibles

En raison de la complexité des phénomènes mis en jeu, rares sont les auteurs qui proposent des modèles théoriques de colmatage qualifiés pour des aérosols solides, liquides et de combustion. En ce qui concerne les modèles physiques, ils dérivent généralement des lois relatives aux filtres vierges :

$$\Delta P = \mu v L_f F,$$

où μ représente la viscosité dynamique du fluide ($\text{Pa}\cdot\text{s}^{-1}$), v la vitesse de filtration ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), L_f la longueur des fibres constitutives du filtre par unité de surface (m^{-1}) et F le coefficient de frottement.

L'un des modèles les plus utilisés est celui de Davies [2], lequel conduit en régime laminaire à l'expression finale de ΔP :

$$\Delta P = 16 \mu v e \alpha_f^{3/2} (1 + 56 \alpha_f^3) / r_f^2,$$

où e représente l'épaisseur du médium filtrant (m), α_f la compacité du médium filtrant, et r_f le rayon des fibres (m).

Deux mécanismes sont couramment utilisés dans le cas des filtres colmatés.

► Filtration en profondeur

Le milieu filtrant est souvent assimilé à un mélange de deux filtres : l'un constitué de fibres vierges et l'autre de fibres formées à partir des particules déposées (modèle de dentrites), chaque partie ayant ses paramètres propres [3].

Parmi les études menées, certaines ont mis en évidence le caractère hétérogène du dépôt en profondeur. Une approche différentielle assimilant le filtre à une succession de tranches élémentaires dont les caractéristiques varient en fonction du temps, a été mise au point par Letourneau et al. [4] en combinant deux modèles :

- un modèle intégrant un profil de pénétration des particules,
- le modèle de Bergman [3] pour l'obtention de la perte de charge de chaque tranche.

► Filtration de surface

Cette approche suppose que les particules se déposent à la surface du filtre. Ainsi, la perte de charge du filtre est la somme de la perte de charge du filtre vierge et de celle due à la formation du gâteau à la surface du filtre. Le modèle le plus connu est celui de Novick [5].

Tous ces modèles ont, à ce jour, été qualifiés pour des filtres plans ; lorsqu'ils sont appliqués à des filtres industriels, dans lesquels le médium filtrant est plissé, les résultats sont souvent fort éloignés de la réalité comme nous le verrons par la suite.

Approche expérimentale

Les approches phénoménologiques dérivent d'approches expérimentales propres à des aérosols solides ou liquides. En ce qui concerne les aérosols de combustion, leur nature complexe fait que, pour l'instant, l'approche purement expérimentale est la plus viable. Dans leurs travaux communs, IPSN et COGEMA se sont intéressés aux aérosols issus de la combustion de solvants.

Quelle que soit l'approche, on relève un manque de données concernant l'influence de la vitesse de filtration sur les courbes de colmatage, traduites en termes de variation de la perte de charge (ΔP) ou de la résistance aéraulique R en fonction de la masse d'aérosols déposés.

La résistance aéraulique d'un filtre est donnée par la relation :

$$R = \frac{\Delta P}{Q_v \left(\frac{\mu}{\mu_0} \right)},$$

où ΔP représente la perte de charge (Pa), Q_v le débit volumique de filtration ($m^3 \cdot s^{-1}$), μ et μ_0 la viscosité dynamique de l'air, respectivement à la température T et ambiante ($Pa \cdot s^{-1}$).

2. BANC D'ESSAIS DE COLMATAGE ET INSTRUMENTATION ASSOCIEE

Afin de pouvoir acquérir des données sur l'évolution du colmatage des filtres THE pour des aérosols solides, liquides et essentiellement des aérosols de combustion, l'IPSN dispose d'un banc d'essais. Il est constitué d'une enceinte en inox de 0,5 m³ où sont produits les aérosols d'essais (par combustion ou au moyen de générateurs spécifiques). L'enceinte est reliée à un circuit aéraulique dans lequel le débit d'air peut varier de 50 m³ à 500 m³/h. Ce circuit est constitué de deux branches parallèles pouvant être utilisées simultanément ou séparément. Chacune d'entre elles comprend un caisson de filtration accueillant un filtre THE plissé et un capteur de pression. En aval de chacun de ces filtres, un diaphragme donne le débit d'air par une mesure de pression différentielle. Sur chacun des deux circuits, une vanne permet de maintenir un débit aéraulique constant. Le conduit principal est instrumenté pour différents prélèvements et mesures : concentration d'oxygène, distribution granulométrique par prélèvements sur impacteur, concentration des aérosols par prélèvement séquentiels sur filtres, température. De plus, une dérivation du conduit principal permet l'étude du colmatage des filtres plans. Enfin, toutes les données expérimentales sont enregistrées par une centrale d'acquisition. Un schéma de principe du banc d'essais et de l'instrumentation associée est donné figure 1.

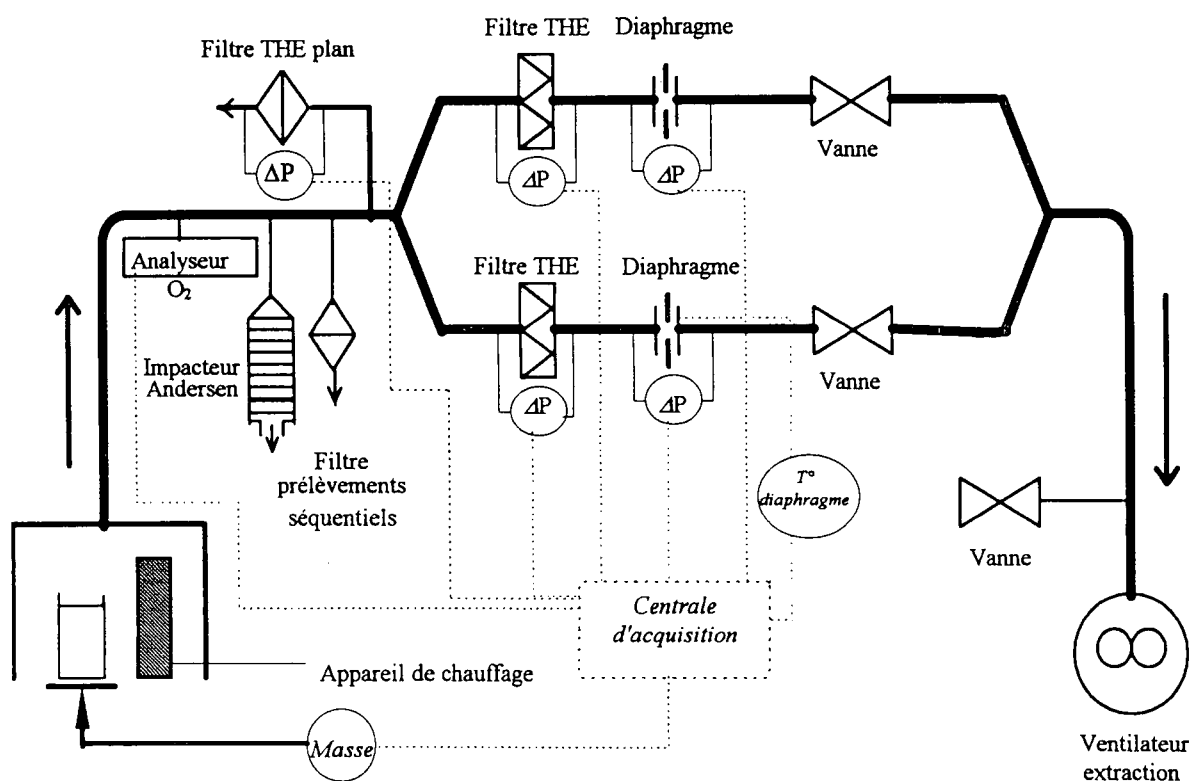


Figure 1 - Schéma de principe du banc d'essais

3. RESULTATS SIGNIFICATIFS

Nous allons nous intéresser tout d'abord au colmatage des filtres THE par des aérosols provenant de la combustion d'un mélange constitué de 30 % volumique de TBP (Tributhylphosphate) et de 70 % de TPH (Tetrapropylène Hydrogéné) ; ce mélange constitue le solvant utilisé par COGEMA dans le procédé de retraitement des combustibles.

Influence de la vitesse de filtration en fonction du type de filtre THE

Dans un premier temps, l'étude porte sur le colmatage de filtres plan et plissé à diverses vitesses de filtration. Les paramètres expérimentaux sont donnés dans le tableau 1.

Tableau 1 - Paramètres expérimentaux pour les aérosols de combustion

Type de filtre	Vitesse de filtration (cm/s)	Aérosol de combustion du TBP + TPH	
		Granulométrie	Concentration moyenne (g/cm ³)
Plan	0,23	$d_a \approx 1 \mu\text{m}$ et $\sigma_g \approx 4$	0,3
	0,92		0,15
	2,1		0,1
Plissé	0,23	$d_a \approx 1 \mu\text{m}$ et $\sigma_g \approx 4$	0,3
	0,92		0,15
	2,1		0,1

d_a : diamètre aérodynamique médian massique

σ_g : écart-type géométrique

Les résultats présentés à la figure 2 montrent qu'il existe des différences de colmatage entre les deux types de filtre. Les résultats sont exprimés en termes de courbe $R/R_0 = f(M_{ae})$, où R représente la résistance aéraulique du filtre colmaté, R_0 la résistance aéraulique du filtre vierge et M_{ae} la masse d'aérosols déposés par unité de surface de filtration.

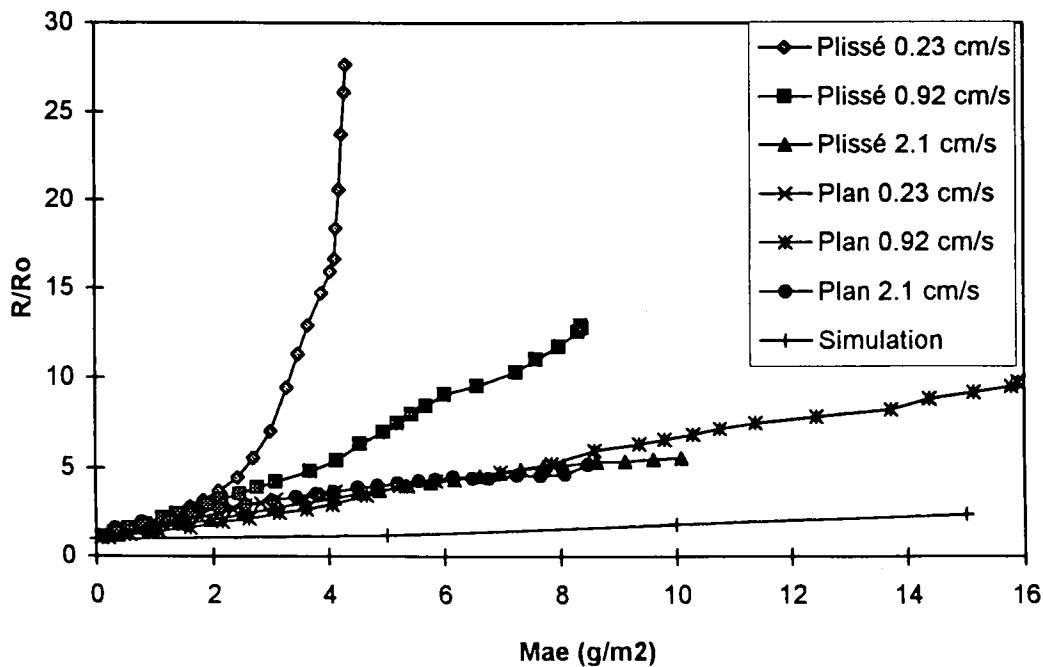


Figure 2 - Colmatage des filtres plan et plissé par des aérosols de combustion

- Les courbes d'évolution du colmatage des filtres plans montrent que l'influence de la vitesse de filtration est peu marquée ; de plus, il peut être admis que le rapport R/R_0 est une fonction linéaire de la masse d'aérosols déposés sur le filtre dans l'intervalle de masse $[0 - 16 \text{ g/m}^2]$.

- Par contre, les courbes d'évolution du colmatage des filtres plissés dépendent fortement de la vitesse de filtration. A faible vitesse de filtration (0,23 cm/s), le rapport R/R_0 a la forme d'une fonction exponentielle de la masse d'aérosols déposés sur le filtre ; à la vitesse nominale de filtration (2,1 cm/s), le colmatage est équivalent à celui du filtre plan.
- Les résultats présentés montrent également que même l'un des modèles de colmatage le plus récent [6] modélise imparfaitement le colmatage d'un filtre plissé par les aérosols de combustion et ne traduit pas l'influence de la vitesse de filtration.

Influence de la vitesse de filtration en fonction de la nature des aérosols.

Dans un second temps, il est nécessaire de s'assurer que le phénomène observé n'est pas spécifique des aérosols de combustion et qu'il est généralisable à des aérosols solides et liquides de référence. Des essais complémentaires ont donc été réalisés sur les filtres industriels plissés, dans des conditions similaires, au moyen d'aérosols solides de chlorure de sodium (NaCl) et liquides de Dioctylphtalate (DOP) ; les aérosols émis ont un diamètre aérodynamique médian massique proche des aérosols de combustion. Les paramètres expérimentaux de l'étude sont donnés dans le tableau 2.

Tableau 2 - Paramètres expérimentaux pour les aérosols de référence

Type de filtre	Vitesse de filtration (cm/s)	Aérosol de colmatage		
		Nature	Granulométrie	Concentration moyenne (g/cm ³)
Plissé	0,23	NaCl	$d_a \approx 0,7 \mu\text{m}$ $\sigma_g \approx 1,6$	0,35
	0,92			0,20
	2,1			0,1
Plissé	0,23	DOP	$d_a \approx 0,7 \mu\text{m}$ $\sigma_g \approx 1,5$	0,4
	0,92			0,15
	2,1			0,1

Les lois d'évolution du colmatage des filtres plissés pour des aérosols de chlorure de sodium et de dioctylphtalate, présentent (figure 3) des allures similaires à celles des aérosols de combustion. A faible vitesse de filtration, le rapport R/R_0 a l'allure d'une fonction exponentielle en fonction de la masse d'aérosols déposés et à vitesse de filtration nominale une allure linéaire.

Ces résultats montrent donc que l'influence de la vitesse de filtration est manifeste quel que soit le type d'aérosols. Cependant, il apparaît que, pour obtenir un accroissement donné de la résistance aéraulique, la masse de matière déposée dépend de la nature de l'aérosol, à distribution granulométrique identique.

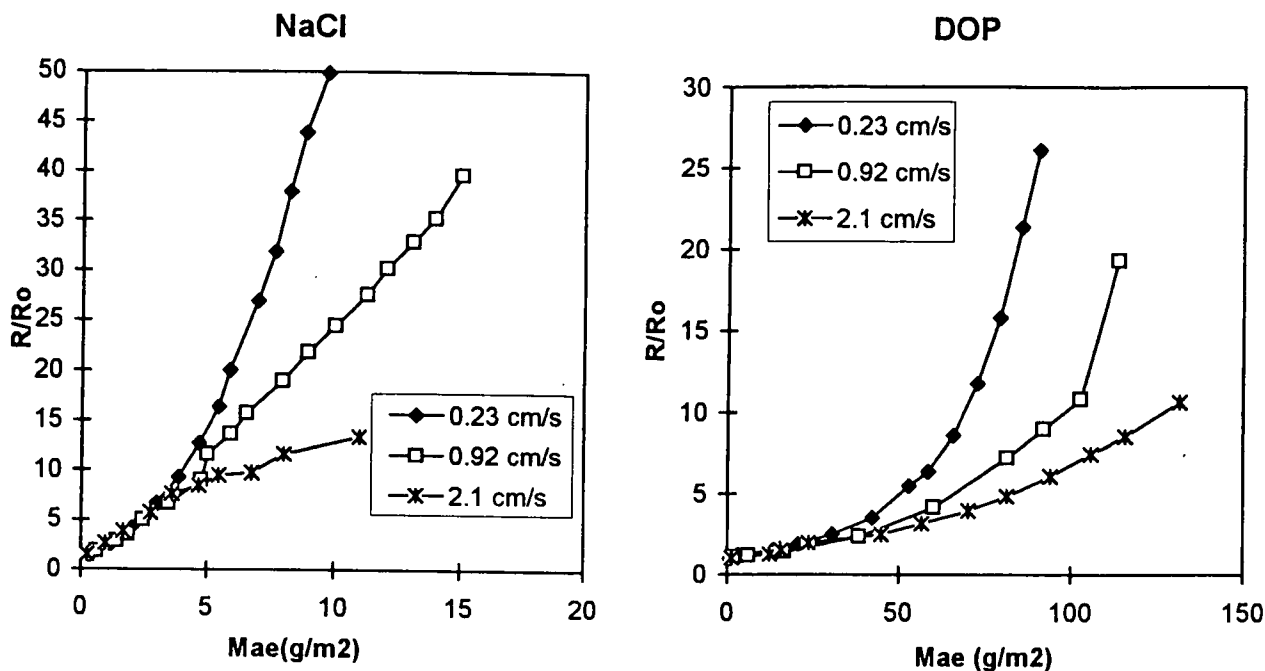
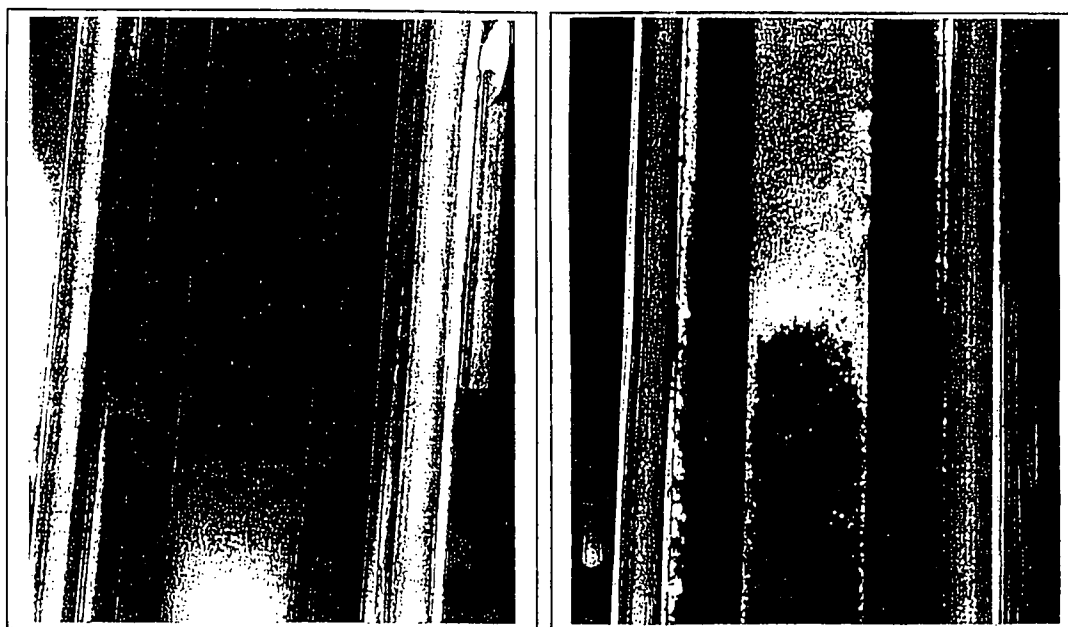


Figure 3 - Colmatage des filtres plissés par des aérosols de NaCl et de DOP

Interprétation qualitative des résultats obtenus

En observant attentivement la surface des divers filtres utilisés (figure 4), il apparaît que le dépôt des aérosols sur le médium filtrant n'est pas uniforme dans le cas des filtres plissés. En effet, à forte vitesse, le dépôt est homogène et l'écoulement d'air affecte quasiment l'ensemble de la surface frontale du filtre, comme pour un filtre plan ; par contre, à faible vitesse, le dépôt est beaucoup moins homogène.

L'hypothèse suivante, à confirmer, est donc qu'une partie de la surface filtrante n'est plus traversée par l'air de filtration. Cette diminution de la surface de filtration tendrait à expliquer le phénomène d'accroissement de type exponentiel.



vitesse : 2,1 cm/s

vitesse : 0,23 cm/s

Figure 4 - Dépôt des aérosols de combustion sur des filtres THE plissés

4. CONCLUSION

L'évolution de la résistance aéraulique d'un filtre plissé au cours de son colmatage dépend fortement de la vitesse de filtration. Ce phénomène non observé pour les filtres plans et non retranscrit par les modèles actuellement disponibles, est indépendant de la nature des aérosols ; son interprétation et sa modélisation passent par une meilleure connaissance de l'écoulement d'air et de la répartition des aérosols le long d'un pli du médium filtrant.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] J. Stenhouse (1991). The loading of fibrous filters with submicron particles. *Journal of Aerosol Science* 22
- [2] C.N. Davies (1973). *Air filtration*, Academic Press London, New-York
- [3] W. Bergman, R. Taylor, H. Miller (1978). Enhanced filtration program at LLNF. 15th DOE Nuclear Air Cleaning Conference, Boston
- [4] P. Letourneau, V. Renaudin, J. Vendel (1992). Effects of the particle penetration inside the filter medium of the HEPA filter pressure drop. 22th DOE Nuclear Air Cleaning Conference, Denver
- [5] V. Novick, P. Monson, P. Ellison (1992). The effect of solid particle mass loading on the pressure drop of HEPA filters. *Journal of Aerosol Science* 23
- [6] P. Penicot (1998). Etude de la performance de filtres à fibres lors de la filtration d'aérosols liquides ou solides submicroniques. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Nancy

Influence de la dimension des aérosols sur l'efficacité d'une barrière de confinement

N. DUPOUX, J.C. LABORDE, C. PREVOST

Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire, Département de Prévention et d'Etude des Accidents

Service d'Etudes et de Recherches en Aérocontamination et en Confinement

CEA/Saclay - Bâtiment 389 - GIF-SUR-YVETTE CEDEX, France

RESUME

Dans de nombreux secteurs industriels, la technique de confinement dynamique est mise en oeuvre afin de protéger des opérateurs face à la dispersion d'un polluant. Cette technique s'applique autant dans les conditions de fonctionnement normales d'une installation (sorbonne de laboratoire,...) que dans le cas de situations incidentelles (rupture d'un rond de boîte à gant,...). Dans tous les cas, il convient de limiter la propagation des polluants présents dans l'enceinte confinée à l'extérieur de celle-ci. Pour ce faire, on crée un écoulement d'air contrôlé au niveau de l'ouverture dans un sens préférentiel : c'est le confinement dynamique.

L'étude engagée à l'Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire (IPSN) consiste à aller au delà des tests normalisés prévus pour le contrôle des sorbonnes de laboratoire en termes d'efficacité de confinement. En particulier, elle doit permettre d'améliorer les connaissances relatives à la rétrodiffusion d'un polluant gazeux ou particulaire, simulé par des techniques de traçage, au travers d'une barrière de confinement dynamique.

L'objet de cette communication vise à montrer l'insuffisance des tests normalisés actuellement appliqués lors du contrôle des performances d'un système de confinement dynamique ; en effet, les écarts observés entre les résultats obtenus pour deux traceurs de taille différente (0,15 μm et 5 μm) sont suffisamment importants pour devoir être pris en considération.

INTRODUCTION

La manipulation de substances dangereuses, radioactives ou bien toxiques, dans le milieu industriel nécessite de mettre en oeuvre des techniques de protection des travailleurs directement exposés. Les risques d'exposition à ces substances augmentent dès lors qu'elles sont émises sous la forme de particules en suspension dans l'air dont la fonction de transfert d'un point à un autre d'un système est principalement régi par le phénomène de diffusion turbulente propre à l'écoulement, auquel viennent se superposer les mécanismes propres à la physique des aérosols. La plupart des systèmes de protection mis en oeuvre sont basés sur le principe du confinement dynamique. L'adoption de ce principe aux ouvertures amène à se poser les questions suivantes : quelle doit être la valeur de vitesse minimale à imposer et selon quels critères, pour garantir une efficacité optimale du système de confinement ?

Les tests standards réalisés lors du contrôle normalisé des sorbonnes de laboratoire prévoient, outre la mesure d'une vitesse moyenne à l'ouverture, l'utilisation d'un gaz traceur, émis à l'intérieur de celle-ci et mesuré à l'extérieur en différents points au niveau du plan d'ouverture, pour juger des performances du confinement. L'objectif des études menées au Laboratoire d'Etudes des transferts de Contamination, Epuration et Ventilation de l'IPSN concerne l'évaluation des principaux paramètres qui régissent le risque de rétrodiffusion d'un polluant au travers d'une barrière de confinement dynamique, ainsi que les effets de chacun d'entre eux : il s'agit essentiellement de la géométrie et de la taille de l'ouverture, de la vitesse d'air entrante, de la nature même de l'aérocontaminant ou bien encore de la présence ou non d'obstacles.

Ce document consiste en une synthèse des principaux résultats obtenus à partir d'une enceinte ventilée expérimentale. Les techniques de traçage gazeux et particulaire sont mises en oeuvre pour la caractérisation des coefficients de rétrodiffusion. Ces mesures sont associées à celles obtenues avec la technique d'Anémométrie Laser à Effet Doppler pour la quantification des vitesses d'entrée d'air au niveau de l'ouverture de l'enceinte. Ces deux techniques permettent ainsi de corréler les coefficients de rétrodiffusion avec les paramètres aérauliques du système.

- La maquette

Il s'agit d'une enceinte ventilée, équipée d'une paroi avant mobile, de largeur 1 m et de hauteur d'ouverture variable, la hauteur maximale avoisinant 1 m. Elle est équipée d'un système de ventilation placé en partie supérieure ; le débit d'air imposé est facilement ajustable à l'aide d'un organe de réglage.

- Les dispositifs de production des traceurs

Ils dépendent du type de traceur employé. Nous utilisons un traceur gazeux, l'hélium, ainsi qu'un traceur particulaire, la fluorescéine sodée. Le premier est produit directement à partir d'une bouteille de gaz pur sous pression qui délivre un débit contrôlé et mesuré à l'aide d'un débitmètre massique. Les particules de fluorescéine sont, quant à elles, produites selon deux techniques différentes en fonction de la granulométrie souhaitée : un générateur pneumatique pour la production de particules de diamètre aérodynamique médian massique 0,15 μm et un générateur à pulvérisation ultrasonore pour la production de particules de diamètre 5 μm .

- Les dispositifs de prélèvement des traceurs

Ils dépendent également de la nature du polluant testé. Les concentrations en hélium sont délivrées en continu par un spectromètre de masse. Ce type de détection permet de suivre en temps réel l'évolution des concentrations en différents points et de visualiser les phénomènes de bouffées. Les concentrations en fluorescéine sont obtenues, quant à elles, grâce à des mesures fluorimétriques réalisées à partir des filtres de prélèvement conditionnés. Il s'agit d'une technique de détection en différé des concentrations intégrées sur la durée totale du prélèvement. Elles n'autorisent pas, à l'inverse de la spectrométrie hélium, un suivi en temps réel des phénomènes de bouffées. L'ensemble de ces techniques permet d'accéder aux concentrations particulières et gazeuses, donc aux coefficients de rétrodiffusion du traceur, à la fois au niveau de l'ouverture de l'enceinte et au niveau du mannequin.

- Technique de mesure des composantes de la vitesse de l'air

Une sonde d'Anémométrie Laser à Effet Doppler du type Flowlite (DANTEC) est mise en oeuvre pour la caractérisation des écoulements d'air en termes de vitesse au niveau de l'ouverture de l'enceinte et à proximité du mannequin. Cette technique offre l'avantage d'être peu encombrante et non intrusive du fait de la focale utilisée (400 mm). Une rotation de la sonde permet d'accéder à une seconde composante de vitesse en un même point. Finalement, elle permet de quantifier en différents points les composantes de vitesse normale U et tangentielle V au plan de l'ouverture de l'enceinte ventilée. Le principe de base de cette technique repose sur la diffusion de lumière émise par des particules traceur injectées dans l'écoulement : nous utilisons de fines gouttelettes d'huile (ONDINA) produites par un générateur adapté (DANTEC). La taille de ces particules est suffisamment fine pour assimiler leur comportement aéraulique à celui d'un gaz.

Localisation des points de mesure

La figure 1 ci-après indique la disposition des nombreux points de mesure au niveau du plan d'ouverture de l'enceinte et du mannequin. Le maillage en pointillés indique les plans et lignes concernés par la sonde d'anémométrie pour les 2 composantes de vitesse U et V . Les ronds noirs correspondent aux points de prélèvement du traceur particulaire : 4 sont positionnés au niveau du plan d'ouverture sur les bords, et 2 sont positionnés sur le mannequin, au niveau de son abdomen (A) et de ses voies respiratoires (N). Les points situés sur les bords correspondent aux points les plus significatifs en termes de rétrodiffusion, identifiés lors des précédentes études. La scrutation de l'hélium est réalisée sur la ligne traversant Mh et Mb.

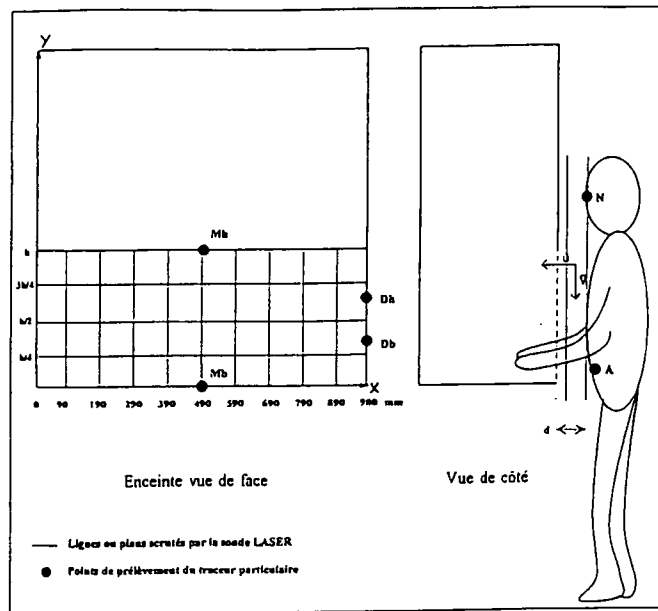


Figure 1 : Localisation des points de mesure pour chacune des techniques

Configurations testées

Les essais sont réalisés pour diverses configurations géométriques et aérodynamiques de l'enceinte, en présence ou non d'un mannequin :

↳ 3 hauteurs d'ouverture sont testées : $h = 0,4 \text{ m}$, $h = 0,5 \text{ m}$, $h = 0,6 \text{ m}$,

↳ 3 vitesses entrantes sont imposées : $v = 0,3 \text{ m/s}$, $v = 0,5 \text{ m/s}$, $v = 1 \text{ m/s}$.

Il est à noter que les conditions normalisées prévues pour le contrôle des sorbonnes de laboratoire [2] préconisent les paramètres de test suivants : $h = 0,4 \text{ m}$ et $v = 0,5 \text{ m/s}$ (vitesse moyenne mesurée dans le plan d'ouverture).

II. Principaux résultats [3]

Profils de vitesse

Plusieurs cartographies des composantes de vitesse ont été réalisées dans diverses configurations de l'enceinte, avec ou sans mannequin. A titre d'exemple, nous présentons dans les figures suivantes les cartographies de la composante U (normale) mesurée dans un plan proche de celui de l'ouverture en l'absence du mannequin d'abord, puis avec celui-ci ensuite, dans les conditions de test normalisées ($h = 0,4 \text{ m}$ et $v = 0,5 \text{ m/s}$) ; les figures 2 et 3 représentent des cartographies 2D.

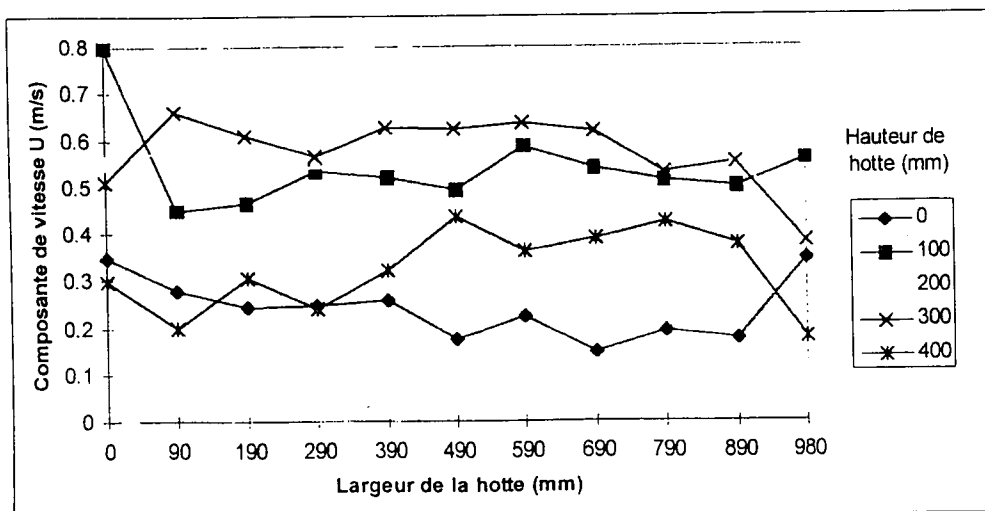


Figure 2 : Evolution de la composante U - SANS MANNEQUIN

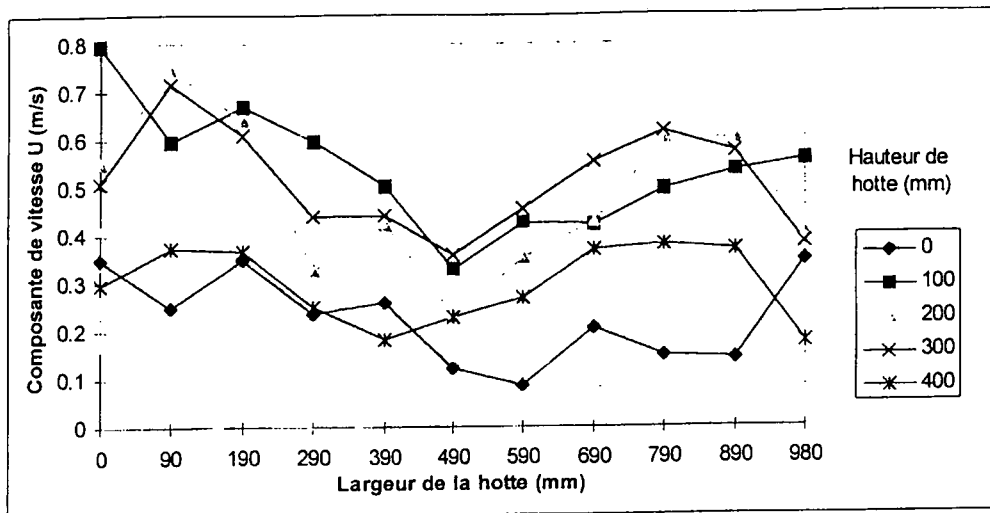


Figure 3 : Evolution de la composante U - AVEC MANNEQUIN

Les figures 4 et 5 représentent, quant à elles, une visualisation davantage qualitative de la distribution des vitesses U dans le plan (cartes 3D).

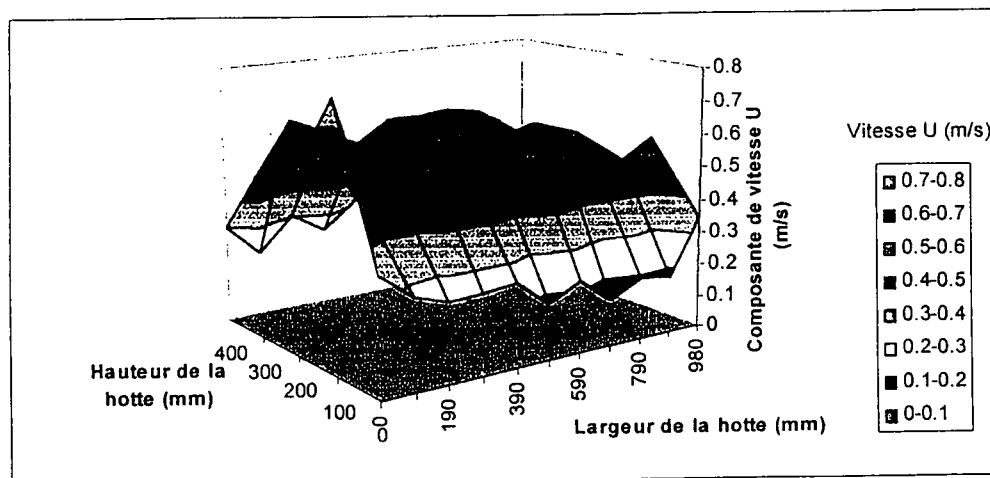


Figure 4 : Cartographie de la composante U - SANS MANNEQUIN

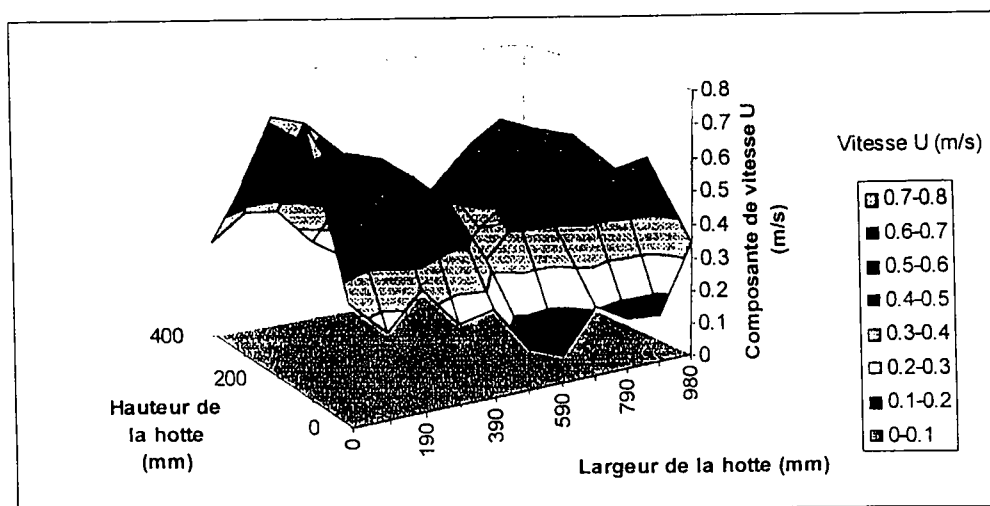


Figure 5 : Cartographie de la composante U - AVEC MANNEQUIN

Conclusions

Globalement, les vitesses normales au plan d'ouverture démontrent une grande hétérogénéité et sont d'autant plus importantes que l'on s'approche de la partie supérieure de la hotte (du fait de l'extraction d'air en partie haute de celle-ci). Les cartographies des composantes de la vitesse indiquent que les vitesses les plus faibles associées aux turbulences les plus importantes sont mesurées à proximité des bords de l'enceinte, quelle que soit la configuration testée, en présence ou non d'un mannequin. La présence de ce dernier creuse de manière significative les profils de vitesse mesurés au centre du plan ; par contre, les vitesses U mesurées de part et d'autre du mannequin augmentent sensiblement pour décroître à nouveau sur les bords latéraux de l'enceinte.

Coefficients de rétrodiffusion gazeux

Les résultats issus des scrutations de l'hélium réalisées dans le cas d'une hauteur d'ouverture normalisée ($h = 0,4$ m) sont présentés dans la figure 6. Ils sont obtenus pour diverses valeurs imposées de la vitesse entrante, sans mannequin puis avec celui-ci. Ces résultats sont issus d'une série d'essais où sont testées d'autres configurations de l'enceinte mais non présentés ici.

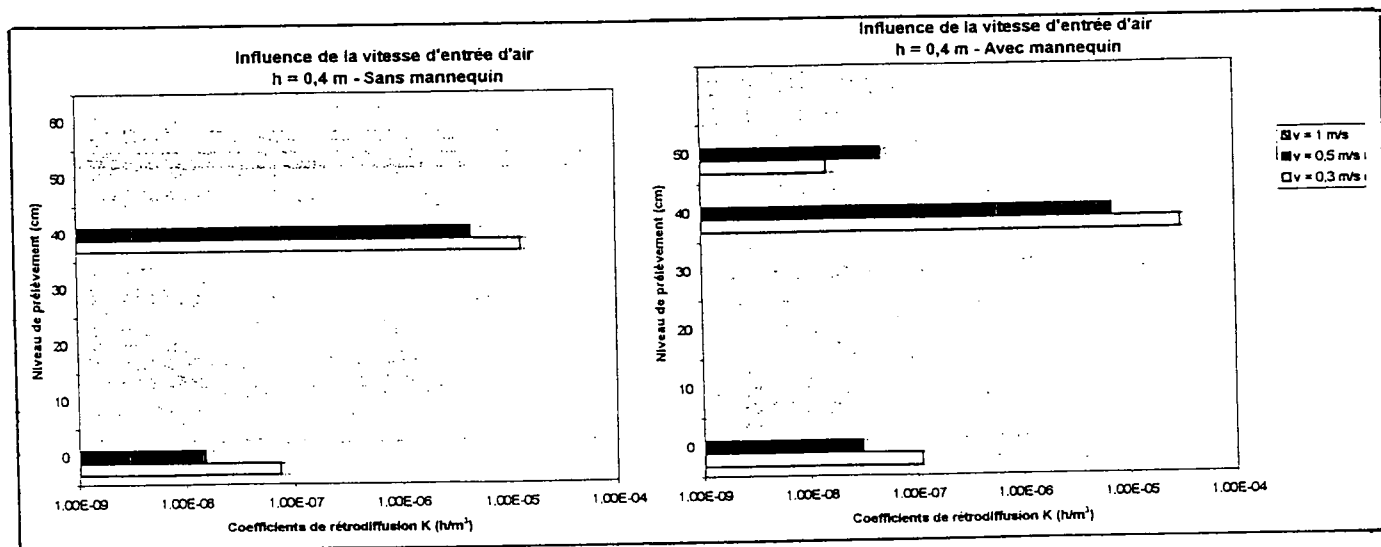


Figure 6 : Influence de la vitesse d'entrée d'air

Commentaires

Globalement, la rétrodiffusion gazeuse existe en parties supérieure et inférieure de l'enceinte, jamais au centre. Elle est la plus significative en partie supérieure et pour la vitesse la plus faible.

Bien que dans chacun des cas testés, la présence d'un mannequin intensifie légèrement le phénomène de rétrodiffusion, la protection de ce dernier est rarement mise en défaut et notamment dans les conditions normalisées : aucune rétrodiffusion significative n'est décelée à proximité de ses voies respiratoires malgré la présence de polluant en partie haute dans le plan de l'ouverture ; un phénomène de reprise du polluant est ainsi mis en évidence.

Coefficients de rétrodiffusion particulaires

Comparaison des résultats obtenus pour les deux tailles de particules testées (0,15 et 5 μm)

Les graphes de la figure 7 présentent les résultats, en termes de coefficients de rétrodiffusion, obtenus pour des configurations identiques dans le cas d'un aérosol test de 0,15 μm et d'un aérosol test de 5 μm , en présence d'un mannequin.

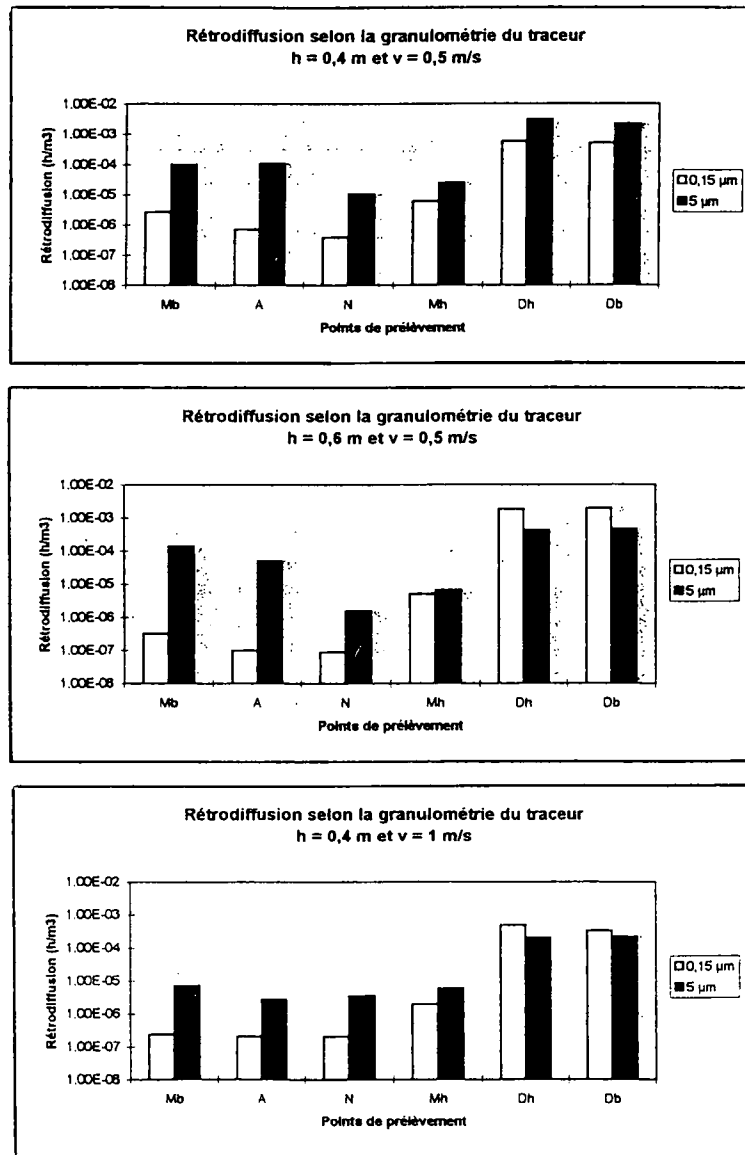


Figure 7 : Rétrodiffusion des particules de 0,15 μm et des particules de 5 μm .

Commentaires

De manière générale, les coefficients de rétrodiffusion mesurés pour les particules de 5 μm sont, pour toutes les configurations testées, supérieurs à ceux obtenus pour les aérosols de 0,15 μm . Dans le cas des conditions normalisées, la rétrodiffusion mesurée au niveau du mannequin dépend de la granulométrie mise en oeuvre : les valeurs de K sont ainsi 30 fois plus élevées pour un aérosol de 5 μm prélevé au niveau des voies respiratoires (N) de l'opérateur, et 150 fois plus élevées au niveau de son abdomen (A).

Il est à noter, par ailleurs, que les écarts mesurés entre les deux types d'aérosols sont amplifiés lorsque la hauteur d'ouverture est portée à 0,6 m : on atteint ainsi un facteur 500 entre la rétrodiffusion de l'aérosol de 5 μm et celle de l'aérosol de 0,15 μm au niveau de l'abdomen, et un facteur 30 à proximité des voies respiratoires du mannequin.

Lorsqu'une vitesse entrante égale à 1 m/s est imposée à l'ouverture, pour une hauteur normalisée, l'efficacité de confinement est largement améliorée quelle que soit la granulométrie mais de manière davantage marquée lorsqu'il s'agit de l'aérosol de 5 μm . Toutefois, la rétrodiffusion observée pour cet aérosol en partie basse de l'enceinte, et notamment à proximité de l'abdomen du mannequin, reste supérieure à la valeur significative de 10^{-6} h/m³.

Pour les aérosols les plus fins, ces résultats confirment le phénomène de reprise déjà identifié pour le traceur gazeux, amplifié à plus grande vitesse.

Par contre, du fait de leur inertie, les particules de plus grande taille ne sont pas soumises à ce phénomène et atteignent plus facilement les voies respiratoires de l'opérateur.

Corrélations profils de vitesse et coefficients de rétrodiffusion particulières

L'évolution des profils des vitesses normale et tangentielle acquis précédemment montre les fortes perturbations de l'écoulement lorsque le mannequin est présent, principalement localisées entre le buste de celui-ci et le plan de l'ouverture : à ce niveau, les composantes de vitesse sont essentiellement tangentielles, ce qui signifie que l'écoulement s'effectue latéralement le long du torse de l'opérateur et sur ses côtés. On peut émettre alors l'hypothèse qu'un aérosol diffusé à l'extérieur de l'enceinte, notamment en partie basse de celle-ci, repris non pas directement par l'air d'aspiration de la hotte mais par celui qui s'écoule le long du torse du mannequin, puisse atteindre par la suite les voies respiratoires de celui-ci. Les études prévues dans la suite de ce programme de recherche doivent permettre de confirmer ou non cette hypothèse.

III. Conclusion

La synthèse des résultats récents, concernant l'étude de la validité des critères imposés par la réglementation européenne, montre sa faiblesse dès lors qu'il s'agit de contrôler l'efficacité de confinement d'un système ventilé pour un polluant non plus gazeux ou submicronique, mais un polluant particulaire dont la taille est supérieure à quelques microns. Dans ce cas, nous avons montré que les tests effectués à partir de la technique par traçage gazeux pour la mesure de la rétrodiffusion peuvent ne plus être représentatifs des conditions réelles de fonctionnement du système : l'exposition d'un opérateur à un polluant toxique du type particulaire (poudre...) peut être nettement sous-estimée.

Cette étude conforte les premiers résultats acquis lors de précédentes études menées à l'IPSN : le seul critère de vitesse imposé à l'ouverture d'une enceinte est insuffisant pour juger, dans tous les cas, les performances d'une enceinte ventilée. A ce critère doit s'ajouter, comme cela est prévu dans certaines normes, une limite de rétrodiffusion du polluant. Cependant, aucune norme ne prend en compte, à l'heure actuelle, la nature même du polluant. Il s'avère pourtant que celle-ci joue un rôle déterminant en termes de rétrodiffusion mesurée au niveau des voies respiratoires de l'opérateur. Des hypothèses sont émises pour expliquer ce phénomène en associant les résultats issus des techniques de vélocimétrie laser à celles employées pour la caractérisation des coefficients de rétrodiffusion et de la granulométrie des particules test.

Références

- [1] N. DUPOUX, J.C. LABORDE, V.M. MOCHO, C. PREVOST
Experimental and numerical studies of dynamic confinement at a workplace
Ventilation '97 : Global Developments in Industrial Ventilation
Proceedings of the 5th International Symposium on Ventilation for Contaminant Control,
Ottawa, Canada, september 1997
- [2] Equipement de protection collective
Sorbonnes de laboratoires
Norme XP X 15-203, septembre 1996
- [3] Etude du confinement dynamique au niveau de l'ouverture d'une enceinte en présence d'un
mannequin : rapport d'avancement
N. DUPOUX, C. PREVOST
DPEA/SERAC - Rapport interne d'étude SERAC/LECEV/98-32

UN EPURATEUR CENTRIFUGE d'AIR.

P. SAGET

36, avenue de la Grande Armée, Paris.

Texte complet de la communication résumée du 8 Décembre 1998, sous le Titre: "Un épurateur centrifuge d'air"

1) Rappel de la situation du développement du TCG en Décembre 1997

Cette situation a fait l'objet de la communication du 3 Décembre 1997, intitulée : Epuration de l'air atmosphérique. Nouveau procédé basé sur le champ centrifuge. Elle se terminait par la description de l'appareil à cette date, résumée sur le Schéma FOLIO 7, Fig 1, qui est repris ci-joint. L'essentiel du principe de l'appareil était une double centrifugation; la première en descendant le long de la périphérie du rotor, la deuxième en remontant dans le rotor, à travers les fentes radiales des disques (Voir en haut à gauche du Schéma ci-dessus).

2) Nouveaux développements

Les essais continus effectués avec le TCG ont permis de découvrir certains phénomènes, qu'il a fallu modifier ou annuler, pour accroître l'efficacité et les aptitudes globales;

2.1) Fuites internes. Cas N° 28.(Demande de Brevet PCT/FR98/01863 du 28 Août 1998) Pour Europe, U.S.A., Canada, Mexique, Brésil.

Ce phénomène était dû à la différence de pression statique entre la zone périphérique et la zone interne au rotor. Cette différence est engendrée par l'aspiration vers l'extérieur, au sommet du rotor, de l'air épuré. Elle correspond à la perte de charge sur la ligne de courant le long de la Ligne F sur le Schéma FOLIO 7. Une partie de l'air peut donc by-passer partiellement le rotor, et passer directement de la zone périphérique à la zone des fentes entre les disques. Ce phénomène est à l'origine, en premier lieu d'une réduction d'efficacité primaire, et en second lieu d'une remise en suspension de particules ou gouttelettes proches de la paroi.

La solution a été, comme représenté sur le Folio 10, la modification de la disposition des pales verticales périphériques, qui assurent la mise en vitesse de rotation initiale du gaz. Ces pales initialement radiales, ont été inclinées. Leur ensemble se comporte alors comme un rotor de ventilateur centrifuge basse pression. Elles engendrent une contrepression vers la périphérie, qui s'oppose aux phénomènes de by-pass ci-dessus. Elles peuvent également assurer une légère circulation de gaz de la zone des fentes vers la périphérie (Folio 11), ainsi que des recyclages locaux favorables en particulier à des opérations de lavage ou de traitement physico-chimique (Voir ci-après)

2.2) Collecte périphérique. Cônes statiques

Sur l'appareil initial (Voir FOLIO 12), l'empilage de disques ou cônes rotatifs était complété par un empilage de cônes récepteurs **statiques**. Ces derniers présentaient des avantages et des inconvénients.

- Ils interceptaient obliquement les trajectoires des gouttelettes ou particules et leur communiquaient une impulsion vers le bas favorable à leur évacuation.

- Il était donc nécessaire de ménager, à leur périphérie, un jeu relativement important pour la descente des produits collectés.

- Le gaz traité suivant une trajectoire ascendante dans l'appareil, une fraction non négligeable ne passait pas à travers les disques, mais par les jeux, d'une part entre les disques et les cônes, et d'autre part entre les cônes et la paroi. Ce phénomène était intensifié par le fait que les disques comportaient des pales radiales en bord de fentes, qui tendaient à créer une contrepression dirigée vers le bas. Le débit de gaz traversant les jeux passifs, **ne comportant pas une telle contrepression**, s'en trouvait donc relativement accru, par rapport au débit traversant les fentes.

- La qualité de construction des disques et des cônes, aussi élevée qu'elle fût, restait une qualité de tôlerie courante. Par suite, au niveau du jeu entre disques et cônes, de faibles différences de hauteur des cercles en présence étaient inévitables, et augmentaient très sensiblement la section réelle de passage du gaz s'écoulant vers le haut.

- Lorsque les produits séparés avaient une très forte tendance au colmatage (TEFAL dispersé par exemple), il se formait un dépôt sur les cônes s'écoulant beaucoup trop lentement et pouvant finalement remplir totalement la zone des cônes statiques.

- La montée du gaz à travers les jeux rencontrait la totalité des particules ou gouttelettes éjectées à la périphérie des disques et en remettait en suspension une proportion d'autant plus grandes qu'elles étaient plus fines. Ce défaut était pratiquement prohibitif pour les particules solides très dures et parfaitement sèches.

En conclusion; le TCG de cette ancienne conception était un "laveur" exceptionnel, utilisant **d'infimes quantités d'eau**, et ne se colmatant jamais. Il était déjà le seul à éliminer des dispersions pâteuses très colmatantes et même collantes, là où tous les autres matériels avaient échoué (Exemples de ROUSSEL-UCLAF et FOULD SPRINGER). Il restait par contre trop "imprévisible" alors que le but de l'ensemble de l'opération était un appareil **totalement polyvalent**, pouvant séparer, sans adaptation appréciable, tous les types d'aérosols, aux concentrations les plus extrêmes, et insensible aux variations de concentration, même très importantes, en cours d'utilisation.

Afin de retrouver les avantages de ces cônes statiques, sans leurs inconvénients, nous avons adopté la disposition figurant sur les folios **11 et 13**. Ce dernier contient la Fig. 4 du dernier Brevet, sur laquelle apparaît, à gauche, le nouvel empilage de cônes statiques.

Ainsi qu'on peut le constater à l'examen de ces deux documents, l'empilage de cônes se trouve à l'extrême périphérie de l'appareil, tout en laissant un jeu important par rapport à la paroi. Le gaz **descendant** agit donc dans un sens favorable, en poussant vers le bas les particules ou gouttelettes déposées, ce qui, ajouté à l'impulsion provenant de la vitesse tangentielle du rotor, ainsi que la gravité, assure en permanence une propreté totale de l'empilage de cônes.

2.3) Recette des particules ou gouttelettes à la partie inférieure.

Vous constaterez, à l'examen du FOLIO 7 que la partie inférieure de l'appareil comporte (N^os 62 et 64) un ensemble de cylindres coaxiaux qui ont pour but de régulariser le mouvement de rotation de gaz et de particules. Le gaz, à ce niveau, ne débite plus, puisque le flux circulant, continuant à suivre la ligne F, a fait demi-tour pour remonter à travers l'empilage de disques. Toutefois, il se produit en permanence, comme nous l'avons constaté au cours des essais antérieurs, un transfert continu d'énergie cinétique à la masse d'air emprisonnée dans les cylindres, **maintenant sa rotation**.

Il se produit donc dans cette zone une séparation centrifuge complémentaire, dans des conditions très favorables de stabilité de rotation du gaz, et de rassemblement des particules ou gouttelettes sur l'intérieur des cylindres. La rotation du gaz, associée à la pesanteur, maintient un écoulement total et stable des impuretés vers la goulotte, ou les deux goulottes symétriques.

Il est important de noter que, l'appareil étant en dépression par l'action du ventilateur d'extraction aval, la sortie des produits extraits ne peut s'effectuer qu'au travers d'écluses rotatives ou tout autre dispositif équivalent.

2.4) **Traitement interne au TCG.**

Le principe de ce traitement par des liquides ou éventuellement des poudres de divers types est représenté sur le FOLIO 11. Dans le cas le plus fréquent, relatif à l'introduction de liquides, ceux-ci sont amenés au voisinage de l'arbre par une tuyauterie alimentant un collecteur circulaire (Voir en bas de Schéma). Celui-ci, sous l'influence du champ centrifuge, forme un anneau de liquide, l'excès de liquide débordant sur le seuil de révolution inférieur.

L'anneau de liquide alimente une série de tubes de répartition pulvérisant le liquide à plusieurs niveaux. Sous l'action du champ centrifuge, les flux de liquide pulvérisé ainsi introduits traversent la masse de gaz vers la périphérie. Le lavage ou le traitement plus complexe (Neutralisation par exemple) ainsi réalisé est particulièrement efficace, car beaucoup moins aléatoire dans sa répartition qu'un lavage conventionnel.

Ce dispositif permet également de générer et d'injecter des mousses, qui sont actuellement étudiées en collaboration avec le C.E.A.

2.5) Evolution générale de la forme du TCG.

La forme générale du TCG évolue actuellement de celle du FOLIO 7 à celle du FOLIO 14. Ce dernier ne constitue toutefois qu'une approximation initiale peu détaillée. Il est intéressant, en ce qui concerne la zone de pénétration du gaz dans le rotor de se reporter au FOLIO 11, ainsi qu'au plan préliminaire du FOLIO 15.

Il est également intéressant de comparer les bases des appareils FOLIO 7 et FOLIO 14. En effet, dans le deuxième cas, les cylindres coaxiaux ont été remplacés par des cônes coaxiaux. Cette disposition présente plusieurs avantages:

- Les cônes, tout en possédant les avantages des cylindres, récupèrent une énergie cinétique plus élevée des particules provenant du rotor (Combinaison partielle de la composante tangentielle et d'une composante radiale)

- La composante radiale achemine les particules vers les goulottes, qui sont situées sur un plus grand diamètre, plus efficacement.

- La place disponible pour le moteur et les circuits électriques et hydrauliques est plus importante et facilite les interventions éventuelles. Par ailleurs, des moteurs plus puissants pourront être nécessaires pour des applications spécialement difficiles, et inaccessibles à toute autre technique de séparation.

3) **Orientations majeures de développement ultérieur.**

Il existe plusieurs voies permettant d'accroître fortement les possibilités du TCG, en fonction des problèmes à résoudre, éventuellement plus généraux qu'une simple filtration.

3.1) Combinaison du TCG avec la filtration sur membrane et céramique.

- Il ne s'agit absolument pas d'une simple mise en série ou d'une combinaison "extérieure". de deux principes. Des essais antérieurs ont démontré avec la plus grande certitude qu'il était possible d'intégrer des membranes de microfiltration dans le TCG, sous réserve que celui-ci comporte tous les perfectionnements décrits ci-dessus.

Le principe est en réalité simple. La partie périphérique du TCG reste inchangée, et permet pratiquement d'éliminer un pourcentage élevé en masse de l'aérosol. La partie centrale du rotor, qui joue le rôle de finisseur, est remplacée par un cylindre constitué par une combinaison de membrane de microfiltration, d'un support céramique et d'un support métallique ne participant pas à la filtration, mais uniquement à la résistance mécanique.

Il semble que des finesses de séparation **très inférieures au μ** peuvent être ainsi atteintes.

Il est à noter que le décolmatage ou l'absence de colmatage est dû à la circulation du gaz à travers le milieu filtrant de l'extérieur vers l'intérieur. La force centrifuge s'oppose alors à la formation d'un dépôt extérieur. Il est encore difficile de dire s'il se forme un dépôt temporaire, ou s'il se crée, au voisinage externe de la paroi filtrante une zone à forte concentration en aérosol, et à forte agglomération, sur laquelle le champ centrifuge a une influence amplifiée. La matière ainsi récupérée est finalement rejetée à la paroi périphérique, où elle se trouve incorporée à la matière séparée antérieurement.

Les études et essais en cours portent sur les débits de gaz à travers la membrane, sur les débits de matière rejetés par la membrane sous l'action du champ centrifuge, et sur les pertes de charge associées. Les problèmes d'étanchéité ne semblent pas excessifs.

3.2) Combinaison du TCG avec des phénomènes de cryo-condensation.

Il nous a déjà été demandé si le TCG pouvait séparer des phases gazeuses. Ceci est théoriquement possible moyennant l'emploi de champs centrifuges extrêmement élevés, supérieurs à 50000 G. Le rendement reste généralement faible, et il faut employer des appareils en série (Cascade) comme cela est effectué en séparation isotopique (U_{235} et U_{238} sous forme d'hexafluorures)

Il existe toutefois un cas particulièrement favorable, qui est celui de vapeurs proches de leur température de condensation. Ce problème est courant, en particulier dans le cas des procédés mettant en oeuvre des solvants. L'élimination de ces vapeurs (Composés organiques volatils ou C.O.V.) est actuellement effectuée par des procédés d'emploi coûteux et difficile: Adsorption sur charbon actif, incinération, cryo-condensation conventionnelle. Le TCG peut apporter une solution plus facile et moins coûteuse.

Il faut rappeler en premier lieu que, lorsque les vapeurs sont peu concentrées, leur pression partielle dans le mélange avec l'air est faible, et la température de condensation très basse. Le principe d'emploi du TCG repose sur une centrifugation sous un champ centrifuge supérieur à 5000 G. Les molécules de solvant étant pratiquement toujours beaucoup plus grosses que les molécules d'oxygène et d'azote, elles tendent à se concentrer à la périphérie, où leur pression partielle devient suffisamment élevée pour permettre la condensation à une température raisonnablement basse voisine de 0° C. le solvant condensé est alors évacué avec les poussières, alors que celles-ci constituent une difficulté avec les autres procédés. La réfrigération peut être commencée en amont de l'appareil, et intensifiée au niveau de la zone de séparation grâce à une double paroi.

3.3) Réactions internes. Cas particulier des neutralisation par liquides alcalins et mousses.

Le TCG peut être adapté de façon simple pour être utilisé comme un mélangeur-réacteur-séparateur très efficace. La rapidité de la réaction est accrue par son déroulement sous un champ centrifuge très intense, de l'ordre de plusieurs milliers de G. Le principe du dispositif adopté est représenté sur le FOLIO 11. On voit que le réactif gazeux pénètre à la partie supérieure du corps de l'appareil. Il peut en réalité être constitué par de l'air contenant un aérosol à traiter et à éliminer. Il traverse initialement la partie supérieure périphérique de l'appareil où il peut être débarrassé de polluants parasites dispersés, solides ou liquides, susceptible de perturber la réaction principale. Il continue ensuite sa descente et passe dans une zone où sont disposés les cônes statiques déjà mentionnés en 2.2. Il reçoit alors une injection transversale de réactif dispersé, dont la circulation radiale est due au champ centrifuge. L'intensité de mélange est élevée. Par ailleurs, le réactif poursuit sa trajectoire, tout en se modifiant par suite de la réaction, et se trouve finalement collecté à la périphérie, dans la zone des cônes statiques.

Comme précisé dans la théorie de l'appareil, et schématisé sur le FOLIO 11, le gaz ayant subi ce premier traitement, donc appauvri en éléments de réaction à extraire, remonte ensuite à travers le rotor. Il rencontre alors une deuxième fois le même réactif, pour lequel cette rencontre est la première. Il s'agit donc d'un fonctionnement à contre-courant entre le gaz et le réactif. Au cours de cette rencontre, le gaz appauvri en produit à traiter rencontre un réactif encore loin de sa saturation, donc à son maximum d'efficacité.

Dans les deux cas, le TCG agit également comme séparateur. Il extrait les résultats de la réaction de celle-ci, ce qui l'accélère en la maintenant loin de son état d'équilibre.

L'utilisation de mousses permet d'atteindre des réactivités élevées sans nécessiter d'importantes quantités de liquide. Or le rejet de liquide, en particulier d'eau polluée, constitue un défaut majeur d'un équipement d'épuration d'air, puisqu'il ne fait que déplacer le problème, l'eau devant être épurée.

4) Applications en cours d'exploration.

Les principales applications en cours d'exploration, sur la base des développements ci-dessus, sont les suivantes:

4.1) Épuration de l'air rejeté par les aspirateurs ménagers.

Les aspirateurs ménagers, qui aspirent de l'air poussiéreux, ne peuvent pas rejeter cet air dans l'environnement sans épuration poussée, les granulométries des poussières étant très faibles ($< 1 \mu$). Il y a généralement deux étages d'épuration:

- 1 "sac" de dégrossissage.
- 1 ou deux filtres de finition.

Ces divers éléments doivent être remplacés, quand ils sont colmatés. Ils constituent des déchets s'ajoutant aux poussières recueillies. L'étude en cours a pour but d'utiliser un TCG miniaturisé, rejetant les poussières dans une capacité vidangeable. Il n'y a donc plus de consommables à mettre en décharge en plus des poussières.

Le TCG doit tourner à une vitesse de l'ordre de 24000 tours/min., pour engendrer un champ centrifuge de l'ordre de 20000 G. Les problèmes de fuites sont parmi les plus importants, car les sections de fuite interne augmentent relativement plus vite que les sections débitantes.

4.2) Particules d'échappement de moteurs DIESEL

Ce problème ne peut être considéré comme bien résolu à ce jour, malgré les efforts réels des constructeurs pour améliorer la qualité de la combustion. Il n'est pas en effet certain que la réduction de la masse de particules engendrées constitue un paramètre significatif de la réduction du risque. Il est en réalité probable que les processus de combustion actuels conduisent à l'émission de particules plus fines, donc a priori plus dangereuses par leur pénétration plus poussée dans les voies respiratoires. Elles peuvent également être plus dangereuses par leur nombre, chaque particule constituant potentiellement un centre de stimulation carcinogène, même à très faible dimension.

Il est donc possible que l'amélioration de la combustion tende asymptotiquement vers une limite infranchissable, et qu'il faille impérativement faire appel à une technique d'action directe sur les particules. Des procédés catalytiques de combustion complémentaires sont étudiés. Il ne faut toutefois pas perdre de vue que l'emploi de catalyseurs dans un circuit débouchant à l'atmosphère présente des risques de fuites de catalyseurs qui, aussi faibles soient-elles, peuvent être encore plus dangereuses que les particules.

L'utilisation de filtres d'arrêt des particules ne présente d'intérêt que si elle ne nécessite pas un entretien excessif dû au nettoyage ou au remplacement des filtres.

La solution envisagée avec le TCG est basée sur une épuration très poussée à très haut champ centrifuge, rejetant les particules dans une capacité de collecte. Cette dernière peut être équipée d'une incinération finale par étincelage périodique à très haute température, avec injection d'air, permettant de ne plus rejeter que du CO_2 et de la vapeur d'eau.

4.3) Déchets de combustion contenant du Soufre, du Chlore et du Fluor.

Ces déchets sont de diverses origines.

Ceux contenant du Soufre proviennent de la combustion de combustibles fossiles riches en soufre, et contiennent du SO_2 . Les combustibles, par ordre de pollution croissante sont les fuel-oil lourds, les charbons et les lignites. L'élimination des poussières est relativement classique, et le TCG peut les extraire en continu.

Le Soufre conduit à la formation initiale de SO_2 , s'oxydant progressivement en SO_3 sous l'action de l'énergie solaire, de l'ozone et des NO_x . La formation finale de SO_4H_2 constitue la fin de cette chaîne de réactions. L'action des "pluies acides" quoique contestée par certains semble réelle.

Les gaz de combustion d'incinérateurs d'ordures ménagères et hospitalières peuvent contenir du Soufre également, mais surtout des composés chlorés et fluorés. Ces produits proviennent de la combustion de polymères polychlorés ou polyfluorés. Leur présence conduit à la formation d'acidité chlorhydrique ou fluorhydrique, dont la nocivité est également élevée. La teneur en poussière est relativement plus faible.

Afin d'éliminer l'acidité, il est actuellement généralement admis de mélanger aux gaz une dispersion alcaline neutralisante, à base généralement de Soude ou de Chaux. Les procédés employés peuvent être secs (Dispersion de poudres) ou humides (Dispersion de solutions) avec divers procédés hybrides dits "semi-humides"

Le TCG apparaît comme particulièrement bien adapté à la résolution de ce problème. Dans tous les cas, son champ centrifuge très élevé (Plusieurs milliers de G) permet de ramener la concentration en poussières à moins de 10 mg/Nm^3 .

En ce qui concerne les produits de neutralisation, c'est à dire essentiellement des chlorures et des fluorures, la limite est la même. Toutefois, comme les deux types de produit sont en réalité mélangés dans le TCG et extraits **simultanément**, la limite TOTALE est 10 mg/Nm^3 .

Il est important de noter que les produits de neutralisation sont introduits sous la forme d'une mousse. Celle-ci est constituée par le gaz en tant que phase dispersée (Voir FOLIO 16, déjà présenté dans la communication précédente), et par une solution alcaline combinée à un composé tensio-actif en tant que phase continue. Cette méthode permet, comme montré sur la Fig.2 du FOLIO 16, d'emprisonner les particules à éliminer dans des microbulles, d'où elles ne peuvent s'échapper sans rencontrer une paroi liquide, qui les absorbe. Par ailleurs, au cours du passage de la mousse dans le TCG, elle est progressivement "écrasée", puis brisée, et les particules sont nécessairement transférées dans le milieu liquide. Cette technique permet de conserver la réactivité élevée d'une neutralisation en milieu liquide, beaucoup plus élevée que celle en milieu sec, donc de réduire fortement la consommation de réactif de neutralisation. Toutefois, la quantité de liquide reste très faible, par suite de la haute probabilité de passage des particules dans ce liquide. Le produit rejeté finalement est donc à comparer à une boue compacte et non à une phase liquide diluée.

Le dernier point concerne les dioxines et les furannes, pour les composés chlorés. Il est admis en premier lieu que ces produits, engendrés au cours de la combustion, se fixent sélectivement sur les poussières ou autres particules présentes dans le gaz. Si par suite, l'élimination de ces poussières est très poussée ($< 10 \text{ mg/Nm}^3$), il est pratiquement certain que la concentration des dioxines dans le gaz après élimination de la phase dispersée sera effectivement inférieure à $0,1 \text{ ng/Nm}^3$.

Toutefois, un problème majeur subsiste. Si les dioxines et furannes sont extraites avec les poussières et produits de neutralisation, le produit total rejeté sera toxique et devra être stocké en décharge de première catégorie. Nous étudions par suite un procédé basé sur l'injection à la base du TCG, d'un solvant dont il est connu qu'il dissout les dioxines et furannes, et ensuite les dissocie rapidement en leurs composants. Ce solvant est extrêmement peu coûteux. Il intervient de deux façons:

- Très finement dispersé dans le gaz, il agit comme précisé ci-dessus sur les dioxines et furannes qui s'y trouvent sous diverses formes.

- Il est ensuite centrifugé à la périphérie de l'appareil par le champ centrifuge. Il pénètre alors dans la couche de produits déjà séparés et attaque les dioxines et furannes qu'il contient.

On voit en conclusion que la conception et la réalisation pratique du TCG se prêtent à une action multiple et simultanée sur les gaz de combustion et d'incinération, en ce qui concerne les poussières d'origine, la neutralisation, et enfin les dioxines et furannes.

4.4) Applications variées

Cette expression cache un très grand nombre de problèmes que ne peuvent traiter les appareils actuels de tous types. Ce Marché est très important, mais très difficile à déterminer autrement que par une exploration systématique effectuée par des ingénieurs technico-commerciaux très compétents.

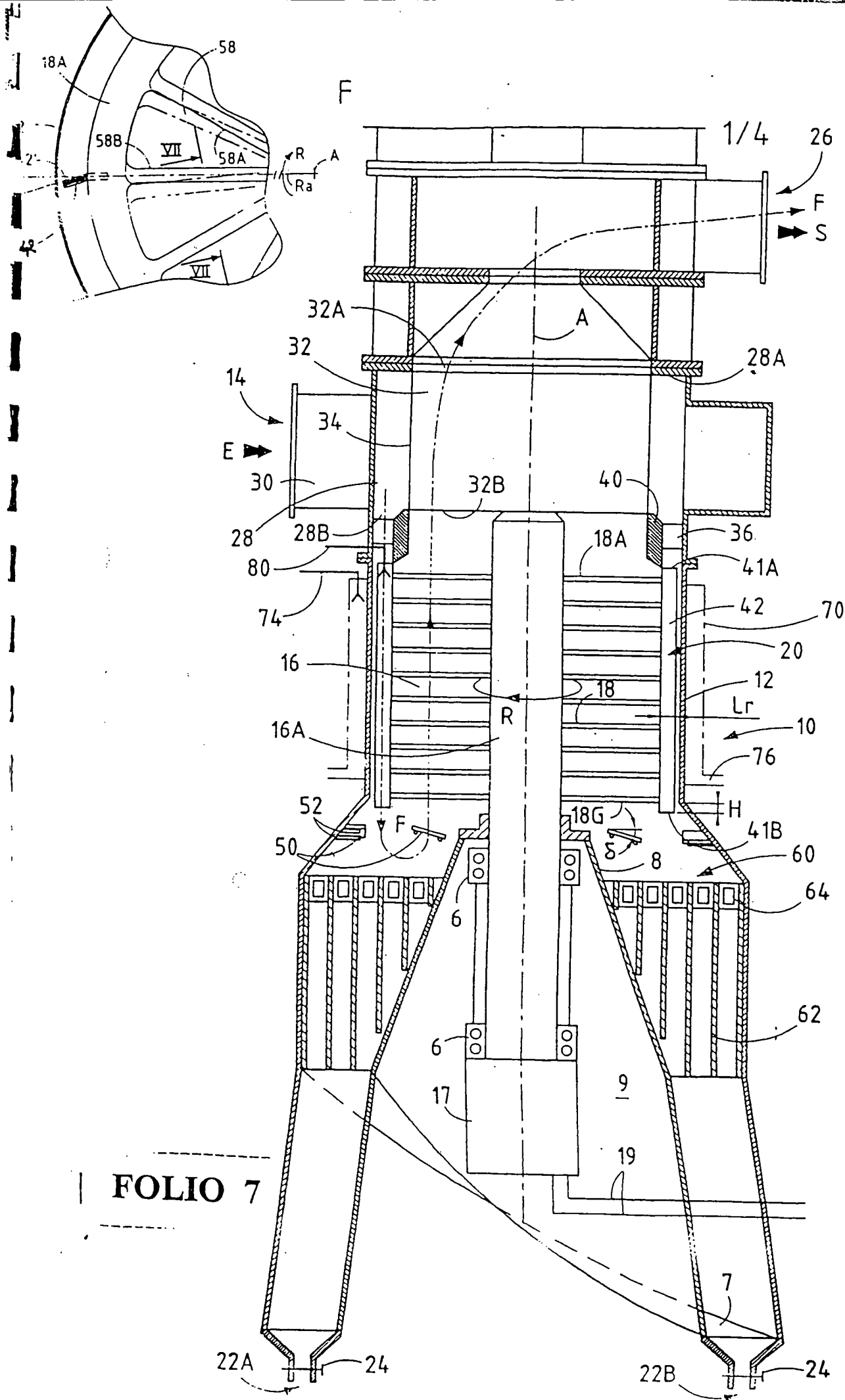


FIG. 1

FOLIO 7

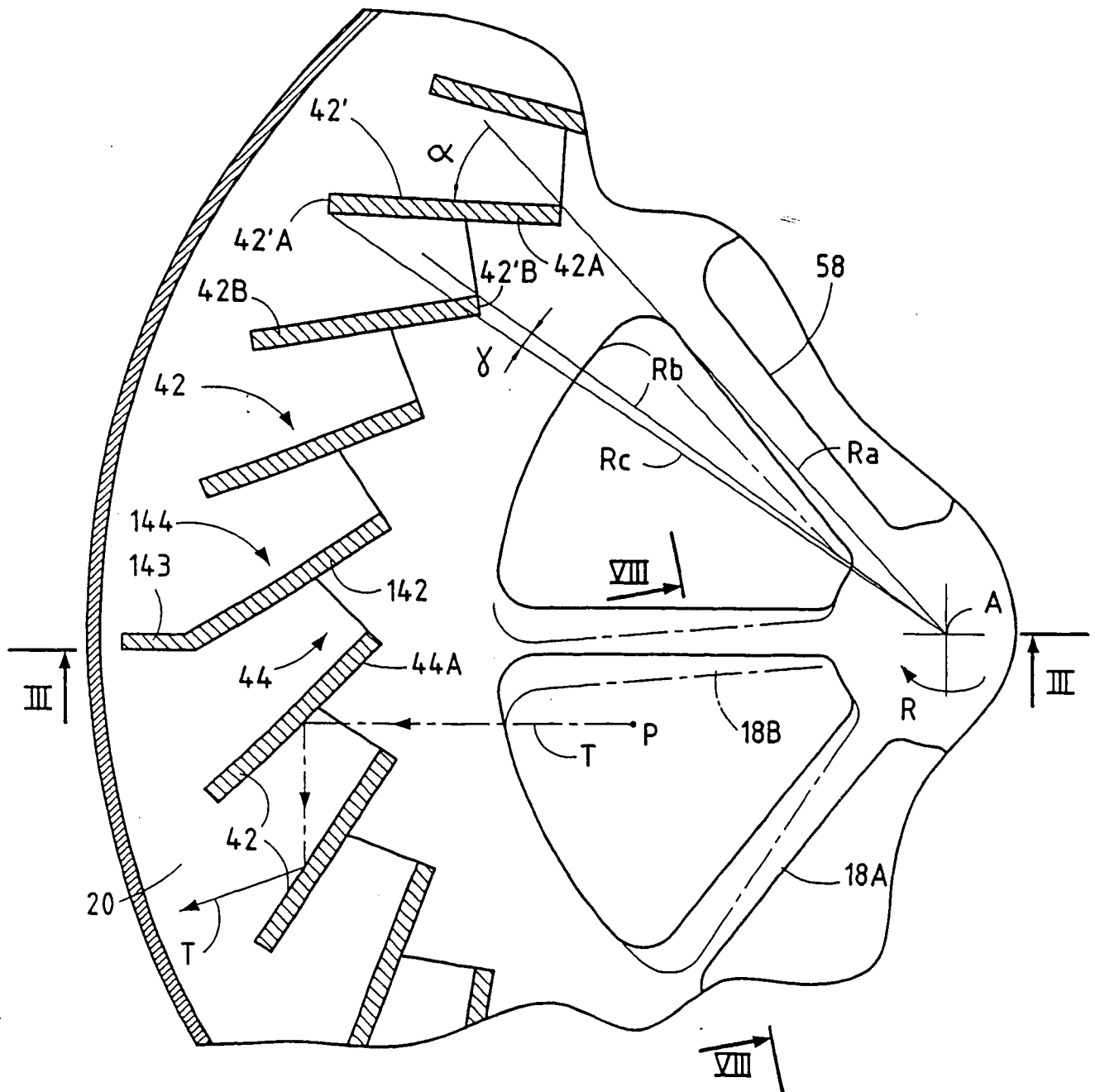


FIG. 2

FOLIO 10

SORTIE VERS VENTILATEUR D'EXTRACTION

PRESION ATMOSPHERIQUE

ZONE EN DEPRESSION

AXE DE ROTATION

DISTRIBUTEUR
HELICOÏDAL FIXE

FOLIO 11

GAZ EPURÉ

PALES DE LA
CAGE PERIPHERIQUE

ENTRETOISES

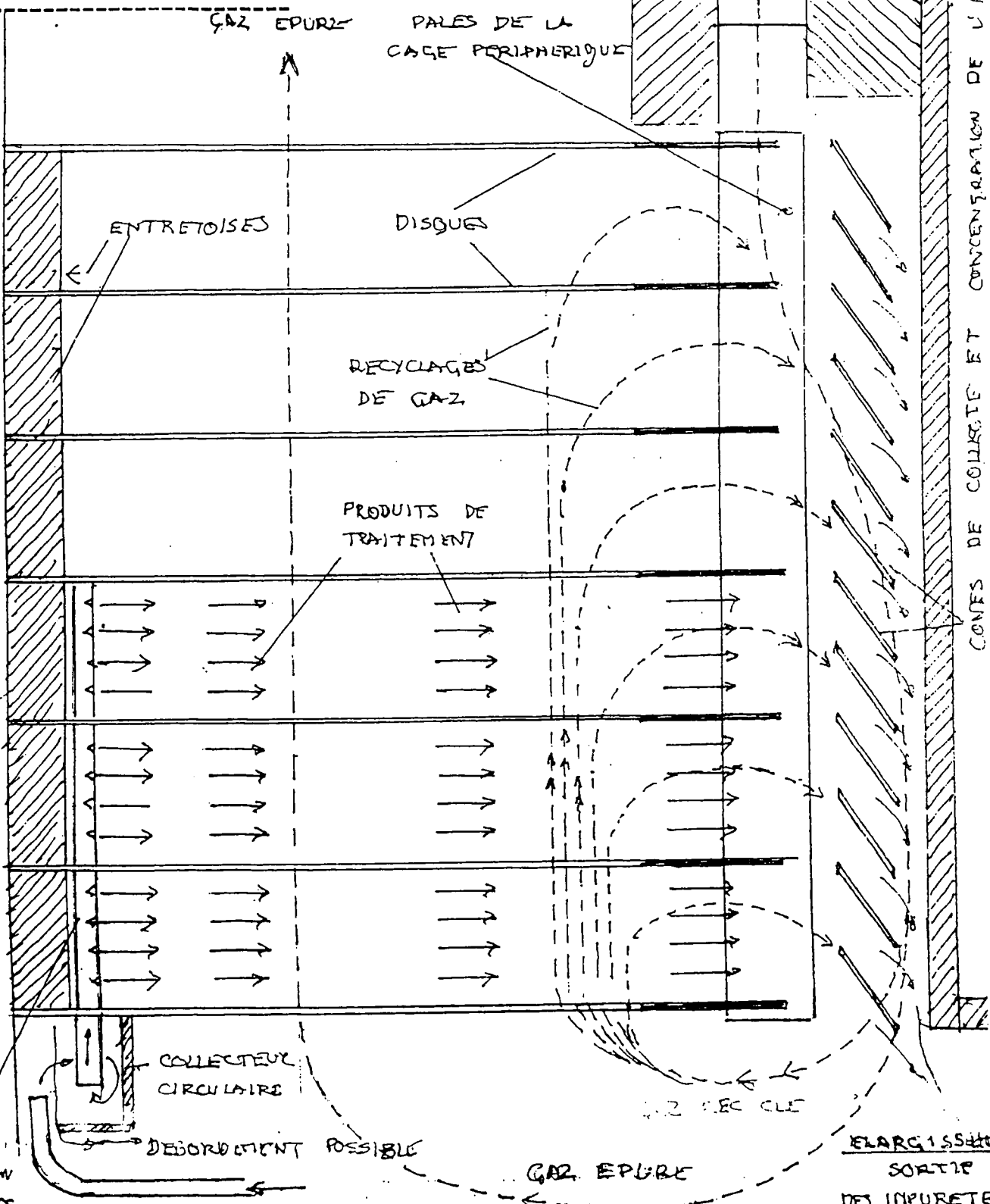
DISQUES

RECYCLAGES
DE GAZ

PRODUITS DE
TRAITEMENT

CONES DE COLLECTE ET CONCENTRATION DE L'AEROSOL

ZONE DE SECHAGE > < ZONE DE TRAITEMENT > <



COLLECTEUR
CIRCULAIRE

DEBORDEMENT POSSIBLE

GAZ RECYCLE

GAZ EPURÉ

ELARGISSEMENT
SORTIE
DES IMPURETES

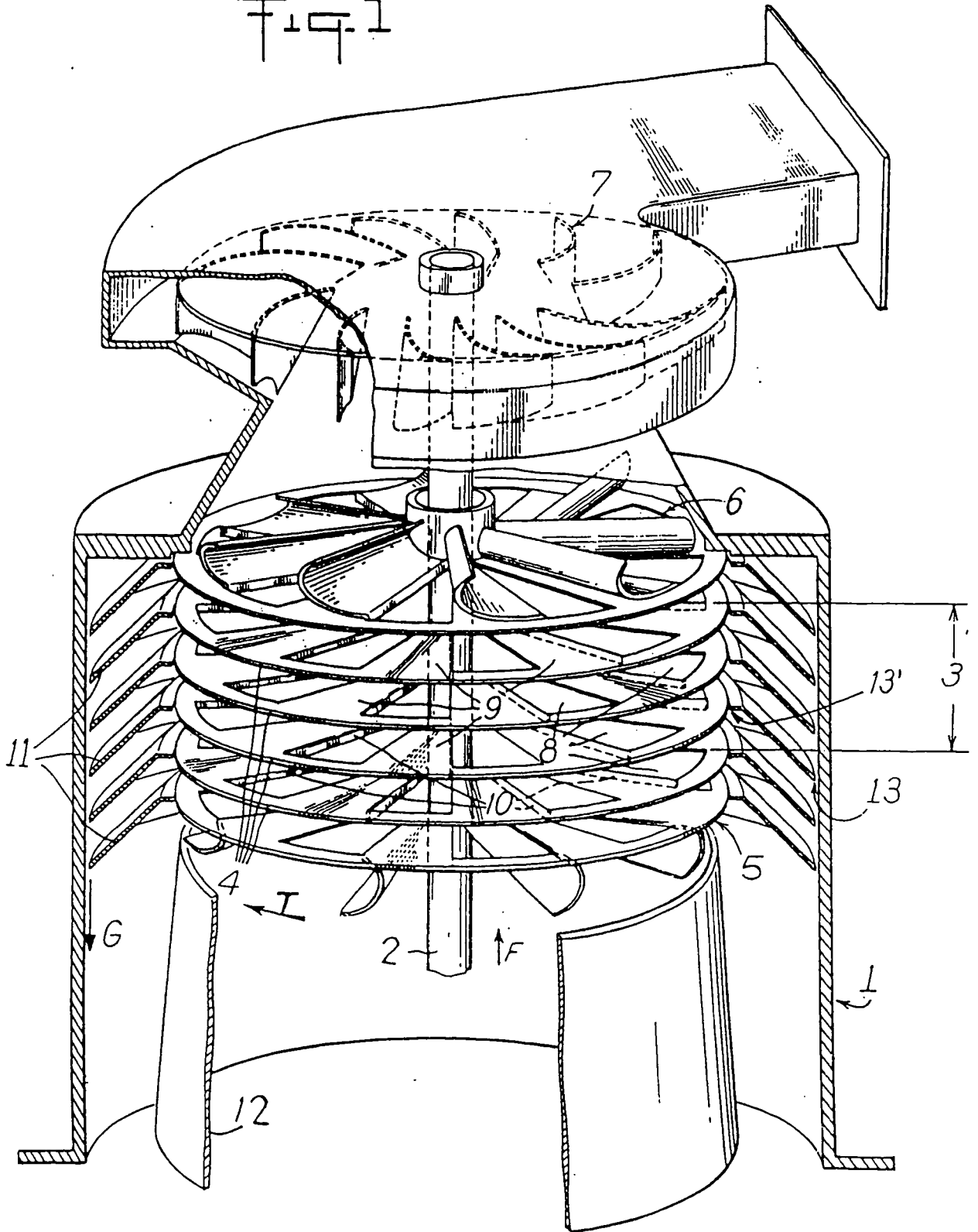
ARRIVÉE DE LIQUIDE

RETOUR DE GAZ VERS L'AXE

TUBES DE
REPARTITION
DE PRODUITS
DE TRAITEMENT

DE TRAITEMENT OU DE MOUSSE

Fig. 1



FOLIO 12

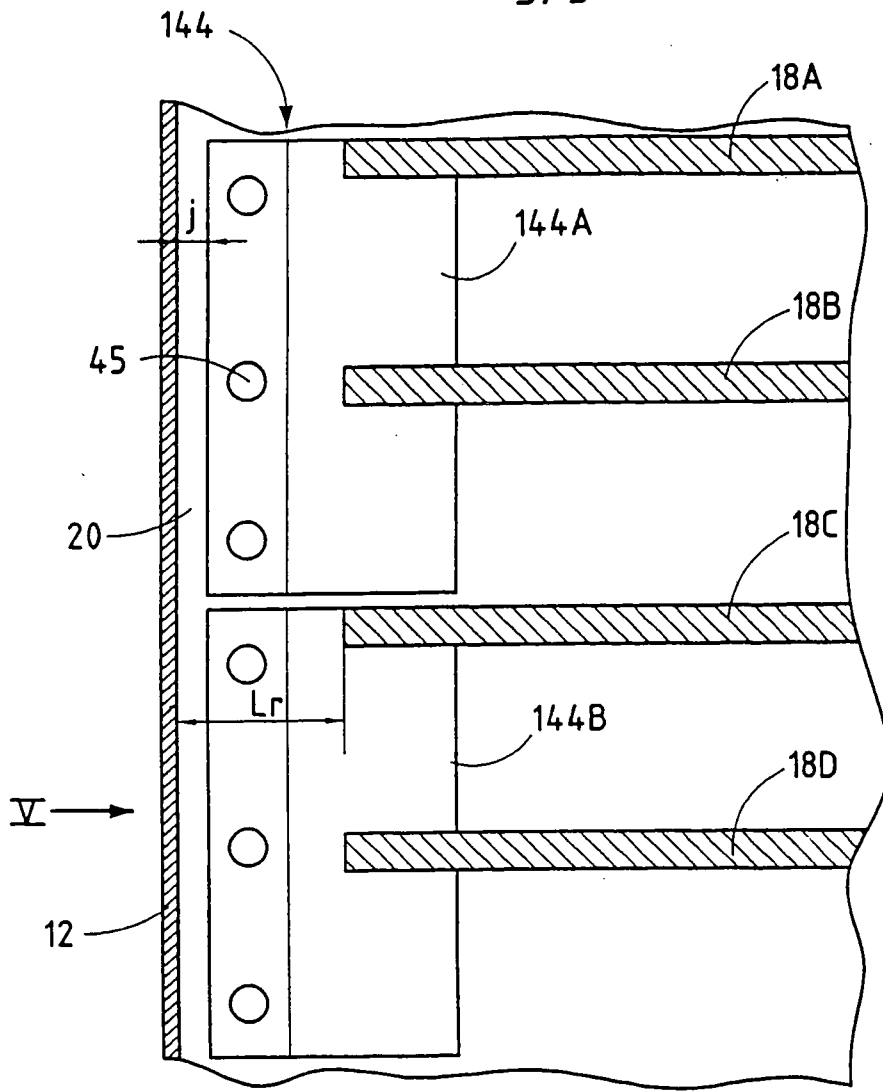


FIG. 3

FOLIO 13

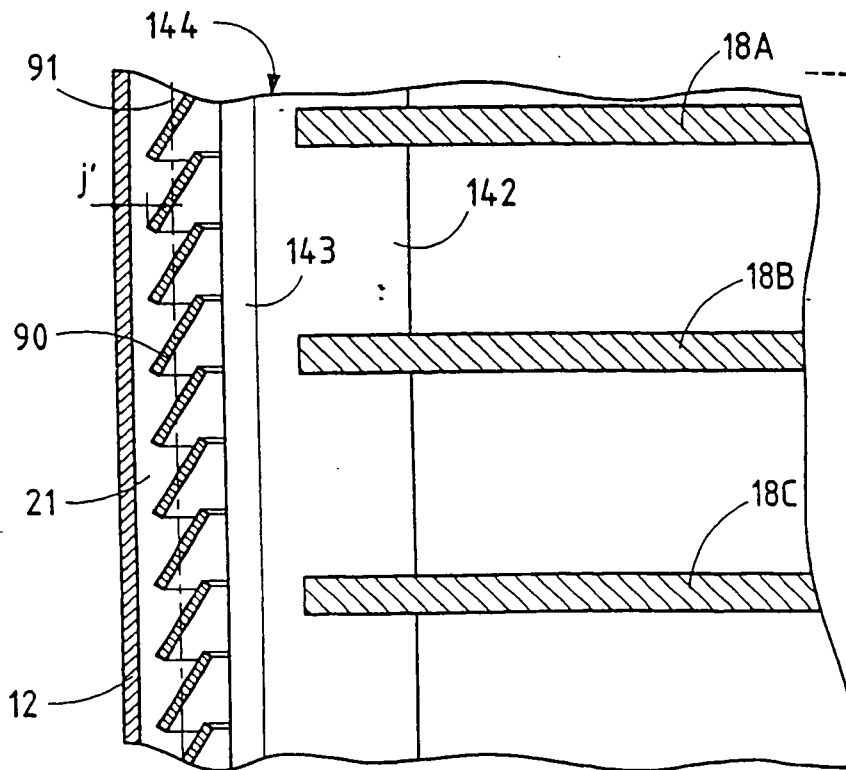
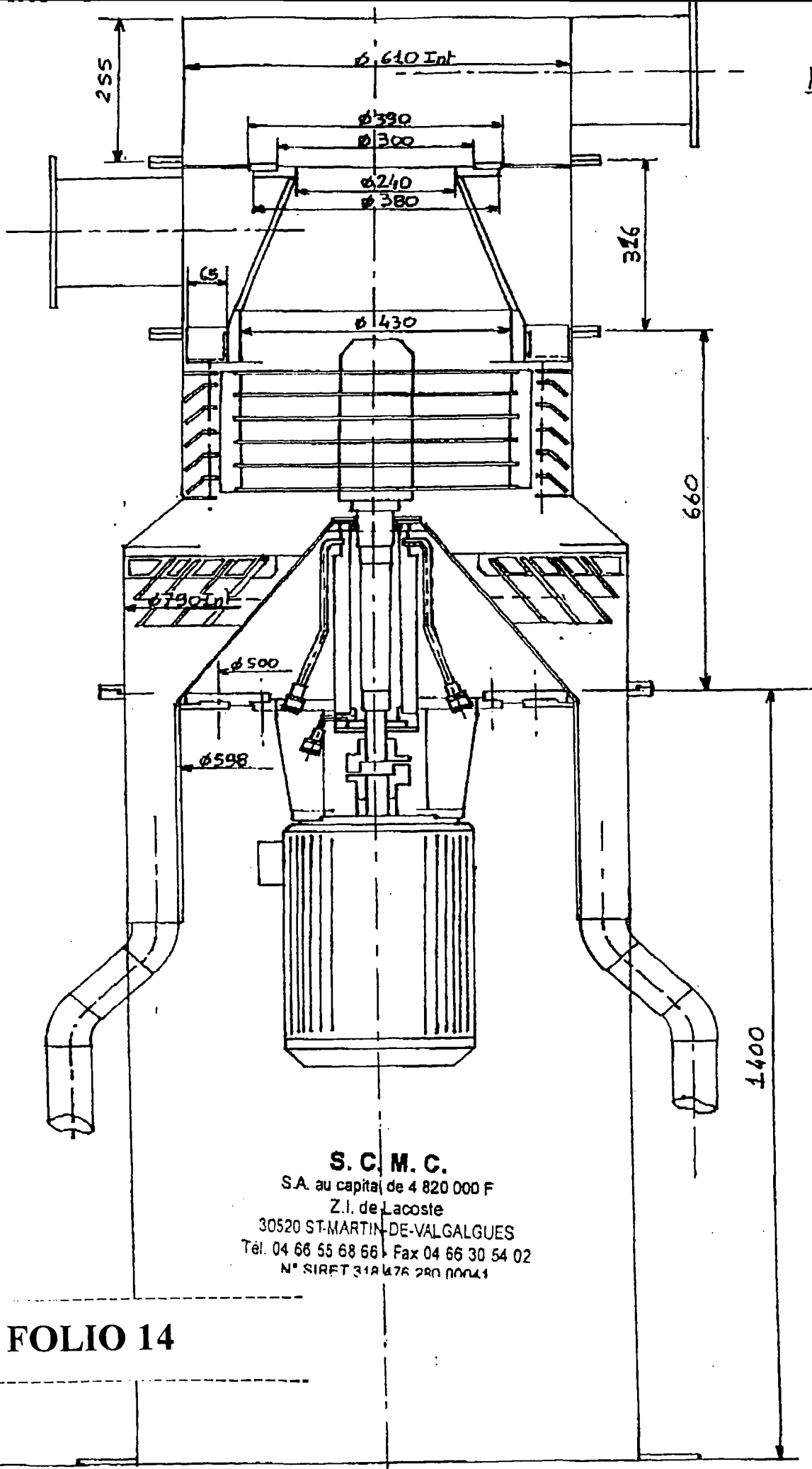


FIG. 4

1c1112/98

N: 1

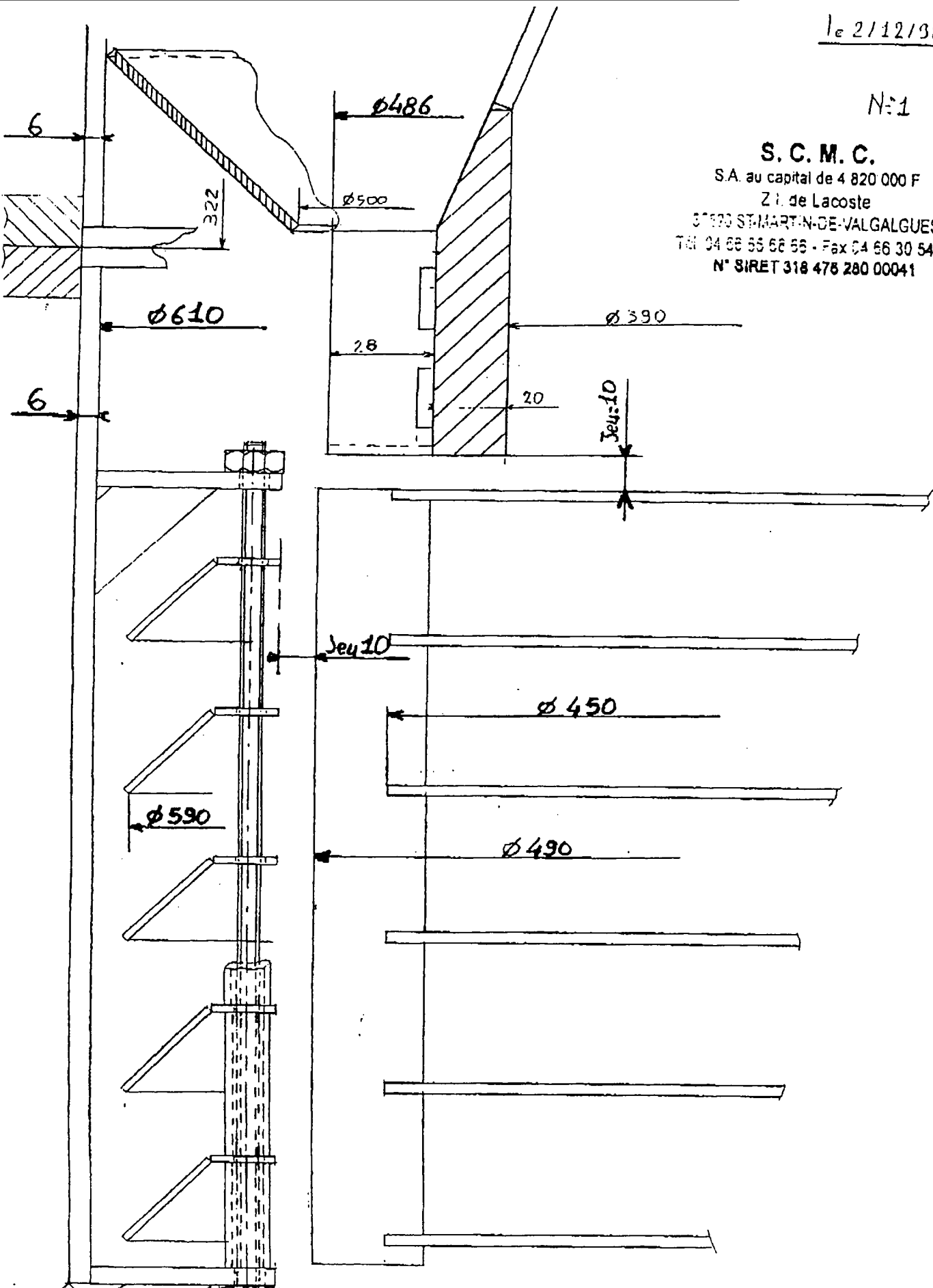


S. C. M. C.
S.A. au capital de 4 820 000 F
Z.I. de Lacoste
30520 ST-MARTIN-DE-VALGALGUES
Tél. 04 66 55 68 66 Fax 04 66 30 54 02
N° SIRET 312 476 280 00041

FOLIO 14

N:1

S. C. M. C.
S.A. au capital de 4 820 000 F
Z.I. de Lacoste
37000 ST-MARTIN-DE-VALGALGUES
TEL 04 66 55 68 55 - Fax 04 66 30 54 02
N° SIRET 318 476 280 00041



FOLIO 15

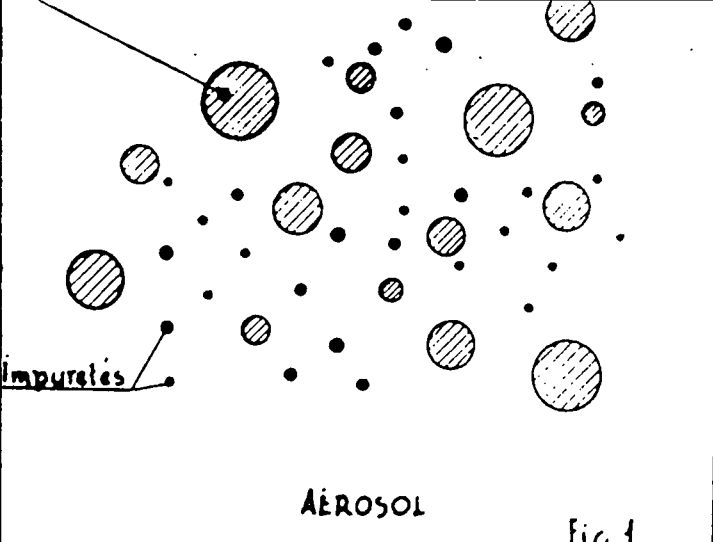


Fig. 1

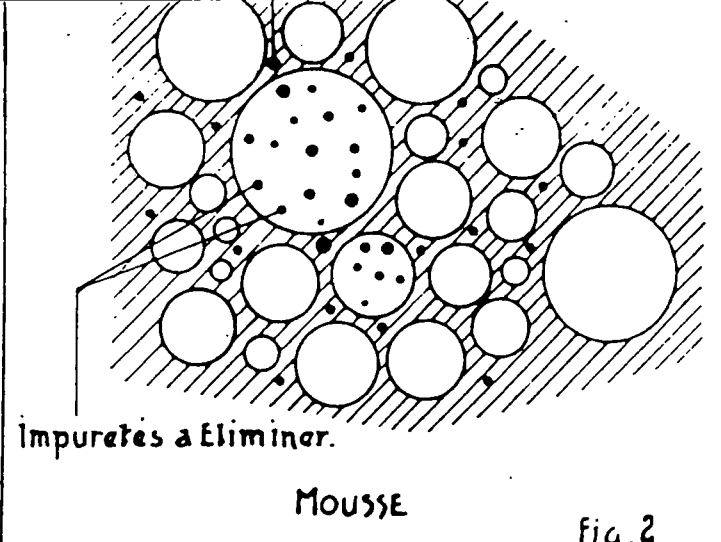
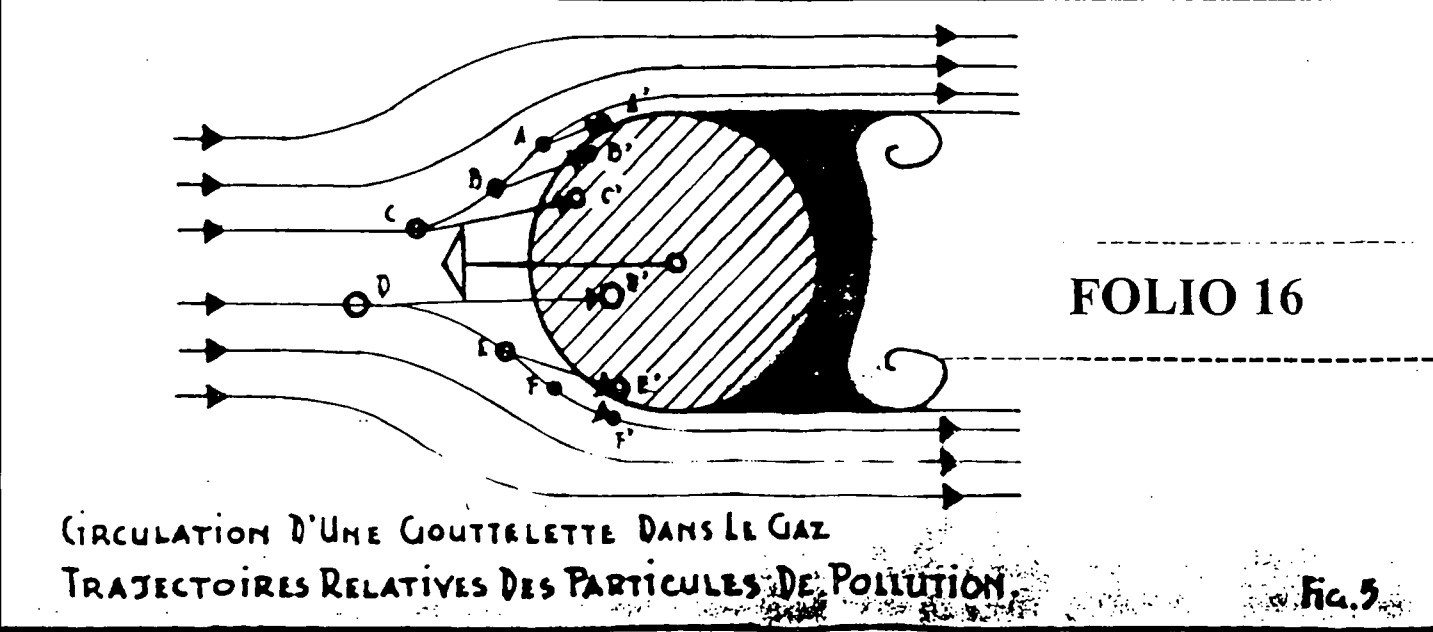
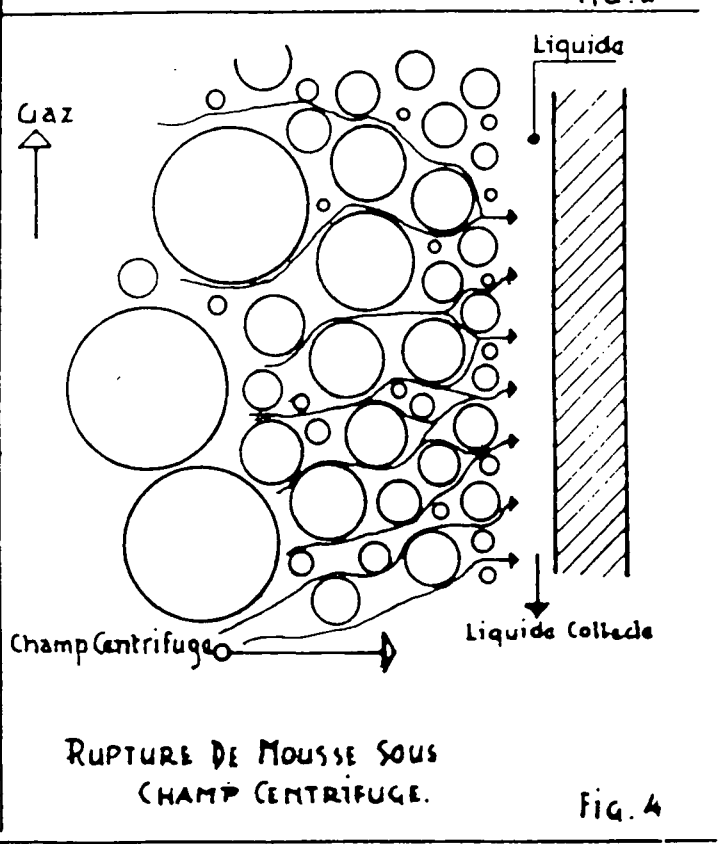
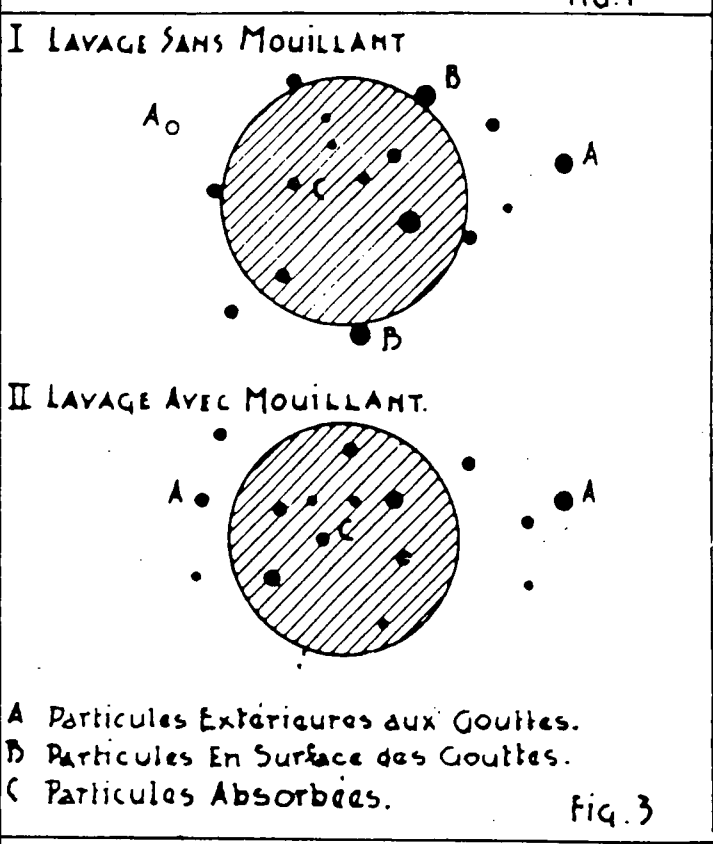


Fig. 2



UTILISATION D'UN SYSTEME D'ASPERSION DE GOUTTELETTES POUR LA DISPERSION D'UN NUAGE TOXIQUE

J. MALET, P. CORIERI, J.-M. BUCHLIN

Von Karman Institute for Fluid Dynamics
Environmental and Applied Fluid Dynamics Department
Chaussée de Waterloo, 72
1640 Rhode-St-Genèse, BELGIUM
e-mail : malet@vki.ac.be

MOTS-CLES

Asperision, gouttelettes, spray, rideau d'eau, dispersion, réchauffement, nuage toxique, nuage dense

TITLE

WATER-SPRAY SYSTEM FOR TOXIC CLOUD DISPERSION

ABSTRACT

The aim of the present experimental and numerical study is to evaluate the efficiency of water spray curtains used to mitigate the consequence of accidental releases of toxic and/or flammable gases. A liquid curtain is composed of rows of sprays constituted by polydispersed liquid droplets moving within the gas. The mechanical action of the spray results in gas entrainment and turbulence enhancement, which promote the dilution and the heating of a cloud formed by a toxic cold and dense gas release. The efficiency of these actions depends on the spray characteristics, atmospheric conditions and topography. The results obtained for flat-fan sprays, produced with industrial nozzles, are presented here. "Flat-fan" sprays seem to be more efficient than "full cone" spray for the dispersion of a dense cloud. Influence of the wind on the water curtain efficiency is evaluated experimentally and numerically. The results show that wind can reduce the action of a water curtain on dense cloud dispersion. Numerical modelling mimics satisfactorily the experimental tests. It is concluded that CFD simulation provides a good estimate of the water curtain effect.

RESUME

L'objectif de cette étude expérimentale et numérique est de déterminer l'efficacité de rideaux de fluides pour la mitigation des rejets accidentels de gaz toxiques et/ou inflammables. Un rideau de fluides est constitué d'une rangée de pulvérisations de gouttelettes d'eau polydispersées. L'action mécanique de la pulvérisation résulte en un entraînement du gaz et une augmentation de la turbulence, favorisant ainsi la dilution et le réchauffement d'un nuage formé par un gaz toxique froid et dense. L'efficacité des actions mécanique et thermique du rideau de fluides dépend des caractéristiques de la pulvérisation, des conditions atmosphériques et de la topographie. Les résultats obtenus pour des pulvérisations industrielles dites "jet-plat" sont présentés dans cette étude. Les pulvérisations "jet-plat" semblent plus efficaces que les pulvérisations "cône-plein" en terme de dispersion d'un gaz dense. L'influence du vent sur l'efficacité d'un rideau de fluide est évaluée expérimentalement et numériquement. Les résultats montrent que le vent peut réduire de façon significative l'action du rideau d'eau sur la dispersion du nuage toxique. Les résultats numériques se montrent en bon accord avec les résultats expérimentaux, indiquant que les simulations numériques offrent une bonne estimation de l'action d'un rideau de fluides sur le réchauffement d'un gaz froid.

INTRODUCTION

Les accidents industriels graves survenus ces dernières années (Feysin, Bophal, La Mède) rappellent que malgré l'amélioration constante des procédés et des installations, le risque technologique persiste. La technique des rideaux de fluides (aspersion de gouttelettes), en tant que moyen de protection de la population et de l'environnement en cas de rejet accidentel de gaz dangereux, a suscité l'intérêt des industriels et des pouvoirs publics des pays européens et des Etats-Unis. Des moyens financiers ont été mis en oeuvre pour aboutir à une utilisation plus rationnelle des rideaux de fluides.

Le travail réalisé, depuis plusieurs années, à l'Institut von Karman, en collaboration avec des industriels du monde pétro-chimique et gazier, a pour objectif d'évaluer l'efficacité de rideaux de gouttelettes dans de nombreuses applications : réchauffement d'un gaz froid¹, dilution d'un gaz dense¹, atténuation radiative d'une source de rayonnement²... L'influence des conditions atmosphériques, en particulier de la vitesse du vent, sur l'efficacité des rideaux d'eau est prise en compte dans toutes ces études.

Différentes tuyères sont utilisées pour générer les pulvérisations : tuyères commerciales ("jet-plat", "cône-plein", "cône-creux", ...), tuyères industrielles utilisées par les équipes de pompiers industrielles (dites "queue de paon")... Les caractéristiques hydrodynamiques des sprays conditionnent parfois l'application à laquelle ces sprays peuvent être voués.

On présente ici les résultats obtenus sur des pulvérisations de gouttelettes d'eau dites "jet-plat". Les efficacités thermiques (ou facteurs de réchauffement) de rideaux d'eau "plats" sont déterminées expérimentalement et numériquement. Les résultats sont également exprimés sous forme de profils de température à une distance donnée de la source froide, avec et sans l'utilisation du rideau d'eau.

PROCEDURE EXPERIMENTALE

Les deux caractéristiques hydrodynamiques importantes pour évaluer l'efficacité d'une pulvérisation vis-à-vis d'un risque industriel sont l'aire interfaciale et le débit gazeux d'air entraîné. En effet, l'aire interfaciale caractérise la capacité d'une pulvérisation vis-à-vis de l'absorption physico-chimique de polluants, tandis que le débit gazeux d'air entraîné informe sur l'efficacité de dilution d'un spray. Pour déterminer ces deux paramètres, il est nécessaire de mesurer la granulométrie des gouttes de la pulvérisation, ainsi que leur vitesse et celle de l'air entraîné. Ceci est réalisé sur une installation dite "Water-Spray" (WS) (figure 1) constituée d'un circuit hydraulique avec un débit de 1l/s sous 800kPa, alimentant la pulvérisation dont l'eau est récupérée dans une piscine de 12 m³. Une hauteur de spray de 1,6m peut être testée. L'instrumentation est constituée d'une série de capteurs de pression et de débitmétrie pour déterminer les caractéristiques hydrauliques du spray. La granulométrie des gouttelettes de la pulvérisation, ainsi que les vitesses des gouttes et de l'air entraîné par la pulvérisation sont obtenues par vélocimétrie laser en utilisant un Anémomètre à Phase Doppler (PDPA Phase Doppler Particle Analyser). Les tests sur la pulvérisation sont effectués pour différentes pression d'alimentation de la tuyère et à différentes distances Z de l'orifice de la tuyère.

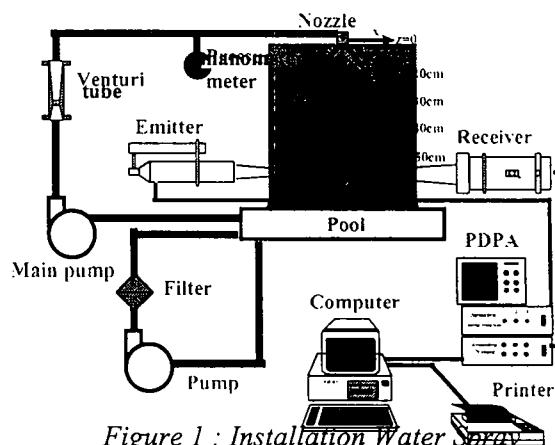


Figure 1 : Installation Water Spray

L'installation WS est utilisée pour la caractérisation hydrodynamique des pulvérisations. Toutefois, les rideaux de fluides sont utilisés sur sites industriels, et sont donc soumis aux conditions atmosphériques, notamment à l'effet du vent. C'est pourquoi une seconde installation expérimentale est utilisée. Elle est schématisée (*Galerie à vent*), présentée figure 2. Cette installation permet de tester le réchauffement ou la dilution d'un nuage froid ou toxique grâce à un rideau de fluide. Elle a été réalisée selon des conditions de similitudes décrites par St-Georges et al. (1996) [5]. Le rideau de gouttelettes travaille à l'échelle 1/5ème, tandis que la géométrie et le vent sont simulés à l'échelle 1/10ème.

La Galerie à vent, soufflerie utilisée en aspiration, comprend une section d'entrée, la veine d'essai proprement dite, une sortie et un échappement atmosphérique. Les dimensions principales de la Galerie à vent sont de 11,5 m de long, 4 m de large et 5 m de haut. La section d'essai est de 1 m de haut et de 1,3 m de large. Le gaz froid est un mélange d'air et d'azote descendant à des températures de -10°C à -30°C . Les profils de température sont mesurés avec un peigne de thermocouples. Les vitesses de l'air sont comprises entre 0,1 et 1 m/s. La caractérisation de l'écoulement dans la soufflerie en terme de profils de vitesses et d'intensité de turbulence a été réalisée avec une chaîne d'anémométrie laser.

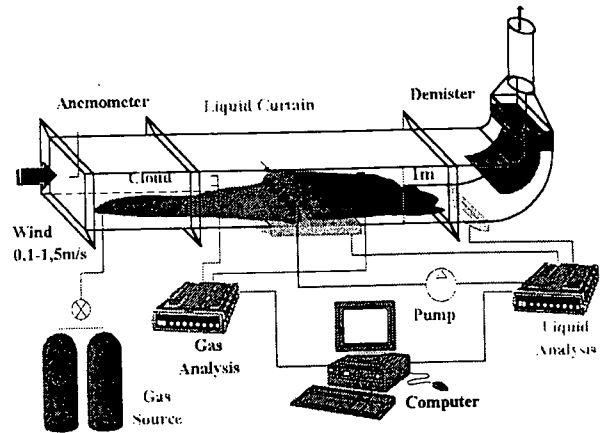


Figure 2 : Installation Galerie à vent

METHODE NUMERIQUE

Les expériences dans la Galerie à vent sont confrontées à des calculs numériques effectués avec un code de calcul de mécanique des fluides (Fluent/UNS [2]). Il s'agit donc de simuler un écoulement turbulent dans un canal de 1 m de hauteur et un champ de température d'un nuage froid injecté en entrée du canal sur 15 cm de hauteur. Deux cas sont traités : avec et sans l'injection de gouttelettes au centre du canal à une hauteur de 50 cm, simulant ainsi la présence ou non d'une pulvérisation descendante.

L'écoulement est déterminé à partir des équations de Navier-Stokes moyennées au sens de la turbulence, couplées à un modèle de turbulence à deux équations. Le modèle choisi RNG $k-\epsilon$ (Renormalization Group [1]) est dérivé du modèle $k-\epsilon$ [3]. Ce modèle présente notamment une meilleure adéquation que le modèle standard $k-\epsilon$ pour les écoulements forcés et tourbillonnaires.

Le comportement et l'effet des gouttelettes d'eau sont déterminées à partir d'un modèle particulaire lagrangien. Celui-ci consiste à résoudre la conservation de la quantité de mouvement, en prenant en compte les forces de traînée et de gravité s'exerçant sur les gouttes. Par ailleurs, pour modéliser l'action des gouttes sur l'écoulement porteur, un terme source de transfert de quantité de mouvement est rajouté à l'équation de la quantité de mouvement du fluide (couplage).

La résolution de l'équation de l'énergie, incluant les termes de flottabilité (convection mixte) fournit le champ de température.

RESULTATS ET DISCUSSION

Les résultats expérimentaux obtenus sur l'installation WS qualifiant l'hydrodynamique des pulvérisations "jet-plat" sont présentés figures 3 et 4. Sur ces figures, les caractéristiques des pulvérisations "jet-plat" sont comparées à celles d'autres pulvérisations existantes, pour différentes pressions d'utilisation. On peut constater que l'aire interfaciale est plus faible que celles des pulvérisations "cône-plein". Les sprays "jet-plat" sont donc moins adaptés à l'absorption physico-chimique de polluants que les sprays "cône-plein". Par contre, ils restent plus intéressants que les pulvérisations "cône-plein" pour la dispersion mécanique de polluants, puisque le débit d'air entraîné est plus important.

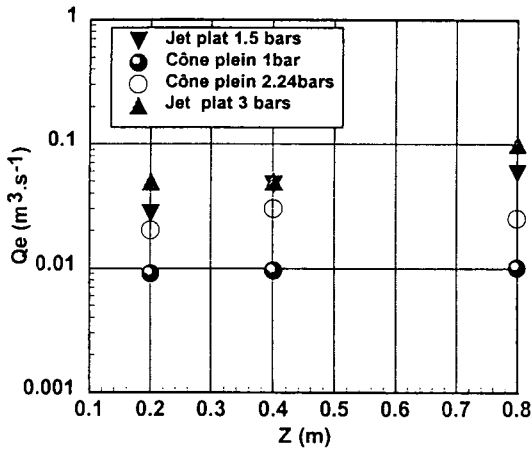


Figure 3 : Débit d'air entraîné Q_e en fonction de la distance z à l'orifice de la buse

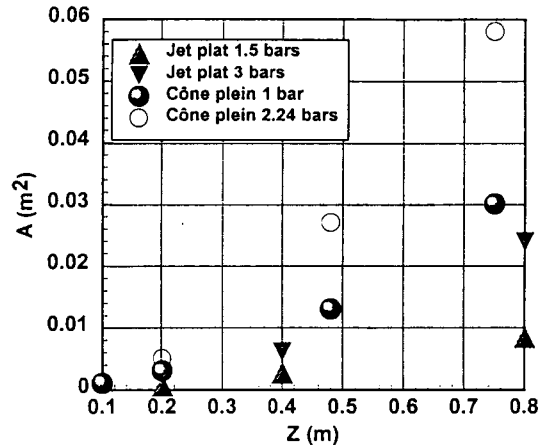


Figure 4 : Aire interfaciale A en fonction de la distance Z à l'orifice de la buse

Les champs de température mesurés dans la "Galerie à vent" prennent en compte l'influence du vent sur le rideau de fluide. Des résultats numériques typiques sont présentés sur la figure 5 pour deux vitesses de vent différentes. Si l'on peut constater que pour une faible vitesse de vent ($U=0,25\text{m/s}$), l'action du rideau de fluides sur le réchauffement du nuage est efficace, ce n'est pas le cas pour une plus forte vitesse de vent ($U=1\text{m/s}$), puisqu'il subsiste une zone froide à faible hauteur.

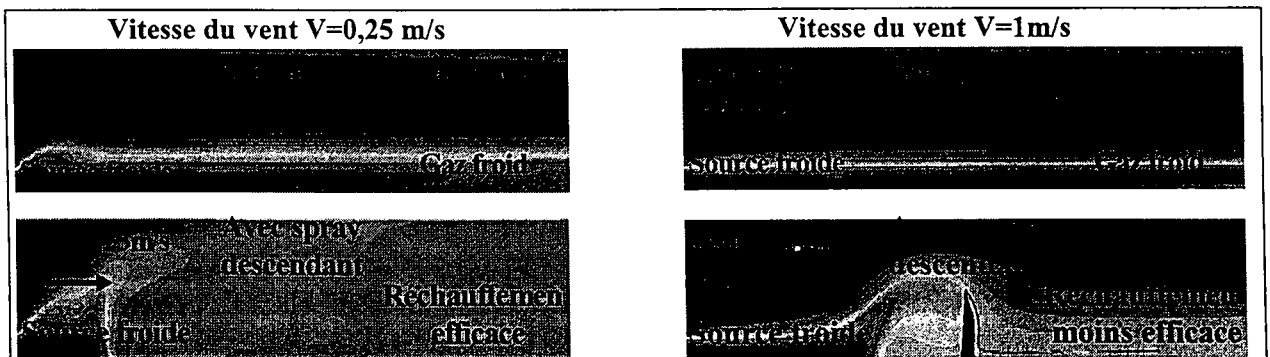


Figure 5 : Champs de température dans la "Galerie à vent" avec et sans l'utilisation d'un rideau de fluides. Résultats de calculs numériques.

Ces champs thermiques permettent de déduire les profils de température en aval du spray. Un exemple de profils adimensionnés est donné sur la figure 6. On peut constater la modification notable du profil de température lorsque le rideau de fluides est mis en marche, indiquant une homogénéisation de la température sur toute la hauteur du rideau. De plus, les résultats numériques sont en bon accord avec les résultats expérimentaux. A partir de ces profils, pour chaque vitesse de vent, on calcule les facteurs de réchauffement FR par la relation suivante :

$$FR = \frac{\left(T_{nuage}^{\min} - T_{ambient}\right)_{sans-rideau}}{\left(T_{nuage}^{\min} - T_{ambient}\right)_{avec-rideau}}$$

Des études précédentes [5] sur différents rideaux de fluides ont montré que le facteurs de réchauffement de ceux-ci semblent dépendre d'un seul nombre sans dimension : le rapport de la quantité de mouvement du rideau de fluides $Q_{m,R}$ sur la quantité de mouvement du vent $Q_{m,V}$. Ce rapport s'écrit :

$$\frac{Q_{m,R}}{Q_{m,V}} = \frac{\dot{m}_{l,u} U_{do}}{\rho V^2 H}$$

où $\dot{m}_{l,u}$ est le débit d'eau par mètre de rideau, U_{do} est la vitesse de l'eau à la sortie des buses, ρ est la densité de l'air, V la vitesse du vent et H la hauteur du rideau.

On représente sur la figure 7 les facteurs de réchauffement en fonction de ce rapport de quantité de mouvement. On peut conclure que pour un rapport de quantités de mouvement donné, les pulvérisations "jet plat" sont plus efficaces pour la dispersion mécanique que les pulvérisations "cône-plein". Ceci confirme donc les conclusions des mesures de débit d'air entraîné présenté ci-dessus. Par ailleurs, la confrontation des résultats numériques aux expériences se montre satisfaisante, encourageant ainsi l'utilisation de la simulation numérique pour la prédiction de l'efficacité de différents rideaux de gouttelettes.

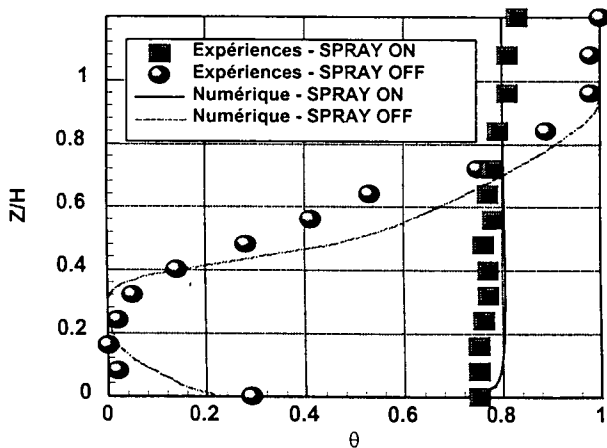


Figure 6 : Action du rideau de fluides sur le profil de température adimensionnée θ dans la "Galerie à vent". Comparaison expériences/numérique (Fluent/UNS). ($V=0,25m/s$)

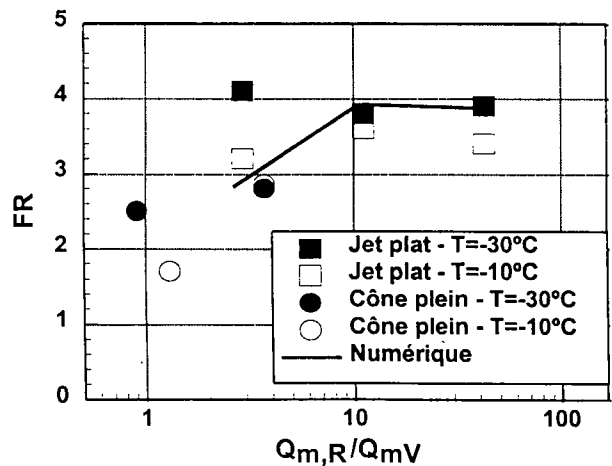


Figure 7 : Facteur de réchauffement des différents rideaux de fluide. Comparaison avec les résultats numériques obtenus pour les "jet-plat".

CONCLUSIONS

Une étude expérimentale et numérique sur les pulvérisations "jet plat" a été menée. Les résultats expérimentaux conduits pour caractériser différents paramètres de ces sprays, tels que l'aire interfaciale et le débit d'air entraîné ont montré que les pulvérisations "jet-plat" semblent être plus performantes que les pulvérisations "cône-plein" pour la dispersion mécanique et le réchauffement d'un nuage froid.

L'influence du vent sur l'efficacité de réchauffement d'un rideau a ensuite été évaluée en soufflerie et par des calculs numériques multi-dimensionnels. Les profils de température en aval du rideau de fluide sont fortement modifiés par les pulvérisations, favorisant le réchauffement et donc la dispersion du nuage. Cette dispersion reste plus faible pour des vitesses de vent plus importantes, indiquant la perte d'efficacité d'un rideau de fluides avec le vent.

Ces résultats peuvent être présentés en fonction d'un facteur de réchauffement, lui-même semblant être fonction d'un seul paramètre adimensionnel (le rapport de la quantité de mouvement du rideau de fluides sur la quantité de mouvement du vent). Les facteurs de réchauffement expérimentaux et numériques obtenus pour les rideaux de pulvérisation "jet plat" sont en bon accord, incitant l'utilisation de codes de calculs multi-dimensionnels pour le dimensionnement de rideau de fluides.

Toutefois, de tels codes multi-dimensionnels peuvent être coûteux en temps de calculs. Des codes d'ingénierie appliqués aux rideaux d'eau sont également en cours de développement à l'Institut von Karman [4 et 5]. L'objectif est ici de fournir un moyen simple et efficace pour dimensionner un rideau d'eau pour un risque donné.

REFERENCES

- [1] Choufhdury D. (1993) Introduction to the Renormalization Group Method and turbulence modelling. Fluent Inc. Technical Memorandum TM-107
- [2] FLUENT/UNS, Computational Fluid Dynamics Software, Release 4.0, Fluent Inc., April 1996
- [3] Launder B. E., Spalding D. B. (1972) Lecture in mathematical models of turbulence Academic Press, London, England
- [4] Pretrel H., Buchlin J.-M., Riethmuller M (1997) Comportement thermohydraulique d'un rideau d'eau. Modélisation et Etude expérimentale. Rapport CEE EV5V CT94-0565, von Karman Institute, Rhode-St-Genèse, Belgium
- [5] St-Georges M., Buchlin J.-M., Riethmuller M, (1996) Contrôle des rejets accidentels par rideaux de fluides, Rapport final, Projet CEE EV5V CT 920072 1996-57, von Karman Institute, Rhode-St-Genèse, Belgium

14ème CONGRES FRANCAIS SUR LES AEROSOLS

ASFERA 8 & 9 décembre 1998

ASSURANCE QUALITÉ ET AEROSOLS

C.TIRET

Chargé de mission qualité au centre d'études du Bouchet de la DCE.

L'ouverture des frontières à l'intérieur de la CEE, les accords internationaux (GATT), ont amené le développement d'une prise en compte du facteur « qualité » dans toutes les activités. La politique d'industrialisation à outrance qui avait conduit à des théories telles que la taylorisation du travail a fait place à une nouvelle philosophie qui nécessite un comportement différent des individus.

Toutefois, la qualité n'est pas une notion inconnue des français puisqu'il est coutume de citer Colbert qui les encourageait à fabriquer des produits de qualité afin d'être concurrentiels.

La qualité:

- se mesure par des indicateurs
- se prouve par des audits tierce partie
- s'améliore par l'intermédiaire d'audits internes, de revues de direction, la participation et l'engagement de tous.

La qualité est devenue une science à part entière, dotée d'outils, une science qui a ses organismes de formation, de validation des compétences. C'est une science vivante, évolutive qui a créé des domaines de recherches et qui s'applique à tous les domaines d'activité.

Le but étant d'établir des règles communes, transparentes et comprises de tous, non seulement dans la communauté européenne mais d'un point de vue international, il est indispensable de définir chaque mot avec précision. Dans ce domaine une norme internationale s'y emploie : c'est la norme ISO 8402 dont sont tirées les définitions suivantes:

- qualité : ensemble des caractéristiques d'une entité qui lui confèrent l'aptitude à satisfaire des besoins exprimés ou implicites.
- politique qualité : orientation et objectifs généraux d'un organisme concernant la qualité, tels qu'ils sont exprimés formellement par la direction au plus haut niveau.
- système qualité : ensemble de l'organisation des procédures, des processus et des moyens nécessaires pour mettre en oeuvre le management de la qualité.

Objectifs d'un système qualité

Les objectifs de la mise en place d'un système qualité se définissent en terme de relation client - fournisseur. Le fournisseur est tenu de mettre en place une organisation appelée système qualité qui lui permet de satisfaire au mieux les besoins de son client. Le client veut la preuve que son fournisseur sera capable de fabriquer le produit qu'il désire ou de lui rendre le service dont il a besoin.

Pour cela il peut auditer son fournisseur. Cela signifie pour l'un autant d'audits que de fournisseurs ; pour l'autre autant d'audits que de clients. Ces audits prennent du temps et représentent un coût. Il fut donc utiliser des moyens moins coûteux.

Les moyens pour prouver

Pour prouver à un client que l'organisation mise en place par le fournisseur est telle que celui ci est apte à fournir un produit ou une prestation en respectant les coûts, les délais,

les spécifications prévues dans les contrats les moyens sont : la certification, l'accréditation.

La certification : elle se décline en terme d'organisation, de système qualité. Elle s'obtient à l'issue d'un audit tierce partie qui a pour but de vérifier que le système qualité mis en place satisfait aux exigences de l'une des normes de la série ISO 9000. Les trois référentiels de la série sont: ISO 9001-ISO 9002-ISO 9003, auxquelles s'ajoutent des normes qui sont des guides d'application de ces normes mais qui ne servent pas à une certification

certification de conformité : (définition de la norme EN 45013) action par laquelle une tierce partie démontre qu'il est raisonnablement de s'attendre à ce qu'un produit, processus ou service dûment identifié soit conforme à une norme ou à un autre document normatif spécifié.

certificat de compétence : document publié selon les règles d'un système de certification indiquant qu'il est raisonnablement fondé que la personne nommée est compétente pour effectuer les services spécifiques.

L'accréditation : elle se décline en terme de résultat. à l'origine (XVI ième siècle) ce mot signifie donner du crédit à , au XVII ième siècle il signifie autoriser.
Définition de la norme EN 45001 : reconnaissance formelle de la compétence d'un laboratoire d'essais pour réaliser ou types d'essais déterminés

La certification s'obtient par l'intermédiaire d'organismes dits certificateurs . Ces organismes peuvent être accrédités par l'organisme national d'accréditation. En France c'est le COFRAC (COmité FRançais d'ACcréditation). Mais tout organisme peut certifier sans être accrédité, il lui suffit de trouver des clients qui acceptent d'être certifiés par un organisme non reconnu par le COFRAC.

Les organismes accréditeurs se reconnaissent mutuellement par des audits .Les accréditation données dans un pays européen sont valables dans les autres pays européens.

L'accréditation d'un laboratoire d'essais ou d'étalonnage est demandée auprès d'un service spécifique du COFRAC qui désigne des auditeurs techniques et qualitatifs pour l'audit.

Une prestation purement intellectuelle ne peut être auditée donc ne peut être ni certifiée , ni accréditée . Toutefois la manière de procéder peut être auditée et c'est la méthode qui est certifiée ou accréditée.

Les principales étapes pour assurer la qualité sont:

-PREVOIR (acteurs la direction - le responsable délégué par la direction)
Définir une politique qualité (objectif à court et long terme)
Mettre en place une organisation
Mettre en place un système documentaire

acteurs ensemble des personnels

- EXECUTER
Connaître l'organisation
Connaître le système documentaire et mettre en application ce qui est demandé
Avoir la formation nécessaire et respecter les consignes
Avoir les moyens en personnel et matériel
Garder des traces à l'aide d'enregistrements

MESURER VERIFIER

avoir des moyens de contrôle et d'évaluation adaptés pour

- les produits
- les services -
- le système qualité mis en place

COPRRIGER PREVENIR

Détecter, enregistrer, analyser les anomalies, les non conformités

Prévoir les probabilités d'anomalies, de non conformités

Faire un suivi des actions correctives et préventives

AMELIORER LE SYSTEME QUALITE

Par la participation et l'engagement de tout le personnel

Les audits internes,

La mise en place de tableaux de bord,

Les indicateurs qualité,

Les relations internes dans le cadre d'une dynamique client fournisseur

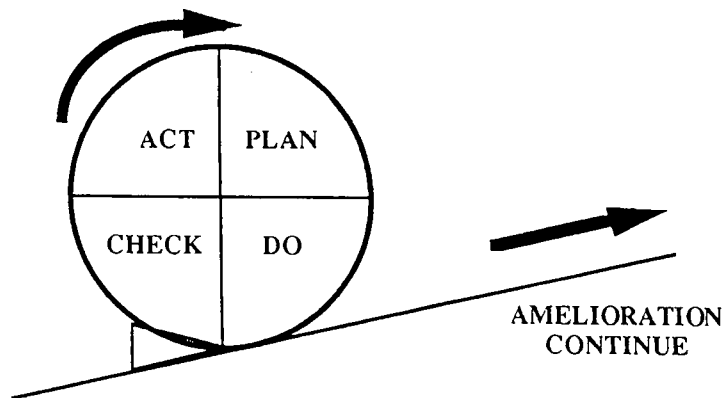
Application à l'étude des aérosols.

L'étude des aérosols est un vaste domaine qui fait intervenir des industriels qui fabriquent des matériels, qui offrent des prestations de service, des chercheurs qui étudient la physique, la chimie, la mécanique des aérosols; toutes ces actions se déroulent dans des entités organisées donc auditables. Les normes, aussi bien ISO qu'européennes, sont suffisamment générales pour pouvoir être appliquées à toutes les situations.

D'autre part, les sociétés modernes subissant les pressions des associations de protection de l'environnement, une série de normes de gestion cette fois non plus de l'organisation des activités humaines, mais de leur influence sur l'environnement, a vu le jour : ce sont les normes de la série ISO 14000. Afin de faciliter le travail des entreprises dans ces démarches vers une certification, démarches qui sont toutes volontaires, la structure de la série des normes environnementales ISO 14000 à été calquée sur celle des normes ISO 9000.

Certains organismes traitent simultanément ou successivement les problèmes de management organisationnels et environnementaux.

A l'horizon 2000, les normes de la série 9000 évolueront dans la même direction que la norme ISO 14001. Comme cette dernière elles conduiront à une boucle d'amélioration continue du système de management. Cette boucle d'amélioration correspond dans le domaine de la qualité à la roue de Deming : la roue PDCA.



P = plan - Engagement de la direction à travers une politique affirmée
- planification des objectifs liés à cette politique - un changement ou une
amélioration sont programmés
D = Do - mise en oeuvre des dispositions présentées dans le plan
S=study - vérification et évaluation des résultats et progrès obtenus pour définir et
programmer l'action futur
A=Act - revue pour constamment améliorer le système une étude plus approfondie peut
être mise en oeuvre et conduire à initier un nouveau changement.

En conclusion on peut dire que les démarches volontaires de maîtrise du management de
l'activité et de l'environnement s'inscrivent logiquement. dans le cadre des études et
recherches de physique, chimie et mécanique des aérosols, de leur utilisation dans
l'industrie, de leur impact sur l'environnement.

ANALYSE EXPERIMENTALE DE FLUCTUATIONS DE TURBIDITE POUR LA MESURE SIMULTANEE DE LA GRANULOMETRIE ET DE LA CONCENTRATION D'UN AEROSOL

E. Géhin *, M. Attoui **, G. Gréhan ***

E-Mail : gehin@univ-paris12.fr, attoui@univ-paris12.fr, gerard.grehan@coria.fr

* LETIEF, ** LPATC, Université Paris XII - Val de Marne, Av. du Général de Gaulle 94010 Créteil, France.

*** LESP, CORIA-INSA de Rouen - B.P.8- Place Emile Blondel, 76131, Rouen, France

Une méthode de mesure simultanée de la granulométrie et de la concentration d'un aérosol a été testée. Cette méthode proposée par Altmann [1994] est basée sur la mesure des fluctuations de signal produites par les variations statistiques du nombre de particules contenues dans un volume de mesure. Le dispositif optique utilisé a été testé sur des aérosols monodispersés de DOP de diamètres compris entre $0,8 \mu\text{m}$ et $1,2 \mu\text{m}$ et des concentrations comprises entre 0 et 10^7 p/cm^3 . Les mesures de concentration montrent que la dispersion des résultats s'atténue lorsque la concentration en aérosol augmente. Les coefficients de variations sont alors de l'ordre de 40 % et les écarts relatifs entre les mesures et les concentrations données par le CNC sont d'environ 50 %. La dispersion des valeurs pour la mesure du diamètre rend actuellement impossible une détermination correcte du diamètre des particules.

Mots clés : *Granulométrie, mesure, aérosol, concentration*

Nomenclature

C	Concentration en aérosol	s	Section du volume de mesure.
C_{ext}	Section efficace d'extinction calculée par la théorie de Mie.	S^2	Estimation des variances.
D	Diamètre de l'aérosol.	U	Tension délivrée par le détecteur lorsque l'aérosol est présent.
f(D)	Fonction de distribution en diamètre de l'aérosol.	U_0	Tension de référence.
L	Longueur du volume de mesure	V	Volume de mesure.
N	Nombre de particules contenues dans le volume de mesure.		Symboles
n	Indice de réfraction	σ_g	Ecart type géométrique de la distribution granulométrique.

Introduction

La concentration d'un aérosol peut être estimée par l'analyse des fluctuations d'un signal due aux variations statistiques du nombre de particules contenues dans un volume de mesure (Kyle [1979]). Gregory [1984] a appliqué ce principe à des mesures de turbidité dans le cadre d'études sur la formation d'agrégats dans les suspensions. Cette technique a par la suite été adaptée par Altman [1994] et est à la base d'un appareil de mesure de granulométrie utilisable pour des aérosols monodispersés et de forte concentration ($> 10^4 \text{ p/cm}^3$). Une étude expérimentale de la méthode décrite par Altmann est réalisée dans le

but de mieux définir les limites d'applications et la précision de cette technique de mesure.

Principe de la méthode de mesure

La méthode est fondée sur une mesure de la transmittance d'un volume de mesure V dans laquelle s'écoule la suspension à étudier. En absence de diffusion multiple la transmittance (figure 1) est donnée par (Kerker [1969]) :

$$T = \exp(- N.A) \quad (1)$$

$$A = \frac{1}{S} \int_0^{\infty} f(D) \cdot C_{\text{ext}}(D) \cdot dD \quad (2)$$

La transmittance du volume V est mesurée à l'aide d'un dispositif classique comportant une source lumineuse éclairant le volume de mesure et un détecteur placé en vis à vis. T est donnée par le rapport des tensions délivrées par le détecteur lorsque le volume de mesure contient (U) ou ne contient pas l'aérosol (U₀).

Le nombre de particules (N) contenues dans le volume de mesure est une variable aléatoire dont la distribution suit une loi de Poisson (Kyle [1979]). Le nombre moyen de particules contenues dans le volume de mesure étant très élevé cette loi de distribution tend vers une loi normale de moyenne \bar{N} et de variance \bar{N} . Le nombre moyen de particules dans le volume de mesure est donc fonction des moyennes et des variances des tensions U et U₀ :

$$\bar{N} = -A^{-1} \cdot \ln\left(\frac{\bar{U}}{U_0}\right) \quad (3)$$

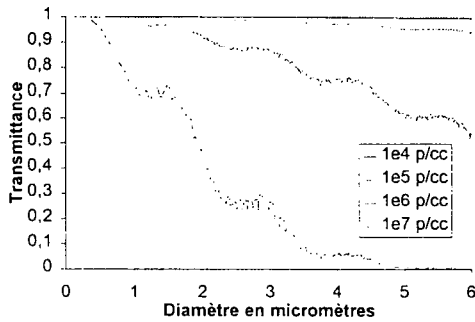


Figure 1 : Transmittance pour différents diamètres et concentrations. ($n = 1,5$, $\lambda = 670 \text{ nm}$, $L = 1 \text{ cm}$)

Du fait du bruit de mesure classique dans ce type de montage la variance de U₀ est non nulle. Si on suppose que le bruit de mesure est constant pour chaque mesure réalisée alors la variance de U dépend des variances de N et de U₀. Si les coefficients de variations de N et de U₀ sont inférieurs à 10 % et si l'aérosol est monodispersé on peut écrire (Charlot [1978]) :

$$S_U^2 = S_N^2 \cdot \left(\frac{\partial U}{\partial N}\right)^2 + S_{U_0}^2 \cdot \left(\frac{\partial U}{\partial U_0}\right)^2 \quad (4)$$

De l'équation (4) on tire l'équation suivante :

$$A = \left(S_U^2 - S_{U_0}^2 \cdot \left(\frac{\bar{U}}{U_0}\right)^2 \right) \cdot \left(\bar{U}^2 \cdot \ln\left(\frac{U_0}{\bar{U}}\right) \right)^{-1} \quad (5)$$

D'après (3) et (5) \bar{N} dépend uniquement des estimations des variances et des moyennes des tensions U et U₀. La concentration en aérosol peut donc être déterminée grâce à :

$$C = \frac{\bar{U}_0^2 \cdot \bar{U}^2 \cdot \left(\ln\left(\frac{U_0}{\bar{U}}\right) \right)^2}{s \cdot L \cdot (S_U^2 \cdot \bar{U}_0^2 - S_{U_0}^2 \cdot \bar{U}^2)} \quad (6)$$

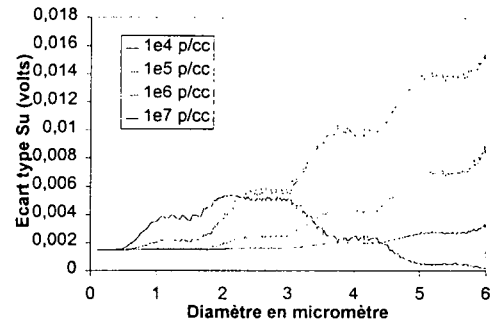


Figure 2 : Evolution de l'écart type de U pour différents diamètres et concentrations. ($n = 1,5$, $\lambda = 670 \text{ nm}$, $U_0 = 4 \text{ volts}$, $S_{U_0} = 1,5 \text{ mV}$, $S = 7,85 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2$, $L = 1 \text{ cm}$)

Si la distribution en diamètre suit une loi log-normale de σ_g faible (aérosol monodispersé) il est possible d'écrire :

$$A \approx \frac{c_{\text{ext}}(D)}{S} \quad (7)$$

Si la nature et la forme des particules sont connues C_{ext}(D) peut être calculé théoriquement (figure 3) et il est alors possible d'identifier le diamètre de l'aérosol. Cette technique subit tous les inconvénients habituels des techniques basées sur l'inversion des courbes obtenues par la théorie de Mie et notamment la précision est limitée par les fluctuations rapides du coefficient d'extinction.

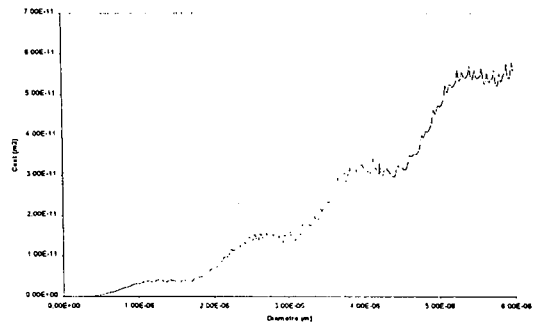


Figure 3 : Coefficient d'extinction calculé pour une particule sphérique d'indice 1,5 et pour une longueur d'onde lumineuse de 670 nm.

Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental qui a été mis en place est un montage classique utilisé pour des mesures de turbidité ; elle fait partie des méthode dite par "extinction" (Renoux [1998]). L'aérosol circule dans une veine de section carrée (1cm × 1 cm). Le volume de mesure est un cylindre de diamètre 1mm et de longueur 1 cm.

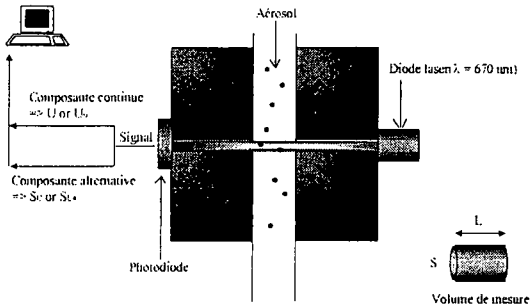


Figure 4 : Dispositif expérimental

Les parties continues et alternatives du signal délivré par le détecteur sont mesurées sur deux voies séparées par l'intermédiaire d'une carte d'acquisition 12 bits. Les mesures de moyenne et de variance sont obtenues sur 1024 points mesurés toutes les 10 ms.

Dispositif de test de la méthode de mesure

Le dispositif expérimental utilisé pour les tests est détaillé en figure 5. Les aérosols étudiés sont produits par un générateur d'aérosols monodispersé (TSI 3072) et injectés en flux continu dans une cellule de mesure. La concentration des aérosols testés est contrôlée à l'aide d'un Compteur de Noyaux de Condensation (CNC 3020) et comparée aux résultats des mesures. Des tests ont été effectués pour des aérosols de DOP monodispersés ($\sigma_g < 1,2$) de diamètre médian $0,8 \mu\text{m}$ et $1,2 \mu\text{m}$ pour des concentrations comprises entre 0 p/cm^3 et 10^7 p/cm^3 . Une première série de résultats a montré la très grande sensibilité des estimations S_u et S_{u0} aux fluctuations rapides de concentration dues au système de génération et de dilution de l'aérosol. Cet effet a été atténué par l'ajout d'un volume tampon supprimant les variations rapides de concentration dans le volume de mesure.

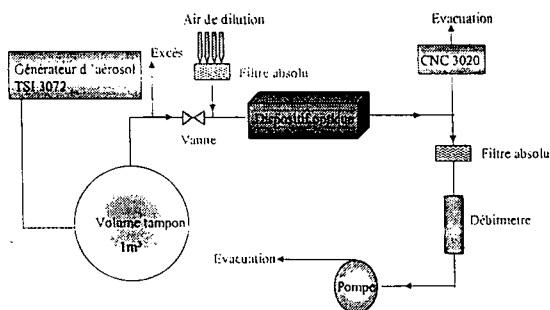


Figure 5 : Dispositif de test.

Résultats expérimentaux

Les mesures de transmittance obtenues pour différentes concentrations ont été comparées (figure 6) aux transmittances calculées pour un aérosol sphérique de DOP ($n_{670 \text{ nm}} = 1,49$). Les écarts relatifs entre théorie et mesure sont inférieurs à 0,5 %.

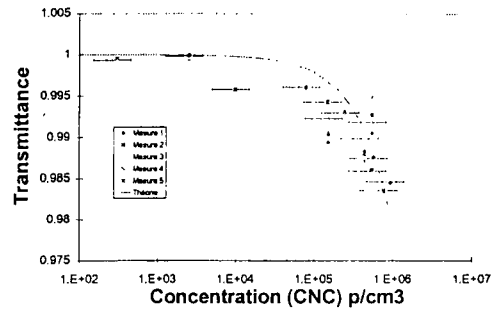


Figure 6 : Mesure de transmittance pour différentes concentration en aérosol.

Estimation des variances

Pour que les estimations des variances soient correctes il faut que les échantillons soient parfaitement indépendants. Le temps de passage d'une particule dans le volume de mesure doit donc être inférieur à l'intervalle de temps entre deux mesures. Pour les faibles débits testés le temps de passage d'une particule est inférieur à 1 ms la condition d'indépendance est donc respectée. Un test a été réalisé pour vérifier que les mesures de moyenne et de variance des tensions sont indépendantes du débit passant dans la cellule de mesure pour des débits allant de 150 l/h à 250 l/h (figure 7). Les résultats obtenus montre que cette condition est réalisée.

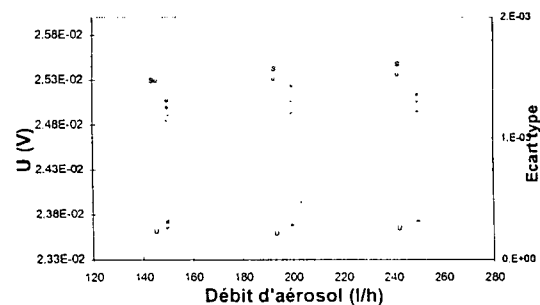


Figure 7 : Moyenne et variance des tensions mesurées en fonction du débit d'aérosol dans le volume de mesure.

Mesure de concentration

Les mesures de concentration montrent que la dispersion des résultats s'atténue lorsque la concentration en aérosol augmente (figure 8). Les coefficients de variations sont de l'ordre de 40% pour des concentrations de l'ordre de 10^6 p/cm^3 .

Les écarts relatifs entre les mesures et les concentrations données par le CNC augmentent lorsque la transmittance se rapproche de 1 (figure 9). Lorsque la transmittance est de l'ordre de 0,98 les écarts relatifs sont d'environ 50%.

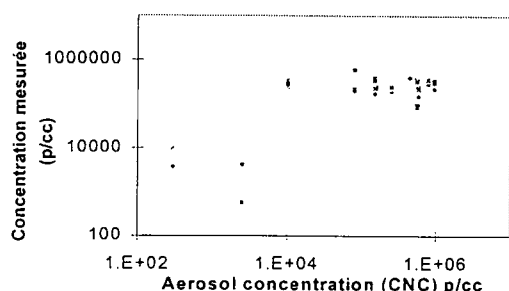


Figure 8 : Concentration mesurée en fonction de la concentration mesurée au CNC (aérosol de DOP, $D = 0,8 \mu\text{m}$, $\lambda = 670 \text{ nm}$).

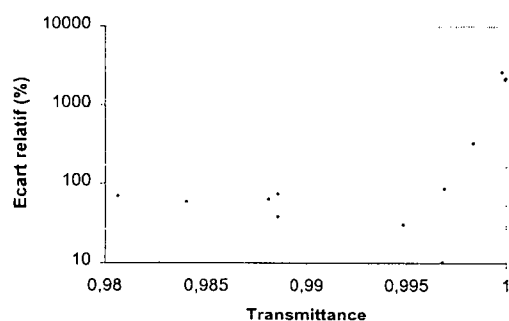


Figure 9 : Ecart relatif théorie pour les concentrations en fonction de la transmittance du volume de mesure (aérosol de DOP, $D = 0,8 \mu\text{m}$, $\lambda = 670 \text{ nm}$).

Mesure de diamètre

Les mesures du coefficient "A" présentent des coefficients de variations de l'ordre de 30% avec un écart relatif moyen vis à vis de la valeur théorique de l'ordre de 100% (figure 10 et 11). La dispersion des valeurs de "A" qui est essentiellement due à la dispersion des mesures de variances des tensions mesurées rend actuellement impossible une détermination correcte du diamètre des particules par cette méthode.

Bibliographie

- Altmann J., Rudolph A., Wessely B., (1994) Particle sizing of highly concentrated monodisperse aerosols, *J. Aerosol Sci.*, Vol. 25, Suppl. 1, pp. S523-S524.
- Gregory J., (1985) Turbidity fluctuations in flowing suspensions, *J. Colloid and Interface Sci.* Vol. 105, n°2, pp. 357-371.
- Kerker M., The scattering of light and other electromagnetic radiation, Academic Press, New York, 1969.
- Kyle T. G., (1979) Determining particle concentration by statistics, *J. Aerosol Sci.*, Vol. 10, pp. 87-93.
- Renoux A., Boulaud D., (1998). Les aérosols, Physique et Métrologie, *Lavoisier, Tec & Doc*.
- Charlot G., (1978) Statistiques appliquées à l'exploitation des mesures, *Masson*, Paris.

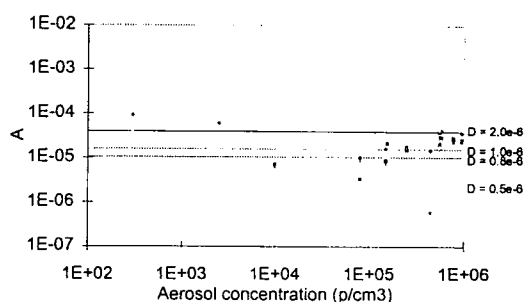


Figure 10 : Mesure de "A" pour différentes concentrations. (aérosol de DOP, $D = 0,8 \mu\text{m}$, $\lambda = 670 \text{ nm}$)

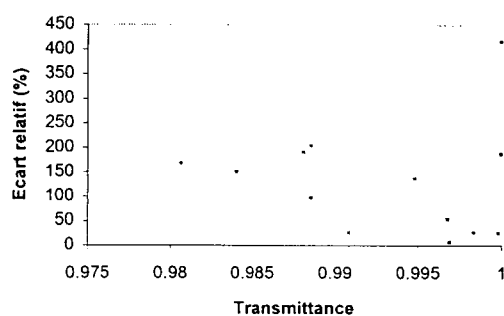


Figure 11 : Ecart relatif entre "A" mesuré et "A" calculé en fonction de la transmittance du volume de mesure. (aérosol de DOP, $D = 0,8 \mu\text{m}$, $\lambda = 670 \text{ nm}$)

Conclusion

La méthode de mesure développée par Altmann [1994] a été testée dans une configuration de base. Ces tests montrent que la méthode doit être optimisée pour les mesures de concentration. Il sera possible notamment pour améliorer les résultats d'augmenter la longueur du volume de mesure afin d'obtenir des transmittances plus faible et donc une meilleure précision des mesures. En revanche pour les mesures de diamètre les résultats actuels sont peu probants et une étude ultérieure sera nécessaire pour déterminer quels sont les facteurs qui influent et interfèrent dans l'estimation des variances de U et de U_0 .

Mesure des fluctuations d'un jet liquide cylindrique par anémométrie phase Doppler.

G. BOULNOIS, D. BLONDEL, G. GOUESBET, G. GREHAN

Laboratoire d'Energétique des Systèmes et Procédés
UMR 6614/CORIA, CNRS-Université et INSA de Rouen,
INSA de ROUEN BP 08
76131 Mont Saint Aignan Cedex, FRANCE

Résumé

La granulo-vélocimétrie phase Doppler permet la mesure simultanée de la taille et de la vitesse de particules sphériques entraînées par un écoulement. L'extension expérimentale de cette technique à des particules de forme cylindrique a été effectuée il y a quelques années par H. Mignon [1]. Ce travail démontre qu'il est possible, en utilisant une géométrie particulière d'anémomètre, la géométrie plane, de mesurer le diamètre d'un objet cylindrique. Dans cette géométrie, la particule à mesurer doit être absolument orthogonale au plan des faisceaux incidents, l'ensemble de détection étant localisé dans le même plan que les faisceaux incidents. Cependant un tel dispositif est très sensible à la conjugaison entre la particule cylindrique et la détection: l'alignement des optiques d'émission et de collection est donc particulièrement délicat. Une configuration phase Doppler combinant les deux optiques en un ensemble compact a été développée au laboratoire. Cette sonde est particulièrement bien adaptée aux diagnostics dans les milieux hostiles et est utilisée ici pour observer les fluctuations d'un jet liquide cylindrique sous incidence arbitraire. Il s'agit d'études qualitatives de la déformation du jet et des variations de rayons de courbures apparents.

1 Introduction

Contrairement à une sphère qui diffuse dans tout l'espace, une particule cylindrique soumise à un éclairage lumineux diffuse en nappe: plane si la particule est orthogonale au faisceau incident, conique si la particule possède une orientation quelconque par rapport au faisceau incident. Le diagnostic par anémométrie phase Doppler de telles particules nécessite le recouvrement des deux nappes coniques produites par les deux faisceaux incidents. Le positionnement judicieux de l'optique de réception est donc particulièrement difficile. Cette difficulté est levée par l'utilisation d'un dispositif regroupant derrière une même lentille les fibres d'émission et de collection. Une telle sonde, étant pré-alignée, doit permettre la mesure du diamètre d'un jet cylindrique ou du moins, dans l'attente d'un modèle rigoureux de la diffusion d'une sonde Doppler par un cylindre infini (en cours de développement) [2], [3], d'observer les variations de rayons de courbure apparents de ce jet au cours de sa traversée du volume de mesure.

Cet article est organisé comme suit: la section 2 présente le dispositif expérimental utilisé. La section 3 décrit les résultats de mesures effectuées. La section 4 est une conclusion.

2 Dispositif expérimental

L'utilisation de la sonde compacte développée au laboratoire par H. Bultynck [4] et D. Blondel [5] permet, du fait de son pré-alignement, de simplifier grandement les réglages, les cônes de diffusion étant superposés sur les détecteurs. La géométrie de cette sonde est la suivante (Fig.1): les faisceaux incidents (figurés en gris clair) sont focalisés par la lentille. Cette même lentille recueille l'information lumineuse rétro-diffusée (figurée en noir) par les particules traversant le volume de mesure constitué par l'intersection des faisceaux incidents. L'angle de collection est ici de 150° (collection en rétro-diffusion). Le demi-angle entre les faisceaux incidents vaut 2.6° , ce qui correspond à un écartement entre les faisceaux, parallèles avant la lentille de focale 110 mm, de 10 mm. Il s'agit de paramètres de configuration de sondes classiques pour l'étude de spray d'eau. Et c'est dans cette configuration que nous utilisons notre sonde pour étudier les fluctuations de forme d'un jet cylindrique d'eau.

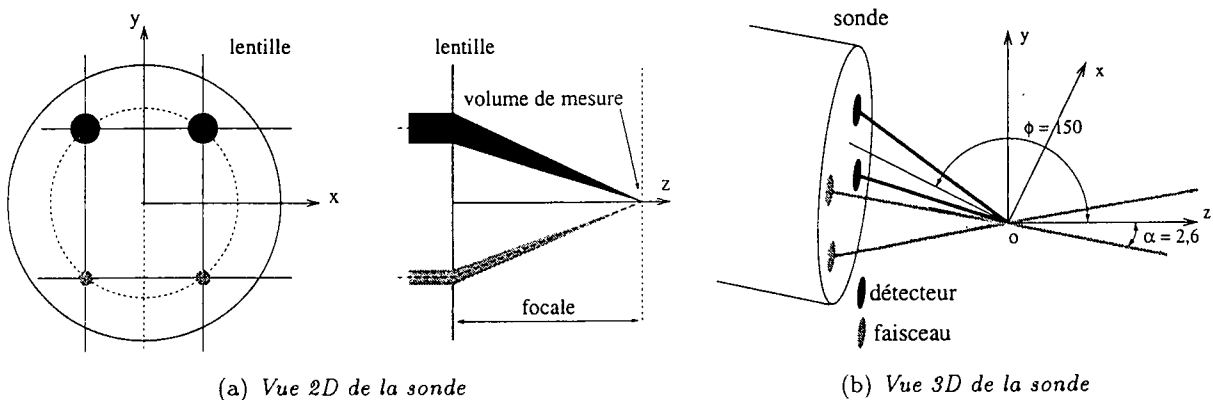
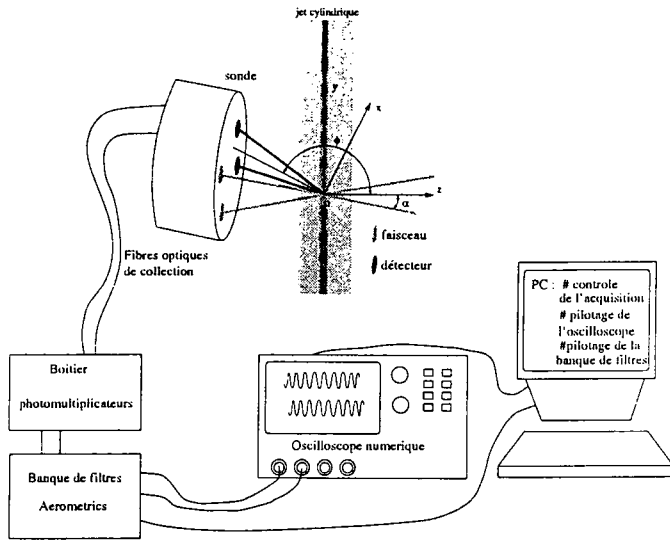


FIG. 1 - Sonde compacte

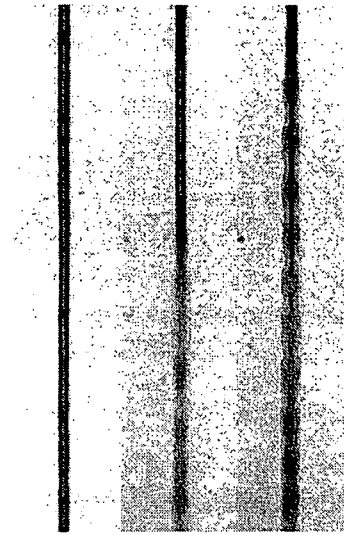
Le dispositif expérimental utilisé est le suivant (Fig.2(a)). Le jet cylindrique est produit par un générateur de gouttes TSI 3050 d'un diamètre de $100\mu\text{m}$. Ce générateur fournit des gouttes monodispersées par déstabilisation d'un jet cylindrique. Trois hauteurs de jet différentes ont été analysées: partie cylindrique du jet, partie oscillante, partie rupture en gouttelettes, comme figurées sur les photographies prises par un microscope à visée lointaine muni d'une caméra CCD (Fig.2(b)).

La sonde est positionnée de telle sorte que le jet traverse le volume de mesure formé par l'intersection des deux faisceaux laser. L'information lumineuse due à la diffusion par le jet est transmise via les fibres optiques de collection aux photomultiplicateurs. Les signaux électriques issus des photomultiplicateurs sont numérisés par un oscilloscope numérique (Lecroy 9314L). Les signaux peuvent être analysés individuellement, traités par un logiciel phase Doppler classique (ici le logiciel Aerometrics RSA3200), ou par un logiciel développé au laboratoire. Ce dernier traitement consiste en l'application d'une transformée de Fourier à fenêtre glissante sur les signaux issus des deux voies de l'oscilloscope donc provenant des deux détecteurs, et permet de tracer l'évolution de la différence de phase entre les deux signaux.

Les traitements de signaux phase Doppler commerciaux classiques ne sont efficaces que



(a) Dispositif expérimental



(b) Aspect du jet à différentes hauteurs

FIG. 2 - Montage et jet analysé

lorsque les particules à mesurer sont de dimensions finies. Alors, les signaux sont caractérisés par des bouffées Doppler de dimension finie dans le temps. Ce n'est pas le cas pour le jet cylindrique qui présente avant la rupture une dimension infinie à la sonde. Le diagnostic d'une telle particule par le système commercial Aerometrics dont nous disposons est donc impossible. Nous devons alors recourir au traitement développé au laboratoire qui permet l'analyse par paires de signaux, pour des signaux issus de la partie cylindrique du jet. Le traitement Aerometrics garde néanmoins tout son intérêt pour l'analyse des signaux issus des gouttes sphériques et permet d'obtenir les informations classiques que sont la distribution en vitesse, la distribution en taille, les corrélations taille-vitesse, etc...

Deux rayons de courbure (perpendiculaires entre eux) sont aisément quantifiables à l'aide de la sonde compacte (Fig.3). Après la mesure de l'un des rayons de courbure, il suffit de tourner la sonde de 90° pour pouvoir mesurer l'autre rayon de courbure sans avoir aucun réglage à effectuer. A l'aide de la première position de sonde, on mesurera le rayon de courbure transversal, et après avoir tourné la sonde, on mesurera un rayon de courbure appelé longitudinal.

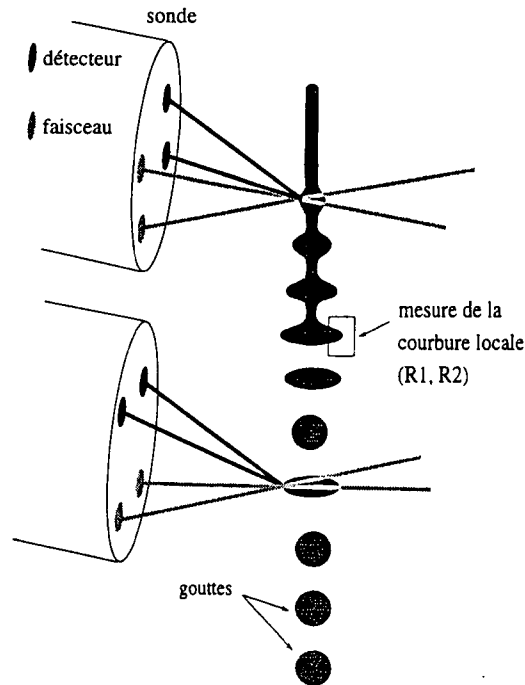


FIG. 3 – Phénomène de rupture dans le jet et rayons de courbure mesurables

3 Présentation de quelques résultats

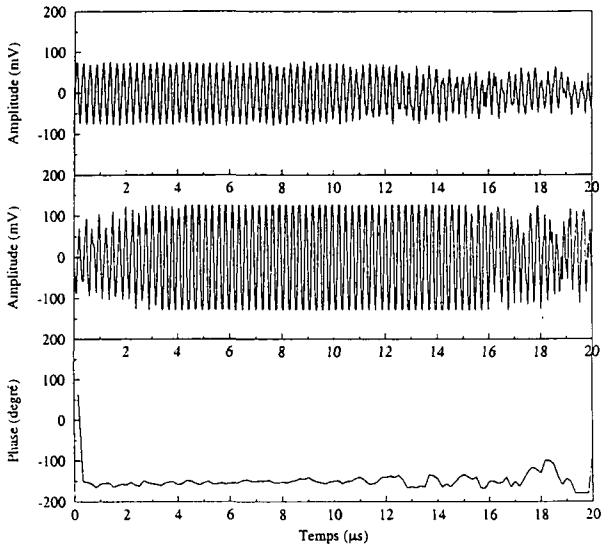
Nous nous proposons ici de détailler quelques résultats de mesure significatifs. Les signaux filtrés à l'aide de la banque de filtres commerciale Aerometrics et numérisés par l'oscilloscope numérique sont sauvegardés à l'aide d'un PC chargé de piloter l'acquisition ainsi que les paramètres de filtrage. Ces signaux phase Doppler sont traités post-acquisition par transformée de Fourier croisée à fenêtre glissante. Le principe en est le suivant:

- On choisit une taille de fenêtre contenant au moins une période des bouffées Doppler,
- On calcule une transformée de Fourier croisée sur les portions fenêtrées de signaux qui donne ainsi la valeur de la différence de phase entre ces portions fenêtrées,
- On fait glisser la fenêtre d'étude.
- On obtient ainsi l'évolution de la phase tout au long du signal. Il s'agit donc d'une évolution temporelle de phase lors de la traversée du volume de mesure par la particule, générant ces signaux phase Doppler.

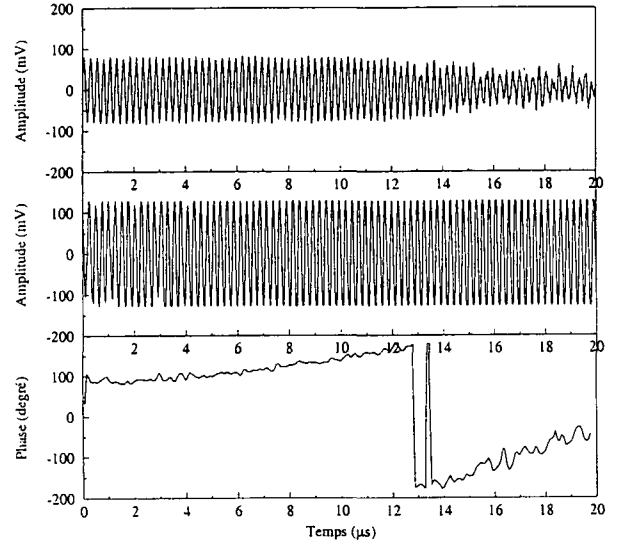
La différence de phase entre les signaux est directement reliée au diamètre de la particule détectée. Si la différence de phase évolue au cours du temps (donc pendant la traversée du volume de mesure), le diamètre apparent de la particule diffusante a varié. Plutôt que de parler de diamètre, nous parlerons dans la suite de rayon de courbure, terme mieux adapté en parlant de particules non sphériques pour lesquelles un unique diamètre n'est pas définissable.

Sur les graphiques de la figure(4), on a fait figuré un exemple de résultats pour chacune des hauteurs du jet diagnostiquées. Pour chaque cas, on distingue 3 tracés. Le premier graphe

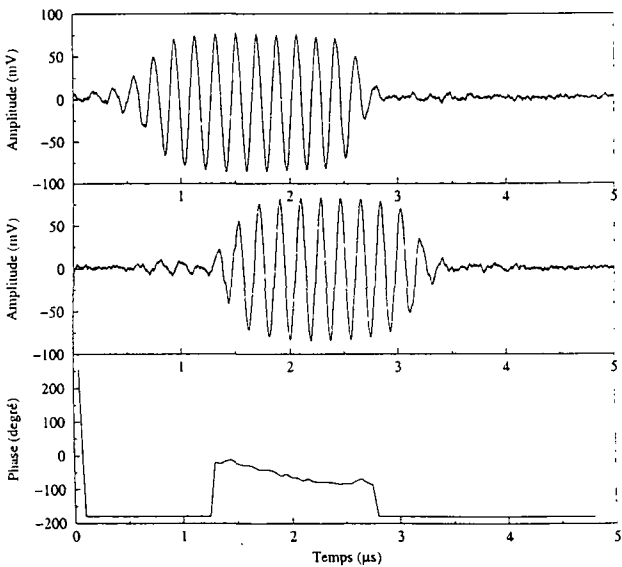
reproduit la voie 1 de l'oscilloscope et correspond par conséquent au signal reçu par le détecteur 1. En ordonnée se trouve donc l'amplitude en mV. Le second graphe est la reproduction de la voie 2 de l'oscilloscope-signal du détecteur 2 (ordonnée=amplitude en mV), et le troisième est le résultat de la transformée de Fourier croisée à fenêtre glissante effectuée sur les signaux des voies 1 et 2, son ordonnée est donc la phase en degré. L'abscisse commune aux trois graphes représente le temps en μs .



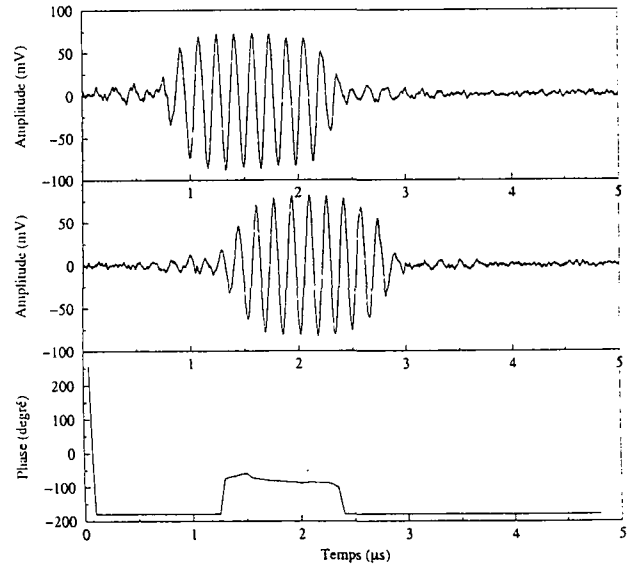
(a) Jet cylindrique



(b) Oscillation du jet avant la rupture



(c) Goutte oscillante



(d) Goutte sphérique

FIG. 4 - Plusieurs signaux phase Doppler

Nous ne pouvons pas utiliser les traitements commerciaux classiques qui déclenchent leurs analyses sur un front montant en amplitude de l'enveloppe gaussienne des bouffées Doppler. Sur des signaux issus de la partie cylindrique du jet (Fig.4(a), 4(b)), l'enveloppe des signaux

phase Doppler n'est pas gaussienne. Un niveau seuil ne peut donc pas être défini, ce qui entraîne qu'une acquisition ne peut pas être déclenchée. C'est pourquoi le système commercial n'a pas pu être utilisé ici.

Les signaux recueillis et ainsi traités sont présentés figure (4). Ils concernent la mesure du rayon de courbure transversal, première position de la sonde.

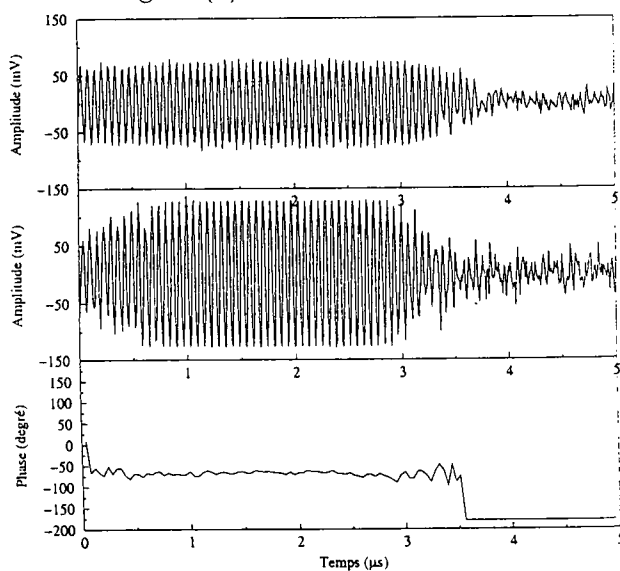
Lorsqu'une goutte individuelle parfaitement sphérique traverse le volume de mesure, les signaux Doppler appelés bouffées Doppler, ont la forme typique de la figure 4(d); la phase est alors constante tout au long de la bouffée indiquant ainsi que le rayon de courbure mesuré n'évolue pas, possède une valeur fixe. C'est ce que l'on observe sur les signaux issus de la partie gouttelettes sphériques du jet.

Avant toute déstabilisation, le jet est parfaitement cylindrique comme en atteste la photographie (2(b)). Le rayon de courbure présenté à la sonde est donc toujours le même. Cela se traduit par une phase plate sans aucune évolution (Fig.4(a)).

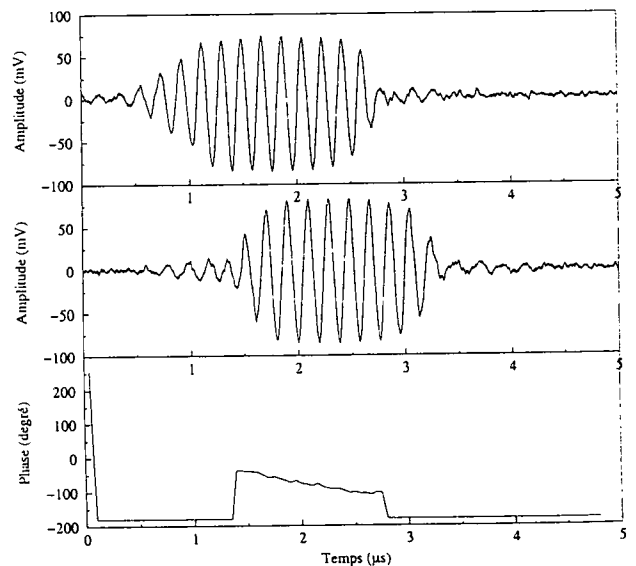
En descendant le long du jet, (Fig.4(b)), la surface du jet cylindrique commence à osciller. Cela se traduit du point de vue de la phase par une évolution lente. La phase croît pendant la traversée du volume de mesure par le jet; par conséquent le rayon de courbure transversal augmente créant un ventre. Le phénomène de rupture est donc engagé.

La figure (4(c)) présente le résultat de mesure sur une goutte oscillante, peu de temps après la rupture du jet. Les signaux phase Doppler sont alors des bouffées Doppler, signature d'une particule de dimension finie. La phase, dans le cas présenté, décroît; le rayon de courbure transversal de la goutte diminue: la goutte voit sa forme passer d'aplatie à allongée.

On obtient des résultats similaires pour l'autre orientation de la sonde (tournée de 90°), donnant lieu à des conclusions identiques. Un exemple de mesure du rayon de courbure longitudinal est donné figure (5).



(a) Jet cylindrique (signal obtenu au même point que la Fig.4(a))



(b) Goutte oscillante produite (signal obtenu au même point que la Fig.4(c))

FIG. 5 - Signaux phase Doppler relatifs au rayon de courbure longitudinal

Il existe néanmoins une solution pour pouvoir utiliser le système d'acquisition commercial. Il faut pour cela introduire une coupure dans les signaux issus de la partie cylindrique du jet,

c'est-à-dire du type des figures (4(a), 4(b), 5(a)). Cette interruption de signal provoquera la mise à zéro du seuil en intensité, créant ainsi artificiellement des bouffées Doppler. Cela peut se faire par l'intermédiaire d'un chopper introduit sur le parcours des faisceaux lasers incidents ou plus facilement sur le parcours du faisceau source avant le doubleur de faisceau.

4 Conclusion

L'utilisation d'une sonde compacte rétrodiffusion permet de diagnostiquer les évolutions de forme d'un jet cylindrique dont l'orientation par rapport aux faisceaux incidents est quelconque. Les variations de forme du jet sont déduites des évolutions du signal de phase. Il nous reste à relier les valeurs de phase aux valeurs de rayons de courbure. Ceci fait l'objet de l'écriture d'un code de simulation numérique afin d'en déduire les relations phase-diamètre. Nous disposerons ainsi de tous les outils pour permettre le diagnostic complet des objets cylindriques. Une extension prochaine est l'utilisation d'une sonde deux couleurs pour mesurer simultanément deux rayons de courbure et suivre leurs évolutions au cours du temps. L'intérêt est de déterminer les paramètres utiles pour la modélisation de la rupture que sont la fréquence d'oscillation, la longueur d'onde mais aussi par un traitement du signal approprié d'accéder aux petites oscillations de surface du jet (qui ont déjà pu être mesurées par réfractométrie d'arc-en-ciel par X. Han [6]).

Références

- [1] H. Mignon. *L'anémométrie phase Doppler et particules non sphériques: cas des cylindres et des ellipsoïdes*. PhD thesis, Université de Rouen, 1997.
- [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*, 2:1-10, 1997.
- [3] L. Mees, K.F. Ren, G. Gréhan, and G. Gouesbet. Scattering of a Gaussian beam by an infinite cylinder with arbitrary location and arbitrary orientation, numerical results. *Applied Optics*. (to be published).
- [4] H. Bultynck. *Développements de sondes laser Doppler miniatures pour la mesure de particules dans des écoulements réels complexes*. PhD thesis, Université de Rouen, 1998.
- [5] D. Blondel. *Conception et réalisation d'une sonde de métrologie optique pour l'étude de milieux industriels complexes*. PhD thesis, Université de Rouen, 1999.
- [6] X. Han, K. F. Ren, Z. Wu, F. Corbin, G. Gouesbet, and G. Gréhan. Characterization of initial disturbances in a liquid jet by rainbow sizing. *Applied Optics*, 37:8498-8503, 1998.

NOUVELLE ETUDE EXPERIMENTALE SUR LE DEPOT DE PARTICULES DANS UNE SONDE DE PRELEVEMENT CYLINDRIQUE A BORDS MINCES.

O. WITSCHGER[†], J. MALET^{*}, D. BOULAUD

Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN), Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols, DPEA/SERAC, CEA-Saclay, F-91191 Gif sur Yvette Cedex.

[†] olivier.witschger@ipsn.fr

ET

F. ROGER, J.F. FABRIES[‡], P. GÖRNER

Institut National de Recherche et de Sécurité (INRS), Laboratoire de Métrologie de la Pollution par les Aérosols, Avenue de Bourgogne, BP27, F-54501 Vandoeuvre Cedex.

[‡] fabries@inrs.fr

TITLE

A NEW EXPERIMENTAL INVESTIGATION ON THE PARTICLE TRANSMISSION IN TUBULAR SAMPLING PROBES.

ABSTRACT

Tubular thin-walled tubes are often used as reference probes when evaluating aerosol samplers in moving air or for measuring the aerosol characteristics in stacks and ducts. Particle deposition on the internal surfaces near the probe entrance has received attention in the past years, resulting in a number of correlations. Because these last-mentioned are applied to estimate the performance of existing samplers or analyze the sampling process in real-life situations, it is important that the correlations do not lead to bias. The present study was undertaken to bring new experimental data of transmission efficiency for comparisons with used correlations. Measurements were performed for particle aerodynamic diameters ranged from 10 μm to approximately 70 μm , wind velocities of 100 and 300 cm/s. One probe diameter (1.03 cm) and two inlet lengths (10 and 20 cm) were investigated. The trend and the magnitude of the transmission data are in good agreement with the laminar model (gravitational deposition in developed laminar flow). Moreover, the results show that inertial impaction towards the inner walls of the probe has to be taken into account in subsokinetic sampling conditions. Finally, the large data base of transmission efficiency of probes operating horizontally in isokinetic and subsokinetic conditions could be used for validating existing 3D two-fluid codes.

RÉSUMÉ

Les sondes cylindriques à bords minces sont très souvent utilisées comme sondes de référence durant les tests d'évaluation des performances des échantillonneurs d'aérosols dans des conditions d'air en mouvement ou encore pour caractériser le niveau de contamination particulaire dans les gaines de ventilation. Il existe dans la littérature un certain nombre de modèles ou de corrélations semi-empiriques qui permettent d'évaluer a priori et pour une configuration de prélèvement donnée le dépôt des particules dans ces sondes. Toutefois, ces modèles ont souvent été développés à partir de bases de données expérimentales relativement restreintes. Cette présente étude a été conduite afin d'acquérir de nouvelles données expérimentales sur le dépôt des aérosols, et de les confronter aux différents modèles existants qui sont habituellement utilisés. L'efficacité de transmission a été mesurée pour différentes valeurs du diamètre aérodynamique des particules (entre environ 10 μm et 70 μm), deux vitesses d'écoulement d'air extérieur (100 et 300 cm/s), deux longueurs de sondes (10 et 20 cm), et plusieurs vitesses de prélèvement comprises entre 25 et 150 cm/s. Un seul diamètre de sonde a été testé (1,03 cm). L'ensemble des essais a été conduit en configuration de prélèvement isocinétique ou subsocinétique. Les résultats font apparaître que la sédimentation et l'impaction inertielle sont les processus majeurs qui régissent le comportement des particules dans les configurations que nous avons étudiées. On constate toutefois des écarts significatifs entre les résultats de nos mesures et les valeurs calculées à partir des modèles de la littérature qui sont expliqués.

* Adresse actuelle : Von Karman Institute for Fluid Dynamics, Environmental and Applied Fluid Dynamics Department, Chaussée de Waterloo 72, 1640 Rhode-Saint-Genese, Belgium. Email : malet@vki.ac.be

Introduction

Le contrôle de la pollution particulaire dans l'air intérieur des locaux professionnels ou non, ou dans l'environnement, passe par une première étape qui est l'échantillonnage de l'air. Ce prélèvement s'effectue généralement à l'aide d'un dispositif qui aspire un échantillon d'air au travers d'un orifice conduisant ainsi les particules jusqu'à un étage de collecte, qui peut être par exemple un filtre. Les sondes de prélèvement cylindriques à bords minces représentent la forme la plus simple pour un dispositif de prélèvement. En configuration de prélèvement isoaxial, ces sondes n'imposent pratiquement pas d'obstacle à l'écoulement d'air incident. Ainsi, dans le cas d'un prélèvement isocinétique, l'efficacité de *captage* est unitaire et indépendante de la dimension des particules qui constituent l'aérosol, si l'on néglige l'effet de la gravité. De ce fait, les sondes cylindriques à bords minces sont très souvent utilisées comme sondes de référence durant les tests d'évaluation des performances des échantillonneurs d'aérosols dans des conditions d'air en mouvement (Witschger *et al.*, 1997a, 1998) ou encore pour caractériser le niveau de contamination particulaire dans les gaines de ventilation ou les cheminées (ACGIH, 1995).

Il existe à l'heure actuelle dans la littérature un certain nombre de modèles ou de corrélations semi-empiriques qui permettent d'évaluer a priori et pour une configuration de prélèvement donnée le dépôt des particules dans les sondes cylindriques à bords minces (Brockman, 1993, Renoux et Boulaud, 1998). Ces modèles sont également utilisés pour estimer a priori les performances de dispositifs de prélèvement disponibles dans le commerce (Grinshpun *et al.*, 1994), ou encore analyser l'effet de paramètres influants (vitesse de vent, turbulence, orientation, ...) sur l'échantillonnage (Kalatoor *et al.*, 1995). Toutefois, ces modèles ont souvent été développés à partir de bases de données expérimentales relativement restreintes, ce qui limite leur domaine de validité.

Cette étude a été conduite afin d'acquérir de nouvelles données expérimentales sur le dépôt des aérosols et de les confronter aux différents modèles existants qui sont habituellement utilisés. Les domaines de dimension des particules (environ 10 μm à 70 μm) et de vitesse d'écoulement (supérieures à 25 cm/s) auxquels nous nous sommes intéressés imposent que le dépôt dans les sondes s'effectue principalement par l'action des mécanismes de sédimentation et d'impaction inertielle.

Procédure expérimentale

Dans un conduit de prélèvement et pour une configuration donnée, on caractérise la pénétration des particules par une efficacité de *transmission* E_T . Pour un aérosol polydispersé, cette efficacité est décrite par la relation suivante :

$$E_T(d_a) = \frac{C_E(d_a)}{C_E(d_a) + C_D(d_a)}$$

où $C_E(d_a)$ et $C_D(d_a)$ désignent respectivement la quantité échantillonnée (par exemple sur le filtre) et la quantité déposée (dans le conduit de prélèvement) de l'aérosol capté qui correspond au diamètre aérodynamique d_a . On note d'après l'équation ci-dessus qu'une mesure de l'efficacité de transmission ne nécessite pas de prélèvement de référence.

Deux longueurs de sondes cylindriques à bords minces (10 et 20 cm) et un seul diamètre (1,03 cm) ont été testés. Pour ces deux sondes l'efficacité de *transmission* a été mesurée pour deux vitesses d'écoulement d'air extérieur (100 et 300 cm/s) et plusieurs vitesses d'aspiration de l'air (entre 25 et 150 cm/s), qui correspondent à des configurations de prélèvement isocinétique ou subsocinétique. La méthodologie de mesure des efficacités qui a été développée (Witschger *et al.*, 1997b) utilise un aérosol d'essai polydispersé qui est composé de particules sphériques en verre. L'utilisation de cette méthode permet d'effectuer des mesures d'efficacité pour des diamètres aérodynamiques compris entre environ 10 μm et 70 μm .

L'ensemble des tests ont été effectués dans un tunnel aéraulique à l'Institut National de Recherche et de Sécurité (INRS). La figure 1 montre une représentation schématique de l'installation qui a été décrite par Witschger *et al.* (1997b). Le système d'injection de l'aérosol d'essai polydispersé dans le flux d'air propre est composé d'un générateur à lit fluidisé couplé à un générateur d'ions bipolaires pour la neutralisation des charges.

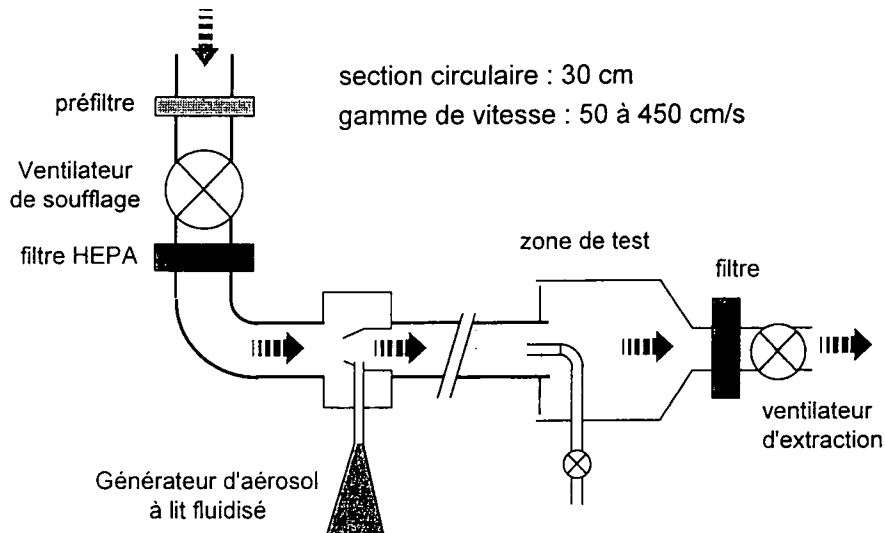


Figure 1 : Schéma de l'installation aéraulique expérimentale de l'INRS utilisée lors des expérimentations.

La technique d'analyse mise en oeuvre lors des expériences utilise le principe Coulter® pour l'analyse granulométrique des fractions déposées et échantillonnées de l'aérosol d'essai (Witschger, 1996).

Résultats et discussion

Une première série d'expériences a été conduite pour une vitesse d'écoulement d'air de 100 cm/s, et les résultats confrontés à deux modèles de la littérature qui décrivent :

- le dépôt par sédimentation dans un conduit cylindrique horizontal pour écoulement d'air laminaire *développé* (Fuchs, 1964),

- le dépôt par un effet conjugué de la sédimentation et de la pénétration inertielle dans la couche limite en développement (Okazaki et Willeke, 1987).

Le premier modèle a été retenu car les nombres de Reynolds des écoulements Re dans les sondes pour l'ensemble des configurations testées sont systématiquement inférieurs à 1100, ce qui montre que les écoulements sont laminaires. Le deuxième modèle a été choisi afin de confirmer les résultats d'une étude préliminaire sur les sondes cylindriques à bords minces (Witschger, 1996) qui avait mis en évidence un écart significatif entre des calculs effectués avec le modèle d'Okazaki et Willeke (1987) et des résultats de mesures.

Les figures 2 et 3 comparent nos résultats expérimentaux aux deux modèles. L'ensemble des données d'efficacité de transmission est représenté en fonction d'un paramètre sans dimension Z représentatif de la sédimentation dans un conduit. Ce paramètre est le rapport du temps de

séjour de la particule le long du conduit (L/U_i) au temps mis par la particule pour sédimenter (D/V_s) où L et D représentent respectivement la longueur et le diamètre de la sonde, U_i la vitesse moyenne d'aspiration, et V_s la vitesse de sédimentation des particules.

Un premier constat est que le modèle d'Okazaki et Willeke (1987) n'est pas en très bon accord avec l'ensemble de nos données, ce qui confirme les résultats de l'étude préliminaire de Witschger (1996). Cet écart peut s'expliquer par le fait qu'Okazaki et Willeke (1987) n'ont utilisé dans l'élaboration de leur modèle qu'un nombre limité de données expérimentales, et dont la très grande majorité correspondent à la configuration A de la figure 2. Ainsi, l'influence de certains facteurs comme la longueur de la sonde ou encore le rapport entre la vitesse d'air à l'extérieur et la vitesse d'aspiration a pu être masquée.

Les figures 2 et 3 indiquent également que nos données sont en meilleur accord avec le modèle laminaire au fur et à mesure que la vitesse d'aspiration diminue. Ceci s'explique par le fait que pour une géométrie donnée de sonde, l'écoulement est d'autant plus développé (c'est à dire correspondant au domaine de validité du modèle de Fuchs (1964)) que la vitesse d'air dans la sonde (U_i) est faible.

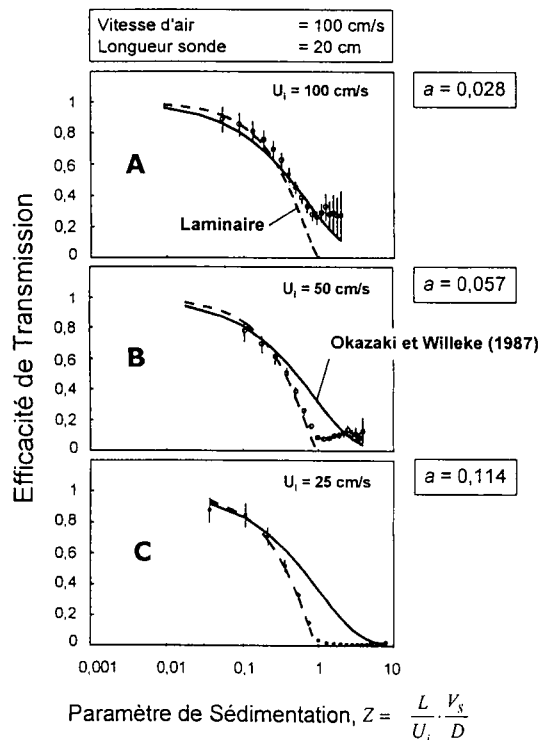


Figure 2 : Comparaison des efficacités de transmission avec les modèles d'Okazaki et Willeke (1987) et laminaire pour différentes vitesses d'aspiration. Vitesse d'air = 100 cm/s, Longueur de sonde = 20 cm.

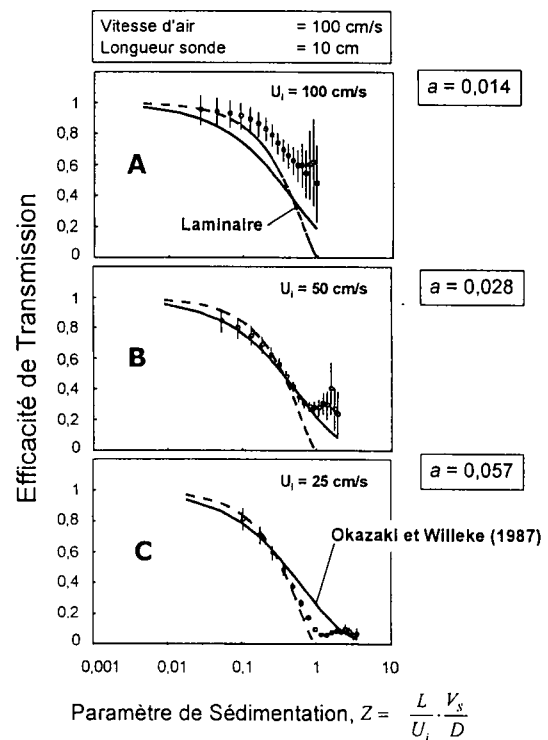


Figure 3 : Comparaison des efficacités de transmission avec les modèles d'Okazaki et Willeke (1987) et laminaire pour différentes vitesses d'aspiration. Vitesse d'air = 100 cm/s, Longueur de sonde = 10 cm.

On caractérise l'état de développement d'un écoulement dans un conduit à l'aide du paramètre a suivant :

$$a = \frac{L}{D Re}$$

On admet généralement qu'une valeur de $a > 0,065$ correspond à un écoulement qui est développé (Schlichting, 1979). D'après les figures 2 et 3, on voit que tant que $a < 0,065$, les efficacités mesurées se trouvent au dessus de la courbe du modèle *laminaire*. La configuration C de la figure 2 qui correspond à $a = 0,114$, donc à un écoulement développé, montre que dans ce cas nos données sont en très bon accord avec le modèle laminaire. Ainsi, il est possible à partir de la connaissance de la valeur du paramètre a d'évaluer a priori et pour une configuration de prélèvement donnée l'écart entre l'efficacité de transmission réelle et celle que nous donne le modèle laminaire.

On peut noter d'après les figures 2 et 3 que pour une configuration donnée, l'efficacité semble atteindre à partir d'une certaine valeur de Z une valeur seuil qui reste constante. Cette évolution ne s'explique pas si l'on prend uniquement en compte le mécanisme de sédimentation. On peut avancer différentes hypothèses pour expliquer cette tendance qui portent sur :

- un phénomène de rebond des particules,
- un effet combiné entre l'impaction virtuelle et la sédimentation,
- l'effet de la force de portance qui serait due au gradient de vitesse de l'air à la paroi.

A l'heure actuelle, il existe un défaut de connaissance dans ces domaines et il n'est pas possible de confirmer ou d'infirmer de manière catégorique l'une des hypothèses avancées. Si la première hypothèse pourrait être testée expérimentalement, les deux autres hypothèses nécessiteraient une étude numérique multi-dimensionnelle permettant la prise en compte des différentes forces agissant sur une particule.

A partir de résultats issus d'une étude numérique, Liu *et al.* (1989) avancent l'hypothèse qu'en configuration de prélèvement subsocinétique (c'est à dire lorsque la vitesse d'aspiration est inférieure à la vitesse d'air à l'extérieur), le mécanisme de dépôt par impaction inertielle apparaît. En effet, des particules possédant une certaine inertie ne suivent pas correctement les filets fluides qui divergent à l'approche de l'orifice d'entrée du conduit et ainsi s'impactent sur les parois internes de la sonde. Le modèle qu'ils développent n'est issu que de résultats numériques et n'a donc jamais été confronté à des résultats expérimentaux. Pour mettre en évidence la présence d'impaction inertielle, il convient expérimentalement de se placer dans des conditions favorables puisque nos expériences ne permettent pas de faire abstraction de la sédimentation. Ainsi, une deuxième série d'expériences a été conduite pour une vitesse d'air extérieur de 300 cm/s. La figure 4 compare les résultats expérimentaux au modèle laminaire ainsi qu'au modèle qui décrit l'impaction inertielle. Ces résultats montrent clairement que le mécanisme d'impaction inertielle existe puisque l'évolution de l'efficacité expérimentale est bien décrite par le modèle de Liu *et al.* (1989) dès lors que la composante de sédimentation n'est pas trop importante (ce qui correspond à la sonde la plus courte et aux diamètres de particules les plus petits).

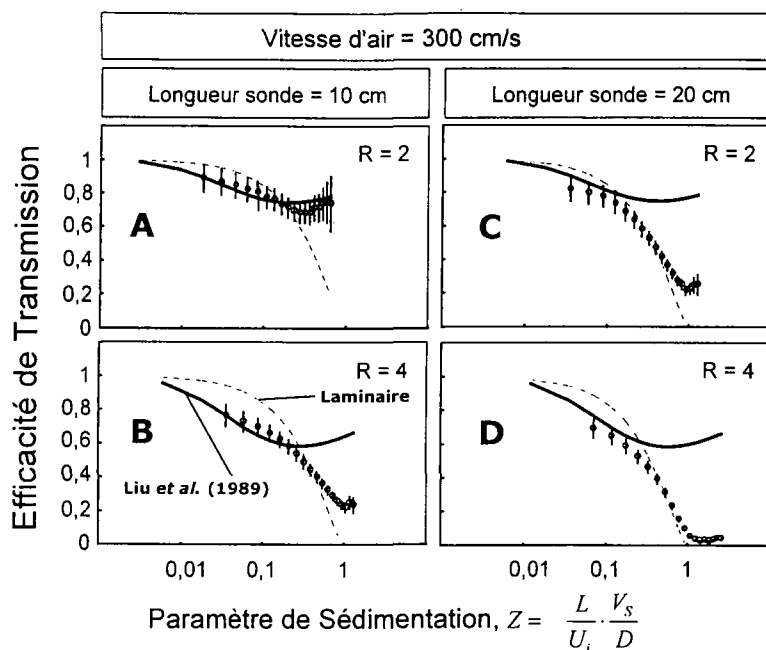


Figure 4 : Comparaison des efficacités de transmission avec les modèles de Liu *et al.* (1989) et laminaire pour différentes vitesses d'aspiration. Vitesse d'air = 300 cm/s, Longueur de sonde = 10 et 20 cm. R représente le rapport entre la vitesse d'air à l'extérieur et la vitesse d'aspiration dans la sonde.

Conclusion

Les résultats expérimentaux d'efficacité de transmission de sondes cylindriques à bords minces qui ont été obtenus dans cette étude sont relativement bien décrits par le modèle laminaire (dépôt par sédimentation dans un conduit) si l'on prend en compte un paramètre de développement de l'écoulement d'air dans la sonde.

Les résultats confirment les résultats numériques de Liu *et al.* (1989) sur l'existence du phénomène d'impaction inertielle des particules sur les surfaces internes d'une sonde cylindrique en prélèvement subsocinétique.

La base de données d'efficacité (environ 200 données) issue de cette étude peut être utilisée pour valider des outils de modélisation du type code bi-fluide qui sont en développement ou disponibles dans le commerce.

Afin de contribuer à une meilleure connaissance du phénomène de dépôt, cette étude demande à être poursuivie dans le but d'évaluer notamment le phénomène de rebond des particules ou bien encore l'effet de la force de portance. Enfin, il conviendrait également de combiner les composantes d'impaction inertielle et de sédimentation dans un modèle de type semi-empirique "général" qui pourrait être utilisé pour l'évaluation des performances d'échantillonnage de dispositifs de prélèvement d'aérosols.

Références

ACGIH (1995) Air sampling instruments for evaluation of atmospheric contaminants. 8th Edition. *Editors : Cohen, B.S. and Hering, S.V., ACGIH, Cincinnati, Ohio.*

Brockmann, J.E. (1993) Sampling and Transport of Aerosols. in *Aerosol Measurement. Principles, Techniques and Applications. Editors : Willeke, K. and Baron, P.A., Van Nostrand Reinhold, NY.*

Fuchs, N.A. (1964) The Mechanics of Aerosols. *Dover Publications, New-York.*

Grinshpun, S.A., Chang, C.W., Nevalanen, A., Willeke, K. (1994) Inlet characteristics of bioaerosol samplers. *J. Aerosol Sci., 25, 1503-1522.*

Kalatoor, S., Grinshpun, S., Willeke, K. (1995) Aerosol sampling fluctuating flows into sharp-edged tubular inlets. *J. Aerosol Sci., 26, 387-398.*

Liu, B.Y.H., Zhang, Z.Q., Kuehn, T.H. (1989) A numerical study of inertial errors in anisokinetic sampling. *J. Aerosol Sci., 20, 367-380.*

Okazaki, K., Willeke, K. (1987) Transmission and deposition behavior of aerosols in sampling inlets. *Aerosol Sci. Technol., 7, 275-283.*

Renoux, A. and Boulaud, D. (1998) Les Aérosols : Physique et Métrologie. *Lavoisier, Technique et documentation, Paris.*

Schlichting, H. (1979) Boundary Layer Theory. *7th edition. Mc Graw-Hill, New-York.*

Witschger, O. (1996) Etude théorique et expérimentale des facteurs physiques d'échantillonnage des polluants particulaires. Applications aux capteurs à fente annulaire. *Thèse de doctorat. Université Paris XII. 15 mars 1996.*

Witschger, O., Fabriès, J.F., Görner, P. (1997a) Particle entry efficiency of an annular slot aerosol sampler. *J. Aerosol Sci., 28, S679-S680.*

Witschger, O., Wrobel, R., Fabriès, J.F., Görner, P., Renoux, A. (1997b) A new experimental wind tunnel facility for aerosol sampling investigations. *J. Aerosol Sci., 28, 833-851.*

Witschger, O., Willeke, K., Grinshpun, S.A., Aizenberg, Smith, J., Baron, P.A. (1998) Simplified method for testing personal inhalable aerosol samplers. *J. Aerosol Sci., 29, 855-874.*

Détermination expérimentale de l'efficacité de captage en air calme d'un échantillonneur à fente annulaire

F. Roger^(1,2), J.F. Fabriès⁽¹⁾, P. Görner⁽¹⁾, R. Wrobel⁽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.

Mots-clefs: échantillonneur/fente annulaire/air calme/efficacité de captage
Keywords: sampler/annular slot/calm air/entry efficiency

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 de l'air extérieur, la vitesse d'aspiration ainsi que la géométrie de l'échantillonneur. Dans l'air en mouvement les forces d'inertie représentent le phénomène physique prédominant agissant sur le captage des particules micrométriques. Dans l'air calme, le mouvement de l'air au voisinage de l'échantillonneur est essentiellement induit par l'aspiration, et la sédimentation des particules sous l'action de la gravité joue un rôle plus important sur le captage.

Récemment, l'efficacité de captage d'un échantillonneur possédant une fente d'aspiration annulaire a été mesurée dans un écoulement d'air horizontal pour plusieurs configurations géométriques, vitesses d'aspiration et vitesses de vent extérieur (1 et 3 m s⁻¹). Le travail présenté ici correspond à l'étude complémentaire du comportement de cet échantillonneur dans l'air calme. L'efficacité de captage a été mesurée pour 9 configurations de l'échantillonneur, combinant plusieurs valeurs de la hauteur de la fente annulaire d'aspiration, du diamètre et de la vitesse d'aspiration. Un modèle semi-empirique représentant l'efficacité de captage a pu être développé sur la base des données expérimentales. Par ailleurs, une étude numérique permettant de calculer les trajectoires des particules à l'approche de la fente d'aspiration de l'échantillonneur a été menée. Les résultats ont permis de mettre en évidence un effet significatif des rebonds des particules sur l'efficacité de captage en air calme.

Abstract

Aerosol sampling is a complex physical process that depends on many parameters like particle size, wind speed, aspiration velocity and sampler geometry. Inertia has a predominant influence on particle motion in moving air for particle size above 1 μm . In calm air where air movement is mainly induced by the aspiration orifice of the sampler, gravitational settling affects more deeply particle motion and hence sampler performance.

The entry efficiency of a sampler with an annular aspiration slot was recently measured for several conditions of aspiration flow rate, wind speed (1 and 3 m s⁻¹) and geometric parameters of the sampler as a function of particle aerodynamic diameter. Some complementary work was carried out to add new experimental data corresponding to the same sampler in calm air. The results were obtained for 9 configurations, combining several values of disc diameter, aspiration slot width, and aspiration velocity. A semi-empirical model was developed from the data that enables the calculation of particle entry efficiency of the annular sampler in calm air. In addition, a numerical study was carried out to calculate the particle trajectories approaching the annular aspiration slot of the sampler. The results show that particle rebounds on the sampler walls have a significant effect on the entry efficiency of the sampler in calm air.

1 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. La performance des échantillonneurs est habituellement évaluée en mesurant leur efficacité de captage dans l'air en mouvement. Dans ces conditions, plusieurs phénomènes physiques influent directement sur le processus de captage, en particulier les forces d'inertie, ainsi que la vitesse de l'air ambiant (W) et la vitesse d'aspiration au niveau de l'orifice (U_s). Des études récentes [1] ont montré que les vitesses d'air rencontrées sur les lieux de travail sont généralement très faibles, souvent inférieures à $0,3 \text{ m s}^{-1}$. Dans ces conditions d'air calme, la sédimentation des particules joue un rôle particulièrement important, modifiant ainsi le comportement de ces échantillonneurs.

Lors d'une étude précédente [2], l'efficacité de captage d'un échantillonneur à fente annulaire a été mesurée dans l'air en écoulement horizontal pour plusieurs configurations géométriques, vitesses d'aspiration et vitesses de vent extérieur (1 et 3 m s^{-1}). Nous proposons ici de compléter les données expérimentales relatives à cet échantillonneur en étudiant son comportement dans l'air calme. Nous avons étudié 9 configurations de l'échantillonneur, combinant plusieurs valeurs de la hauteur de la fente d'aspiration ($h = 1,1$ et $2,5 \text{ mm}$), du diamètre du disque ($D_s = 30$ et 50 mm) et de la vitesse d'aspiration ($U_s = 0,55$ à $2,08 \text{ m s}^{-1}$). Par ailleurs, on a utilisé un code de calcul pour déterminer les trajectoires des particules à l'approche de la fente d'aspiration, et également l'efficacité de captage de l'échantillonneur pour une configuration donnée.

2 Etude expérimentale

2.1 Dispositif expérimental

L'étude en air calme a nécessité la réalisation d'un tunnel vertical avec une très faible vitesse d'écoulement, compatible avec une configuration d'air calme.

L'installation, décrite dans la figure 1, est composée de deux parties. La première est constituée d'un conduit horizontal de diamètre $0,04 \text{ m}$ et de longueur $0,28 \text{ m}$. En amont de ce conduit est placé le système de génération d'aérosol, ainsi que le système de neutralisation de charges électriques produisant des ions bipolaires. L'aérosol, généré à l'aide d'un système à lit fluidisé, est injecté dans le conduit horizontal, puis entraîné vers la partie supérieure du tunnel vertical par le flux d'air sortant du système de neutralisation. La deuxième partie est composée d'un tunnel vertical de $0,4 \text{ m}$ de diamètre et 2 m de longueur. La zone de mesure est située environ à 15 cm en amont de la section de sortie du tunnel vertical. La partie supérieure est équipée d'un système d'introduction d'air propre à jets croisés, permettant de diluer et d'homogénéiser l'aérosol d'essai. L'écoulement est stabilisé à l'aide d'une structure en nid d'abeille, placée à $1,5 \text{ m}$ en amont de la zone de mesure. Pour éliminer les risques de rejet des particules vers l'extérieur, un système de reprise d'air a été installé en aval de la zone test. Il est constitué d'un caisson de reprise et d'un ventilateur d'extraction.

L'évaluation de la vitesse moyenne dans le tunnel vertical a été faite par le calcul de la vitesse débitante sur la section du tunnel. Le flux d'air dans le tunnel est apporté par le débit de soufflage du neutraliseur de charges (60 l min^{-1}), le débit du générateur à lit fluidisé (40 l min^{-1}) et le débit du système d'injection d'air propre à jets croisés (100 l min^{-1}). Sur une section de $0,125 \text{ m}^2$, on obtient ainsi une vitesse débitante W de $0,027 \text{ m s}^{-1}$.

L'aérosol d'essai utilisé pour les expériences est un aérosol polydispersé constitué de micro-sphères de verre (Verre Industrie, Croissy Beaubourg, France). La concentration de l'aérosol dans la zone de mesure est de 30 mg m^{-3} . La variabilité spatiale de la concentration

par tranches granulométriques de l'aérosol d'essai dans la zone de mesure a été estimée inférieure à 7% pour des particules de diamètre aérodynamique (D_{ae}) compris entre 10 et 50 μm .

2.2 Détermination expérimentale de l'efficacité de captage en air calme

La concentration en aérosol capté (C_s) par l'échantillonneur, correspondant aux particules ayant traversé la fente d'aspiration, est déterminée expérimentalement et comparée à la concentration réelle de l'aérosol d'essai (C_0). Pour toute valeur de D_{ae} , l'efficacité de captage est donnée par la relation :

$$E_c(D_{ae}) = \frac{C_s(D_{ae})}{C_0(D_{ae})} \quad (1)$$

La méthodologie expérimentale utilisée pour cette étude est la même que celle mise au point par Witschger *et al.* [3]. Une différence notable porte sur l'échantillonnage de référence. Dans les conditions d'air calme, l'efficacité de captage d'une sonde de référence engendre un biais systématique sur les caractéristiques de l'aérosol échantillonné par rapport à l'aérosol total pour des valeurs de D_{ae} élevées [4, 5]. Le prélèvement de référence a été choisi selon les critères rencontrés dans la littérature pour des conditions d'air calme [6–9]. Les caractéristiques de l'aérosol d'essai ont été déterminées à l'aide d'une sonde conique à bord mince, placée verticalement et dirigée vers le haut, travaillant à un débit de 10 l min^{-1} à travers un orifice circulaire de 20 mm de diamètre. Nous avons pu montrer à l'aide du code de calcul Fluent/Uns (Fluent Inc., Lebanon, NH, USA) que dans nos conditions expérimentales ($W = 0,027 \text{ m s}^{-1}$), l'efficacité de captage d'une telle sonde est proche de l'unité pour $1 \leq D_{ae} \leq 70 \mu\text{m}$, et > 1 au-delà, traduisant l'effet de gravité.

Pour mesurer la concentration et la distribution granulométrique de l'aérosol, les particules déposées sur le filtre de collection et également à l'intérieur de la sonde de référence ou de l'échantillonneur étudié ont été prises en compte. La distribution en nombre des particules captées en fonction de leur diamètre équivalent en volume a été mesurée à l'aide d'un compteur Coulter Multisizer® (Coulter Electronics Ltd., Luton, UK). La conversion $D_v \rightarrow D_{ae}$ a été effectuée en utilisant la valeur de la masse volumique des microsphères de verre qui est de 2,48 g cm^{-3} .

2.3 Résultats et discussion

Plusieurs configurations de l'échantillonneur à fente annulaire ont été étudiées pour différentes valeurs de la hauteur de la fente d'aspiration (1,1 et 2,5 mm), du diamètre du disque (30 et 50 mm) et de la vitesse d'aspiration (0,55 à 2,08 m s^{-1}). Les résultats expérimentaux d'efficacité de captage E_c sont représentés graphiquement avec leur intervalle de confiance au niveau 95 %. Les courbes tracées sur les figures représentent l'efficacité de captage de l'échantillonneur calculée à partir du modèle semi-empirique présenté plus loin.

La figure 2 montre les résultats correspondant à une géométrie donnée du capteur ($h = 1,1 \text{ mm}$ et $D_s = 30 \text{ mm}$) et pour deux vitesses d'aspiration ($U_s = 0,55$ et $2,08 \text{ m s}^{-1}$). E_c est proche de l'unité pour $D_{ae} < 30 \mu\text{m}$, puis elle diminue faiblement lorsque la taille des particules augmente. Cet effet est plus significatif pour la faible vitesse d'aspiration (0,55 m s^{-1}). Les petites particules ont une inertie et une sédimentation négligeables, elles suivent par conséquent l'écoulement induit par l'aspiration de l'échantillonneur. Les grosses particules sédimentent sous l'effet de la gravité et sont moins affectées par l'accélération de la vitesse de l'air à l'approche de l'échantillonneur. Il existe une compétition entre les effets de gravité traduits par la vitesse de sédimentation des particules (V_s) et les effets inertiels induits par le champ de vitesse au voisinage de l'échantillonneur.

La figure 3 montre l'influence du paramètre h sur l'efficacité de captage, pour un débit d'aspiration Q et un diamètre du disque D_s fixés. Les données expérimentales sont sensiblement identiques pour les deux valeurs de h . Ainsi, la variation de la hauteur de la fente d'aspiration ne semble pas affecter directement le processus de captage de l'échantillonneur, du moins à débit constant. Comme la vitesse d'aspiration varie entre ces

deux cas, les résultats traduisent en fait une certaine compensation entre l'effet de la vitesse d'aspiration U_s et l'effet de la hauteur de fente h à débit constant.

L'influence du paramètre D_s sur l'efficacité de captage est présentée dans la figure 4 pour une vitesse d'aspiration U_s et une hauteur de fente h fixées. On peut observer que l'augmentation de D_s pour une valeur donnée de D_{ae} entraîne une diminution de E_c . Dans ces conditions le rapport V_s/U_s reste constant, et seule la géométrie de l'échantillonneur est modifiée. La figure 4 montre bien que l'efficacité de captage est sensible à ce paramètre.

Un modèle semi-empirique simple, comportant 3 paramètres ajustables, a été développé pour représenter les données. Ce modèle comporte un groupe sans dimension (D_s/h) lié directement à la géométrie de l'échantillonneur, et un autre groupe adimensionnel (V_s/U_s) lié à la sédimentation des particules. Aucun terme d'inertie n'a été incorporé. Les paramètres ont été optimisés en utilisant la méthode des moindres carrés et en prenant en compte les variances expérimentales. L'équation finale du modèle est la suivante :

$$E_{c \text{ modélisée}} = \exp \left(-0,3797 \cdot \left(\frac{D_s}{h} \right)^{0,6113} \cdot \left(\frac{V_s}{U_s} \right)^{0,7344} \right) \quad (2)$$

Cette fonction est continûment décroissante en fonction de D_{ae} , par l'intermédiaire de V_s . La limite supérieure d'efficacité de captage est égale à l'unité tandis que la limite inférieure est 0. La somme des résiduels pondérés S^2 a été comparée à la valeur standard du χ^2 pour un niveau de probabilité à 95 %. Cette valeur ($S^2 = 252$) est supérieure à celle du χ^2 ($\chi^2 = 140$, pour $\nu = 114$ degrés de liberté), montrant que le modèle représente de manière assez correcte l'ensemble des données expérimentales, tout en présentant encore certains écarts systématiques. Le modèle pourrait être amélioré ; il serait probablement utile d'introduire un terme d'inertie complémentaire.

3 Etude numérique

3.1 Position du problème

L'étude consiste à calculer les trajectoires de particules positionnées initialement en amont de l'échantillonneur et à déterminer celles qui aboutissent finalement à l'orifice d'aspiration. Le problème a été résolu à l'aide du logiciel Fluent/Uns en 3D, en utilisant une solution adaptée à un maillage tétraédrique non structuré. En fait dans cette situation d'air calme, le problème se résume à un problème 2D en raison de la symétrie de révolution autour de l'axe vertical de l'échantillonneur. Ce n'est bien sûr plus le cas si l'échantillonneur est placé dans un écoulement horizontal. L'écoulement a été supposé incompressible, irrotationnel et laminaire. La phase discrète est simulée selon le modèle Lagrangien. Le calcul des trajectoires de particules tient compte de la force de traînée [10] et de la force de gravité. Deux conditions aux parois ont été étudiées : les particules avaient la possibilité d'adhérer ou de rebondir sur les parois de l'échantillonneur.

3.2 Détermination par calcul numérique de l'efficacité de captage

Le calcul de l'efficacité de captage est fondé sur la détermination de la surface des trajectoires limites de particules, qui contient toutes les particules captées au niveau de la fente d'aspiration. La concentration C_0 de l'aérosol non perturbé par la présence de l'échantillonneur est déterminée à partir du nombre de particules traversant par unité de temps l'aire de section droite de la surface des trajectoires limites A_0 à la vitesse $V_0 = W + V_s$. La concentration C_s de l'aérosol capté est déterminée à partir du nombre de particules traversant par unité de temps l'aire de section droite de la fente à la vitesse d'aspiration U_s .

L'équation (1) devient :

$$E_c = \frac{A_0 \cdot V_0}{A_s \cdot U_s} \quad (3)$$

Les trajectoires de particules sont déterminées par calcul numérique, permettant ainsi de définir l'aire A_0 et de calculer l'efficacité de captage.

3.3 Résultats et discussion

Le comportement de l'échantillonneur à fente annulaire a été étudié en air calme pour une configuration donnée ($h = 2,5$ mm ; $D_s = 30$ mm ; $U_s = 0,55$ m s⁻¹). La figure 5 montre les trajectoires limites d'une particule de 20 μ m, calculées avec et sans effets de rebond aux parois. Lorsqu'on prend en compte les effets de rebond des particules sur les parois, l'aire A_0 est plus importante que sans effets de rebond.

L'ensemble des données expérimentales et numériques pour cette configuration d'échantillonneur est reporté sur la figure 6. Lorsque les effets de rebond aux parois ne sont pas pris en compte, l'efficacité de captage décroît fortement avec l'augmentation de la taille des particules. Les résultats obtenus en tenant compte du rebond des particules à la surface de l'échantillonneur sont en bon accord avec les données expérimentales.

4 Conclusion

L'étude a été menée pour étudier le comportement des échantillonneurs à fente annulaire dans des conditions d'air calme. Ce travail a nécessité au préalable la réalisation d'un tunnel vertical reproduisant ces conditions, et la mise au point d'un prélèvement de référence approprié en vue de caractériser la concentration et la granulométrie de l'aérosol d'essai.

Les données expérimentales ont pu être représentées correctement à l'aide d'un modèle simple semi-empirique. Il reste cependant à unifier la représentation des données correspondant à la fois à l'air calme et à l'air en mouvement.

Par ailleurs, les résultats de l'étude numérique sont en bon accord avec les données expérimentales. Ils présentent l'avantage de montrer que les effets de rebond des particules sur les parois externes de l'échantillonneur ne sont pas négligeables vis à vis de l'efficacité de captage.

-
- [1] Baldwin, P. E. J. and Maynard, A. D. (1998) *Ann. occup. Hyg.*, **42** (5), 303-313.
 - [2] Witschger, O., Fabriès, J. F., Görner, P. (1997) *J. Aerosol Sci.*, **28** (Suppl. 1), S679-S680.
 - [3] Witschger, O., Wrobel, R., Fabriès, J. F., Görner, P., Renoux, A. (1997) *J. Aerosol Sci.*, **28**, 833-851.
 - [4] Breslin, J. A. and Stein, R. L. (1975) *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, **36**, 576-583.
 - [5] Gibson and Ogden, T. L. (1977) *J. Aerosol Sci.*, **8**, 361-365.
 - [6] Davies, C. N. (1968) *Brit. J. Appl. Phys.*, **2** (1), 921-932.
 - [7] Yoshida, H., Uragami, M., Masuda, H. and Iinoya, K. (1978) *Kagaku Kogaku Robunshu*, **4**, 123-128.
 - [8] ter Kuile, W. M. (1979) *J. Aerosol Sci.*, **10**, 241-242.
 - [9] Agarwal, J. K. and Liu, B. Y. H. (1980) *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, **41**, 191-197.
 - [10] Morsi, S. A. and Alexander, A. J. (1972) *J. Fluid Mech.*, **55** (2), 193-208.

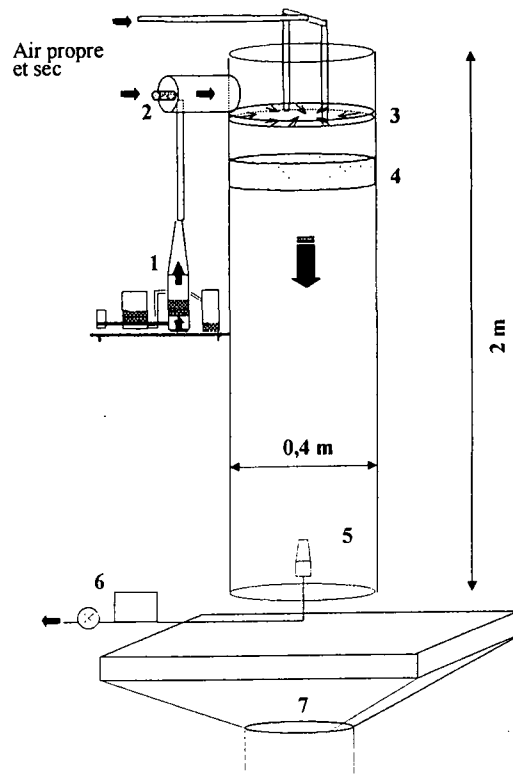


Figure 1 : Schéma du tunnel vertical. 1 : générateur à lit fluidisé, 2 : neutraliseur de charges à effet couronne, 3 : système d'injection d'air propre à jets croisés, 4 : structure en nid d'abeille, 5 : zone de mesure, 6 : système de prélèvement, 7 : système de reprise.

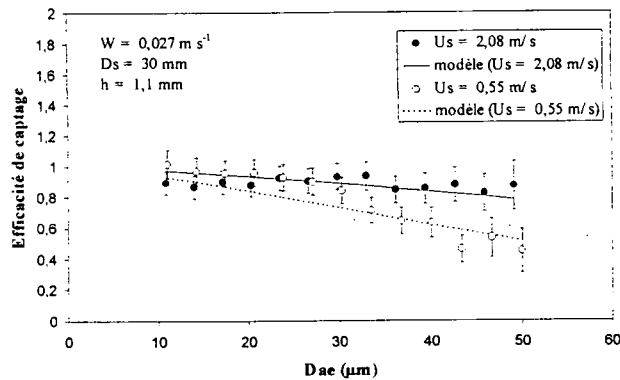


Figure 2 : Mise en évidence de l'influence de la vitesse d'aspiration U_s de la fente annulaire sur l'efficacité de captage de l'échantillonneur en air calme.

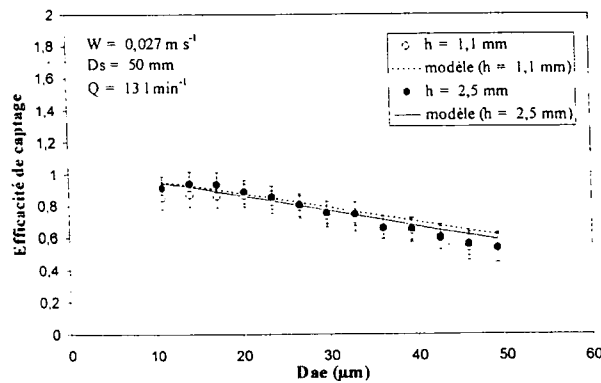


Figure 3 : Mise en évidence de l'influence de la hauteur h de la fente annulaire sur l'efficacité de captage de l'échantillonneur en air calme.

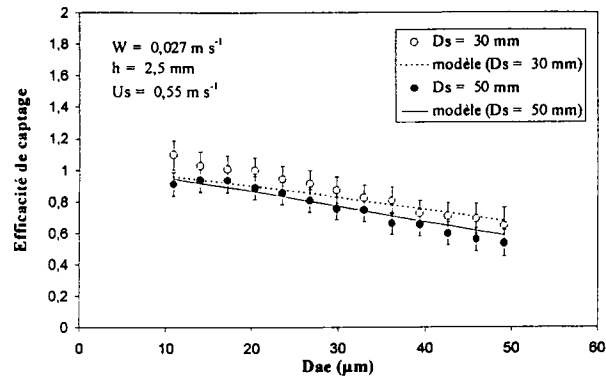


Figure 4 : Mise en évidence de l'influence du diamètre du disque D_s sur l'efficacité de captage de l'échantillonneur en air calme.

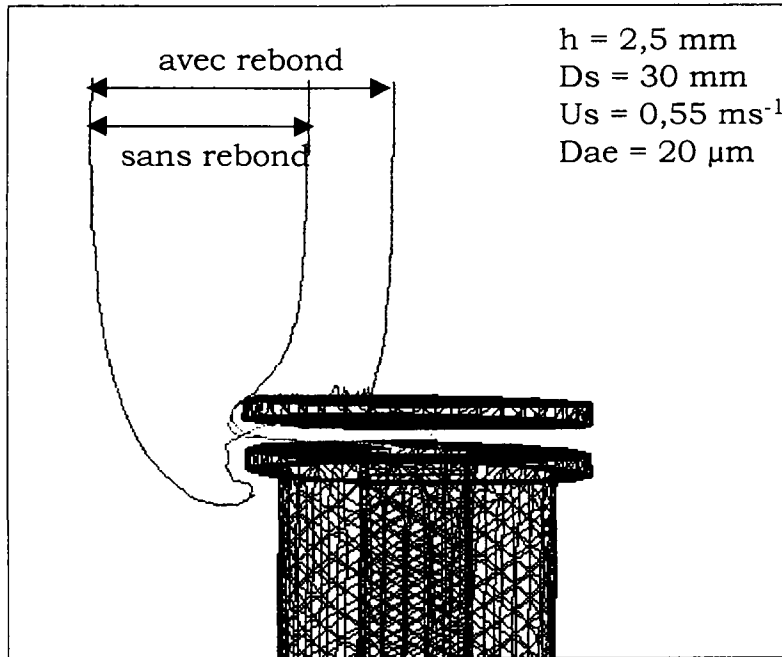


Figure 5 : Trajectoires limites d'une particule de $20 \mu\text{m}$ calculées avec et sans effet de rebond sur les parois de l'échantillonneur.

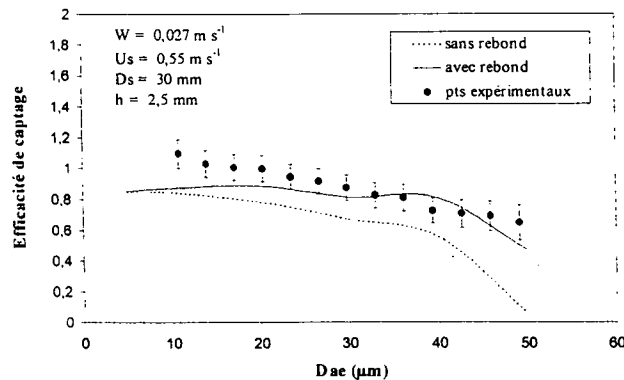


Figure 6 : Comparaison des résultats expérimentaux en air calme à ceux obtenus par calcul numérique avec et sans effets de rebond sur les parois. Configuration de l'échantillonneur : $h = 2,5 \text{ mm}$; $D_s = 30 \text{ mm}$; $U_s = 0,55 \text{ m s}^{-1}$.

Sur quelques faits remarquables dans l'histoire de la science des aérosols.

ON SOME PECULIARITIES IN THE HISTORY OF
AEROSOL SCIENCE

K.R.SPURNY

Aerosol Chemist, Eichenweg 6 , D-57392 Schmallenberg,
Germany

1. INTRODUCTION

The aerosols have been recognized to be a basic and applied science during the period after the World War II. Several pioneer scientists in the U.S., Europe, Japan, etc. had contributed to this successful development.

As a scientific discipline, aerosol science has its own history, which had been created and positively influenced by renowned physicists, chemists, meteorologists, etc., as well as by political and economical events and technological development. Presentations on conferences and publications in journals and books dealing with the history of aerosol science became common during the past two decades and have been found as very useful for supporting the interest of young scientists in this research field.

Nevertheless, the history of aerosol science is still far from to be completed and exactly evaluated. There do exist uncertainties in the time as well as in the content scales. They are needs for further search in the early publications.

J. Aitken made many observations in the atmosphere between 1880 and 1890 demonstrating the fundamental role of "dust" particles in the formation of cloud and fog. He is considered in the literature as "inventor" of the "condensation nucleus". But he himself recognized in his publications in 1880 and 1881 P.S. Coulier as being the first to show the important part played by nuclei in cloudy condensation of vapor, already in 1875.

This part of aerosol science history belong among the peculiar developments and we shall try to follow this event in more details.

2. CONDENSATION NUCLEI HISTORY

The existence of fine particles dispersed in the air was well observed by Tyndal, already at the end of the 1860s(1). He studied fine particles in the air by means of dark-field illumination. He produced clouds of small particles by irradiation of mixtures of air with various vapours and gases, as e.g. HCl, HBr, HJ, amylnitrite, etc. He could than observed and study the light scattering and light polarisation on such particulate clouds(2).

Nevertheless, he did not observe the ability of these fine particles to initiate water condensation. This ability was discovered only of about 5 to 10 years later by Coulier and Aitken.

2.1 Coulier and Aitken

P.J. Coulier in France and J. Aitken in England have done the first basic experiments and observations dealing with the role of fine particles in vapour condensation processes.

P.J. Coulier had done such experiments and observations more than five years before Aitken. His results published in 1875(3) had unfortunately borne no fruit by meteorologists and other scientists. J. Aitken has done very similar experiments and he published his results in 1880(4). He was and still often is considered in books as the "inventor" of condensation nuclei and of their role in vapour condensation.

Aitken was very surprised, when M.H.J.H. Groneman reviewed in a letter to the journal *Nature* (Vol. 23, p. 337) the publication and the results of P.J. Coulier. Aitken studied the Coulier's publication immediately and in 1881(5) he published his statement to this paper. In his statement, which will be mentioned later in more details, he concluded:

"There can however be no doubt, that Monsieur Coulier was the first to show the important part played by dust in the cloudy condensation of the vapour in air, and his first paper(3) clearly explains its action".

2.2 Coulier's Experiments

P.J. Coulier, professeur au Val-de-Grâce, a décrit ses expériences dans sa première publication en 1875(3) (Fig. 1). Son appareil

COULIER, P.J. J. de Pharmacie et de Chimie ,
Paris, Ser. 4 , Vol. 22, 165-173 (1875) .

Note sur une nouvelle propriété de l'air; par M. COULIER,
professeur au Val-de-Grâce.

On sait que lorsqu'une certaine quantité d'air saturé de vapeur d'eau est raréfiée brusquement, une partie de cette vapeur se précipite sous forme de brouillard, par suite de l'abaissement de température. —

Fig. 1 . La publication de Mousieur Coulier

(Fig.2) était composé d'un flacon(A) a trois tubulaires.La première(B) était munie d'un robinet.La deuxième(C)était terminée par une poire(D).La troisième tubulaire a reçu un tube à robinet, terminé par une partie évasée(E).Environ 50 g d'eau distillée était donné au fond du flacon.Pour faire l'expérience,les robinets sont fermés et au moyen de poire en caoutchouc,l'air dans le flacon peut être comprimé.Au moment de la décompression le flacon se remplit de brouillard.

Si l'on abandonne le flacon à lui-même pendant quelque temps,le phénomène ne se reproduit plus.Après que l'air du flacon a été remplacé par l'air extérieur,le brouillard se reproduit.

Si on place du coton tassé dans le tube E,on peut filtrer l'air qui s'introduit dans le flacon.Dans ces circonstances l'air introduit en flacon reste inactif.La filtration lui a enlevé la propriété de produire des nébulosités.Si l'on introduit dans le flacon une petite proportion de fumée de tabac,l'air du flacon se rend extraordinairement actif.

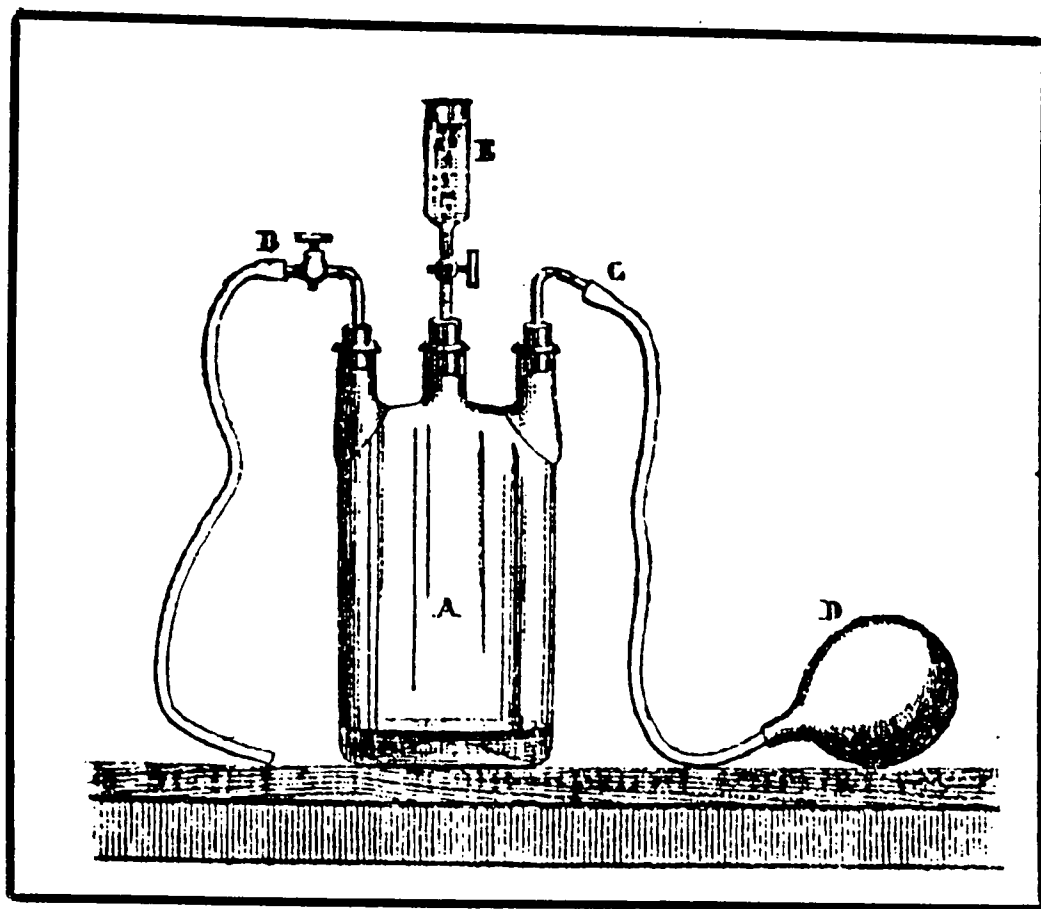


Fig. 2 . L'appareil de M.Coulier pour étudier la formation de brouillard de l'eau.

Autre expériences paraît démontrer que la flamme laisse toujours échapper de fines particules de carbone qui peuvent produire les brouillards.

Les nombreuses observations avec cet appareil dans une cour entourée de vastes jardins du Luxembourg ont montré que jamais

l'air extérieur n'était inactif, Monsieur Mascart, le collaborateur de M. Coulier, qui a bien voulu répéter ces expériences a reconnu, que de liquides autres que l'eau, tels que l'alcool, la benzine, etc., produisaient des effets semblables que l'eau. En résumé, le fait de la présence des corps solides tenues en suspension dans l'air paraît certain et nécessaire pour la production de brouillards.

2.3 Aitken's Experiments and Hypotheses

AS already mentioned, John Aitken has done his experiments and observations some years later. He presented his results and hypotheses in his lecture at a session of the Royal Society in London (Fig. 3) on Monday, 20th December 1880(4).

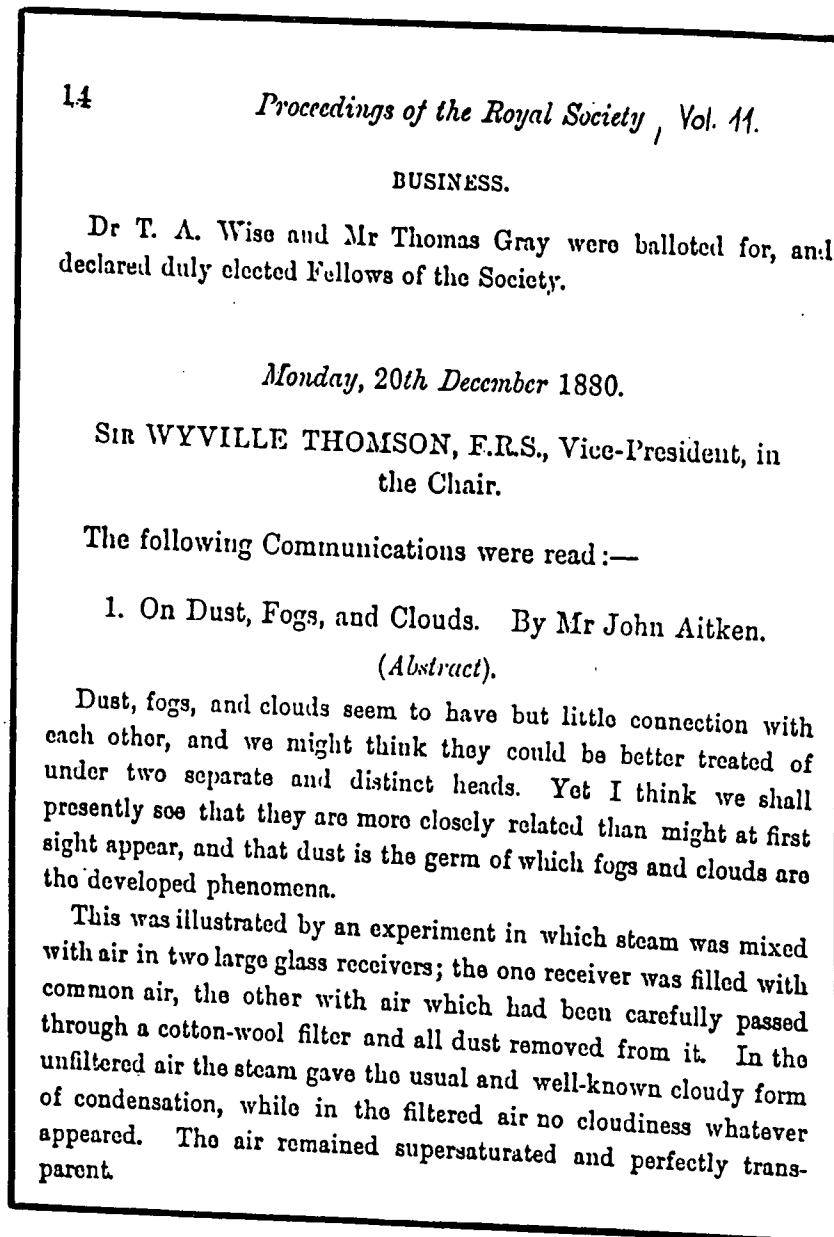


Fig. 3 . The lecture of John Aitken in 1880.

John Aitken's experiments were very similar to those of P.J. Coulier. After finishing the first group of his experiments, he concluded:

1. Water vapour condenses in the atmosphere on some solid nucleus.
2. Dust particles in the air form the nuclei.
3. If there was no dust, there would be no fogs, no clouds, no mists and probably no rain.
4. Our breath when becomes visible on a cold morning, show the impure and dusty conditions in our atmosphere.

Some important sources of such "nuclei" are e.g. sprays from the ocean, heating and combustion, etc. Aitken has also shown that by simply heating of surfaces as glass, iron, brass, condensation nuclei are produced. Very active nuclei were produced by heating common salt. He found, that not only water, but also other vapours of several liquids - sulphuric acid, alcohol, benzole, paraffin, etc. - condense on fine particles. Sulphur when burned has been shown to be an intensely active fog-producer. More than 200 tons of sulphur burned with the coal every winter: day in London in the 1880s. This reality accounted for the density of the London fog.

3. AITKEN'S SURPRISE AND COULIER'S DOUBTS

John Aitken, as mentioned, was surprised by studying the first (3) and mainly the second (6) Coulier's papers. The experimental results as well as the M. Coulier's explanations agreed perfectly with the results obtained by J. Aitken. Unfortunately, in his second paper, M. Coulier referred about several additional experiments, whose results, in his opinion, did not confirm his "condensation nuclei hypothesis".

He heated, e.g. platinum wire in the purified air. This air was then active in water vapour condensation. The same happened, when hydrogen was burned. Pure air was passed through moderately heated glass tube and was made active. Coulier was disappointed by these results and concluded, that the "nuclei" hypothesis cannot fully explain the results of his additional experiments (6). The explanation of vapour condensation phenomena remain therefore still to be found.

Aitken had repeated several of the later experiments of M. Coulier and found explanations which were conformable with the "condensation nuclei hypothesis". He corrected the doubts of M. Coulier.

Wires, tubes and other solid surfaces, which were heated, were not clean. The impurities generated by heating fine particles and therefore the "heated air" become active.

Aitken speculated that the second paper (6) could be the reason why M. Coulier's important results did not reach a broad attention and resonance (Fig. 4).

4. CONCLUSIONS

There is of interest that both, P.J. Coulier and J. Aitken, have done almost the same experiments and had very similar explanation for their results. Coulier, unfortunately, had difficulties to explain the results of his later experiments, in which inactive air was rendered active by heating. He thought, these results did

not support the hypothesis of "condensation nuclei". Aitken repeated these experiments and was able to show, that also these later experiments had confirmed instead of weakened this hypothesis.

Feb. 24, 1881

NATURE

385

It now appears to me that this second paper explains why the first results of M. Coulier, though repeated and confirmed by M. Mascart, have not received that general acceptance we should have expected. In his second paper he describes a number of results which he did not succeed in fitting into his hypothesis. They even seemed to him to shake his first conclusions, and the uncertain sound given by his second paper seems to have blighted any fruit his first paper was likely to have produced. There can however be no doubt that M. Coulier was the first to show the important part played by dust in the cloudy condensation of the vapour in air, and his first paper clearly explains its action. It seems highly probable that if it had not been followed by his second paper, or if he had succeeded in getting the key to the explanation of his experiments, and his conclusions had confirmed instead of weakening the teaching of his first paper, his result would long ere now have been applied to explain the different causes and the different forms of cloudy condensation in our atmosphere, as well as other physical phenomena.

Darroch, Falkirk, February 15

JOHN AITKEN

Fig.4. John Aitken's conclusions(5)

REFERENCES

1. Tyndall, J. On a new series of chemical reactions produced by light. Proc. Roy. Soc. 17, 93-103 (1869).
2. Tyndall, J. On the blue color of sky, the polarisation of skylight and on the polarisation of light by cloudy matter generally. Proc. Roy. Soc. 17, 223-233 (1869).
3. Coulier, P. J. Note sur une nouvelle propriété de l'air. J. de Pharmacie et de Chimie, Paris, Ser. 4, 22, 165-173 (1875).
4. Aitken, J. On Dusts, Fogs, and Clouds. Proc. Roy. Soc. 11, 14-18 (1880).
5. Aitken, J. Dust, Fogs, and Clouds. Nature Febr. 14, p. 384-385 (1881).
6. Coulier, P. J. Note sur une nouvelle propriété de l'air. J. de Pharmacie et de Chimie, Paris, Ser. 4, 22, 254-255 (1875)

M. B. ATTOUI

Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transferts des Contaminations, Université Paris XII 94010 Créteil .

Résumé: Les nanoparticules dont le diamètre est inférieur à 100 nm ont tellement de propriétés différentes (et dans le bon sens, c'est à dire meilleures et nouvelles propriétés) que l'on parle de nouvelles frontières inter disciplinaires de la physique. Le point de départ a été sans doute l'invention du microscope à effet tunnel et plus encore de l'AFM, le microscope à force atomique, qui permet de contrôler en continu le dépôt des nanoparticules sur un substrat. L'intérêt suscité par les nanoparticules est tel que le Journal of Aerosol Science leur a consacré un numéro spécial en 1998. Lors de la conférence mondiale sur les aérosols qui s'était tenue en septembre 1998 à Edimbourg la NSF (National Science Foundation) et l'ESF (European Science Foundation) ont organisé le premier symposium sur les matériaux nanostructurés à l'aide des aérosols qui a totalisé cinquante deux communications. Dans notre revue, nous présentons de manière très succincte les nouveaux matériaux utilisés en électronique et leurs liens avec les aérosols.

Introduction :

Les nanoparticules ainsi que leurs implications dans les nanotechnologies ont de plus en plus attiré l'attention de chercheurs dans divers domaines durant les dix dernières années. Le terme nanoparticule qui désignait les aérosols de diamètre inférieur à 100 nm (El-Shall et Edelstein 1996) est de plus en plus réservé aux particules inférieures à 50 nm. Le terme de cluster est lui réservé aux agglomérats de quelques atomes (10^4 molécules ou atomes) correspondant à quelques nanomètres. Les nanomatériaux ou matériaux nano structurés sont à une échelle caractéristique inférieure à 100 nm y incluant les matériaux en "fibres" uni axiales ou multicouches. Les matériaux nanophases sont quant à eux à structure tridimensionnelle toujours dans le domaine inférieur à 100 nm. Les matériaux nanophases sont obtenus généralement par compaction de poudre de nanoparticules. Ils sont caractérisés par un grand nombre de "grains" donnant ainsi un très grand nombre d'interfaces (entre les grains) ou surfaces d'échange où l'arrangement atomique local est différent de l'arrangement atomique du matériau initial (Weissmüller, 1996). Le champ d'application des nanoparticules ou des nanomatériaux est de plus en plus vaste. Cela est dû à leurs propriétés particulières (électroniques, optiques, électriques, magnétiques, chimiques et mécaniques) par rapport au matériau à l'échelle macroscopique, que leur confère la faible valeur de leurs diamètres. Possédant des dimensions entre la structure microscopique et macroscopique, les nanoparticules ont des propriétés hybrides qui ne sont pas encore totalement comprises et cernées aujourd'hui, donnant ainsi de nouveaux challenges pour les travaux théoriques. Parmi les propriétés particulières des nanoparticules on peut citer les bas points de fusion (Golstein et al. 1992), l'augmentation des pressions de transition entre phase solide-solide (Tolbert et Alivisatos, 1995), une température effective de Debye plus basse (Fujita et al. 1976) une diminution de la température de transition de phase ferroélectrique (Ishikawa et al. 1988) une augmentation du coefficient de self diffusion (Horvath et al. 1997), une évolution des propriétés thermophysiques (Quin et al. 1996), des activités catalytiques (Sarkas et al. 1993). On fabrique d'autre part grâce aux nanoparticules des matériaux nanocomposites qui consistent en une dispersion de nanoparticules dans une matrice continue créant ainsi une composition hétérogène de structure fine. Les matériaux nanocomposites que l'on trouve généralement dans les céramiques ou matrices polymériques ne sont pas confinés à ces seules couches minces. Ces matériaux présentent des propriétés intéressantes comme par exemple d'être non miscibles (Linderoth et Moerup, 1990) et une plus grande température critique de transition supraconductrice (Goswami et al. 1993). De plus ces nanoparticules possèdent de réels potentiels pour des applications technologiques telles que l'industrie de la pigmentation et de la catalyse. Brus propose en 1983 un effet confinement quantique pour produire des nanoparticules semi-conductrices. Birringer et al. (1984) développent une méthode de synthèse par agglomération de nanoparticules pour produire des matériaux nanophasiques avec un très grand rapport volume-périmètre des particules. Ces matériaux dans lesquels sont fabriquées les céramiques entre autres, offrent par exemple une résistance mécanique inégalée. Enfin, en 1992, Carey et al. découvrent la 'géante' magnétorésistance dans les matériaux nanocomposites. Dans notre revue, nous nous limiterons aux systèmes rencontrés en science des aérosols, c'est à dire les systèmes à pression atmosphérique ou basse pression (limitée à 1 mbar). Nous ignorerons donc le domaine du vide et de l'ultravide. Un important champ de recherche s'occupe des process assistés par les aérosols, pour la synthèse de film (monocouche) où des gouttelettes liquides sont utilisées comme sources et comme véhicules vers un substrat. Parmi ces process on rencontre le dépôt par vapeur chimique assisté par les aérosols (Aerosol-assisted chemical vapor deposition AACVD), XU et al. (1994), l'aérosol metal-organic CVD (A-MOCVD Fröhlich et al. 1995), les process par pyrosol (Blandenet et al. 1991) et l'aérosol CVD (Tourtin et al. 1995), la production de films épitaxiaux par évaporation à proximité du substrat de gouttelettes microniques (Jergel et al. 1992). Citons enfin les nanoparticules dans les colloïdes pour la stabilisation ou pour prévenir la coagulation (Peled 1997). Les process par les aérosols permettent la fabrication de complexes de chimie structurale qui donnent des matériaux multicomposants comme par exemple les supraconducteurs hautes températures (Kodas et al. 1989). Dans cette revue nous regarderons en première partie les domaines interdisciplinaires qui sont importants pour la réalisation de process, techniques, effets et matériaux qui sont incorporés dans la synthèse de nanomatériaux avec des

méthodes "aérosol" Nous donnerons quelques applications basées sur les propriétés spéciales des nanoparticules. Les méthodes courantes de synthèse de nanoparticules seront décrites en deuxième partie.

Application des nanoparticules en micro électronique et optoélectronique des structures 'zéro-dimension'

Quand des électrons sont confinés dans un espace réduit comme une nanoparticule par exemple, ils forment un système appelé 'point quantique' ou structure zéro dimension. Ces électrons sont comme des particules dans une boîte et leur énergie résultante est déterminée par des effets de confinement quantique. Ces nouveaux niveaux d'énergie font apparaître une modification radicale des propriétés optoélectroniques par rapport au matériau à l'état macroscopique (Bruit, 1983 ; Yoffe, 1993). Ces effets de confinement quantiques conduisent par exemple à de plus grands niveaux d'énergie de transition comparés aux matériaux macroscopiques et une plus courte longueur d'onde d'absorption optique, qui a pour conséquence un glissement spectral vers le bleu. Les points quantiques sont utilisés pour la production des LED (diodes émettrices de lumière) de différentes couleurs en utilisant différentes tailles des nanoparticules, technique beaucoup plus simple que les méthodes courantes de synthèse des semi-conducteurs (Service, 1996). Un autre avantage des structures 0-D est lié à la longue durée de vie des états excités des électrons dans ces structures qui a d'énormes applications en optique (Weisbuch et Vinter 1991). En effet les lasers utilisant cette technologie ont un gain plus élevé. Alvisatos (1996) a produit des LED avec un coefficient de conversion élevé (10%) en utilisant des points quantiques dans une matrice en polymère. Ces applications très 'attractives' demandent des prouesses technologiques remarquables. La préparation des nanoparticules semi-conductrices a besoin d'un très haut niveau de précision dans toutes les étapes de production (Salata et al. 1994). On demande à ces nanoparticules : Un contrôle précis de la taille des nanoparticules, une monodispersion de quelques pour-cent, une certaine passivité de la surface (la moins réactive possible avec son environnement), un contrôle aussi précis que possible de la forme de la particule. Les nanoparticules sont très réactives avec le milieu qui les entoure à cause de leur grande surface. Pour augmenter leur stabilité et ainsi empêcher que leurs propriétés changent avec le temps, on les 'noie' pour les protéger dans de la matière (verre, semi-conducteurs à large bande etc...) Ohtsuka 1992 ; Danek et al. 1994. Ces matériaux nanocomposites sont utilisés en optique et électro optique. Parmi ces applications on trouve les filtres à bande passante en optique où on utilise par exemple des particules de CdS_xSe_{1-x} noyées dans de la silice. Des particules de CdS, CdSe, GaAs et Si dispersées dans du verre ont des applications dans des interrupteurs optiques et fibres optiques notamment, en optique non linéaire (Yoffe, 1993). Dans les matériaux utilisés en optique non linéaire, on peut changer l'indice de réfraction par application d'un champ électrique (Brus, 1991) de façon à avoir une modulation électronique de la lumière. Une autre application potentielle des points quantiques, est la fabrication de mémoires optiques. On peut stocker beaucoup plus d'informations dans un arrangement 3-D de points quantiques que dans le même volume d'un dispositif usuel de planar semi-conducteur (Peyghambarian 1996, Kruis et al. 1998). Un autre exemple d'application des points quantiques est l'effet photo voltaïque. On peut augmenter la surface de contact entre les nanoparticules et les électrodes pour augmenter le signal électrique en déposant des nanoparticules sur des électrodes en matériaux très poreux (Weller 1993). En micro-électronique, on a besoin de réduire les temps de réponse en réduisant la taille des composants notamment. Pour le moment, un cycle de contact pour transistor donne naissance à un mouvement de plusieurs milliers d'électrons, ce qui demande des énergies de mise en œuvre et de contact 'considérables' et surtout produisant des échauffement excessifs qui sont très difficiles à dissiper dans le domaine des hautes fréquences en particulier. Cela appelle à réaliser des transistors uniélectron dans lesquels n'intervient qu'un seul électron. Ce composant peut être réalisé en utilisant des points quantiques dans lesquels un seul électron peut bloquer le flux des autres électrons par le phénomène appelé 'blocage coulombien'. Ces montages ont été obtenus par Bezryadin et al. (1997) en piégeant des nanoparticules de Pd entre deux nanoélectrodes de 4 nm.

Matériaux nano cristallins luminescents:

Les nanoparticules de structures poreuses sont trouvées ces dernières années un important domaine d'applications en électroluminescence dans les composants au silicium et autres. L'intérêt de l'électroluminescence du silicium est dû au désir d'intégrer des montages opto électroniques basés maintenant sur les éléments des bandes III-V des semi-conducteurs qui ne sont pas intégrables monolithiquement avec le dominant silicium en micro électronique. Le silicium émetteur de lumière va ouvrir le chemin aux fonctions électriques et optiques sur le même chip monolithique. Le silicium à l'état macroscopique n'est pas électroluminescent. Koch et Petrova-Koch (1996), El-Shall (1996), Lide et Chi-Mei (1995), Kanemitsu et al. (1992), Mimura et al. (1994) montrent avec diverses nanoparticules dans diverses conditions, l'électroluminescence dans le visible.

Capteurs pour gaz :

Un capteur de gaz consiste généralement en un matériau dont les propriétés physiques mesurables (électriques ou optiques notamment) changent en présence d'un gaz donné. Un capteur dont l'élément sensible est à l'état solide, convertit sélectivement des interactions chimiques microscopiques en un signal électrique mesurable.

Les capteurs possèdent donc des propriétés sélectives et réversibles et surtout compatibles avec le transducteur (Holtz et al. 1996). Volkening et al. (1995) utilisent des nanoparticules de palladium (10-15 nm) pour des capteurs d'hydrogène. En effet, les propriétés du couple Pd-H sont complètement connues et cernées en terme de réaction dissociative de l' H_2 sur la surface du palladium ainsi que les propriétés de diffusion de l'hydrogène dans le palladium. L'adsorption et la désorption de l'hydrogène sont complètement réversibles. Le temps de réponse de ces capteurs est beaucoup plus grand que les capteurs à palladium à particules microniques, ce qui s'expliquerait par les distances de diffusion plus faibles dans le cas des nanoparticules. Les oxydes semi-conducteurs SnO_2 , ZnO et FeO_3 sont traditionnellement utilisés de manière très répandue en technologie des capteurs de gaz (Göpel, 1996). Généralement, les capteurs sont obtenus sous forme de céramiques poreuses portées à hautes températures (300 à 700°C). Le comportement sensitif du capteur semble être gouverné par l'absorption de l'oxygène dans le rétrécissement entre les grains de la céramique. Un espace de charge positif appelé couche de déplétion, développe dans la couche d'oxyde un transfert d'électrons vers l'oxygène adsorbé, et la charge négative s'accumule sur la surface. Des gaz réducteurs peuvent enlever des ions O_2 de la surface, ce qui a pour conséquence d'augmenter la conductivité électrique (Moulson et Herbert, 1990). Des films poreux de 10 à 50 μm d'épaisseur composés de particules de 15 nm de SnO_2 montrent une très grande sensibilité aux gaz et une plus grande sélectivité des gaz par rapport à des capteurs qui consistent en des particules microniques (Ogawa et al. 1981b). A partir des mesures résultantes des mobilités, on a postulé que du fait des faibles dimensions des canaux de conduction des nanoparticules la couche de déplétion possède une plus grande influence sur la conductivité (Ogawa et al. 1982). Schmatz et al. (1994) ont essayé de corréliser la résistance électrique de SnO_2 avec la structure des 'frontières' entre les grains. Des poudres de clusters avec un diamètre de 1 μm contenant des cristaux de 9 nm ont été synthétisées à différentes températures. La résistance électrique de ces capteurs décroît avec la température de synthèse de la céramique. Cela pourrait s'expliquer par un changement de la composition chimique entre autres facteurs. Les effets combinés de la distribution en tailles des particules (ou grains), la nature des contacts entre particules, la composition chimique des surfaces sont si complexes que la production de capteurs avec des oxydes semi-conducteurs est pour le moment empirique sur le plan technologique. La taille des grains et l'homogénéité de la taille semble fondamentale dans la compréhension de ces phénomènes (Dieguez 1996). La sensibilité des capteurs peut être augmentée par dopage de métaux nobles par catalyse comme le platine, le rhodium ou palladium. Lebeau et al. (1993, 1994) ont étudié la sensibilité de nanocristaux de SnO_2 dopés avec des nanoparticules de Pt et Pd. Ces particules agissent probablement comme catalyseurs pour l'adsorption de molécules de CO et d'éthanol conduisant à de basses énergies d'activation des surfaces réactives. Dans les travaux de Gautheron et al. (1993), la sensibilité au CO a augmenté d'un facteur 30 en ajoutant des nanoparticules de Pd.

Résistances et varistances:

Les particules nanométriques trouvent de nouvelles applications dans la production des résistances et varistances. Des films granulaires qui consistent en de petites particules conductrices noyées dans une matrice isolante en céramique ou en verre présentent une grande variabilité de la conductivité électrique. Kundu et Chakravorty (1996) expliquent ce phénomène par la percolation ou des effets quantiques tels que l'effet tunnel pour un seul et unique électron. Un exemple de ces résistances sous forme de couche (film) dont la résistivité peut être contrôlée par variation de la taille des nanoparticules est le matériau nanocomposite particules de LaB_6 - verre (Ito et al. 1991). Les varistances sont des composants dont la résistance dépend de la tension appliquée, dont la caractéristique principale est une faible résistance électrique à haute tension. On les utilise comme protection contre les hautes tensions transitoires dans les circuits à faible énergie. Elles sont produites par synthèse de matériaux céramiques tels que ZnO ou SiC , avec addition de constituants mineurs. La résistance est contrôlée par le contact grain-surface ou par les frontières isolantes inter grains conducteurs. L'utilisation de nanoparticules avec leur volume élevé de frontières entre grains a été étudiée pour cerner leurs propriétés. Brankovic et al. (1994) se sont intéressés au ZnO additionné de Bi_2O_3 . Avec des particules de diamètres inférieurs à 100 nm, ils obtiennent des varistances à microstructures dont les caractéristiques électriques possèdent une remarquable non linéarité. Viswanath et al. (1995) ajoutent des particules de ZnO de diamètres compris entre 3 et 10 nm comme impuretés à des éléments de différents états de valence (CO, Sb, B, Bi, Sn et Cu) et voient apparaître de remarquables caractéristiques de non-linéarité. Ils obtiennent un facteur d'amélioration de l'ordre de 20.

Films conducteurs:

Les structures nanométriques sous forme de films poly cristallins ont trouvé un fort potentiel dans la production d'électrodes conductrices transparentes pour les photoconducteurs et les cellules solaires (photovoltaïques et batteries). Ils sont utilisés par ailleurs dans les écrans à cristaux liquides et toutes autres applications où de grandes surfaces sont nécessaires et l'utilisation de films épitaxiaux impossible ou pas faisable. De nos jours les films poly cristallins sont fabriqués à l'aide de techniques de pulvérisation qui ont l'avantage d'être peu chères et des taux de dépôt élevés (Service, 1995). Pehnt et al. (1995) par pulvérisation de colloïdes de 3 nm sur un

substrat chaud réalisent un film à surface très très lisse de CdTe avec une rugosité inférieure à 5 nm pour des cellules solaires. Ces films avec une large bande optique tels que SnO₂ et In₂O₃ qui sont transparents dans le visible sont utilisés dans divers domaines comme électrodes, revêtement antiréflexion dans les cellules solaires. Ils sont utilisés aussi pour la production d'électrodes transparentes dans les montages optoélectroniques comme les photodétecteurs et les couples images-charges. Un avantage obtenu avec les nanomatériaux est le contrôle des caractéristiques d'absorption par la taille des particules pour les effets de confinement quantiques. Zhao et Pan (1994) ont montré que le maximum d'absorption des rayonnements infrarouges par un film peut être changé en faisant varier la taille des particules.

Une autre application potentielle est la bi stabilité électrique d'une mince couche de nanoparticules d'argent prise en sandwich entre deux couches d'un polymère conducteur. Jusqu'à un certain seuil de tension, on n'observe aucune circulation de courant, tandis qu'au-dessus de ce seuil, la conductance augmente d'un facteur 10⁷ rendant le film conducteur suivant une loi linéaire tension courant. Un mécanisme de transfert de charges des particules métalliques vers les molécules organiques est semble-t-il à l'origine de cette propriété. Ces films peuvent être utilisés dans des applications d'interruption en électronique (Gao et al. 1995).

Matériaux capacitifs:

Les éléments diélectriques basés sur les structures nanométriques sont de plus en plus demandés à cause de la réduction des éléments capacitifs causée par la miniaturisation continue des mémoires DRAMs (dynamic random access memories) ou mémoire vive. Depuis que les matériaux à constante diélectrique élevée peuvent accumuler de plus en plus de charges dans les condensateurs, les matériaux à grandes permittivités diélectriques sont recherchés pour les DRAMs de dimensions réduites (Kuis et al. 1998). Une méthode pour augmenter la permittivité diélectrique est la dispersion de particules conductrices dans une matrice diélectrique. Mais le facteur de dissipation devient trop élevé dans ce cas. Kundu et Chakravorty (1995) ont montré qu'avec des particules de 2 à 8 nm d'Ag dans une matrice de PZT (Zirconate de Titane), on arrive à des permittivités élevées et de faibles facteurs de dissipation. La réduction de la taille des particules tend à améliorer les permittivités mais d'un autre côté, elle tend à augmenter le facteur de dissipation. Vezzoli et al. (1994) montrent avec la théorie de percolation des diélectriques qu'un optimum topologique pour les nanocomposites à hautes constantes diélectriques consiste en des particules métalliques ellipsoïdes avec un petit espace inter particules dans un isolant. On a ainsi obtenu une constante diélectrique de 5 000 en noyant des nanoparticules d'or allongées, de 80 nm de longueur et 30 de largeur, dans une matrice de SiO₂.

Supraconducteurs à hautes températures (SHT)

On suggère de plus en plus les nanoparticules comme une solution à l'apparition du flux d'établissement (flux pinning) de l'effet supraconducteur comme perfectionnement dans les montages à supraconducteurs à hautes températures. Le problème du flux pinning se produit quand un flux magnétique entrant dans le matériau supraconducteur, n'est pas déformé ou fixé par des défauts convenables. Dans ce cas le matériau perd ses propriétés supraconductrices. En général des particules non supraconductrices peuvent agir comme flux d'établissement et accroître ainsi la densité de courant critique. Chadda et al. (1991) ont montré que des particules 'précurseurs' de 25 à 50 nm de YBa₂Cu₃O_{7-x} et CuO sont nécessaires pour obtenir YBa₂Cu₄O₈ qui, sous traitement thermique développe YBa₂Cu₃O_{7-x} avec CuO comme flux d'établissement central. Takao et al. (1996) en additionnant des nanoparticules de BaZrO₃ à Yba₂Cu₃O₇ supraconducteur obtiennent un accroissement de plus d'un ordre de magnitude dans la densité de courant critique.

Matériaux thermo électriques:

Les nanoparticules sont utilisées pour la production de matériaux thermo électriques. Rappelons que l'effet thermoélectrique crée une différence de potentiel entre deux jonctions de deux conducteurs électriques de natures différentes, soumises à deux températures différentes. Cet effet est utilisé dans l'industrie des capteurs (hautes et basses températures) sous la dénomination de thermocouples. Kizaki et al (1993) ont produit des films minces de thermocouples avec des structures nanométriques d'alliages de Fe et Si. Des films homogènes de nanoparticules d'un mélange de Fe et SiO de diamètre autour de 10 nm montrent après traitement thermique un coefficient de Seebeck élevé (1400μVK⁻¹).

Propriétés optiques:

Les pigments inorganiques tels que TiO₂ sont utilisés pour absorber les radiations UV (Parker 1996). Rappelons que la lumière diffusée par une particule est fonction de la longueur d'onde de la lumière incidente et du diamètre de la en particulier. Nous pouvons donc de ce fait trouver un diamètre optimum pour atténuer les rayons UV sans trop atténuer la lumière visible. Ce diamètre se trouve être dans le domaine nanométrique. On trouve ainsi des nanoparticules dans les crèmes de protection des UV et films de protection contre la dégradation des couleurs dans diverses applications. Un autre domaine où les particules ont un succès est leur utilisation comme pigment de dispersion dans les polymères semi-conducteurs. Hyde et al. (1996) avaient pu

obtenir des lasers à l'aide de polymères semi-conducteurs, MEH-PPV, en incorporant des nanoparticules de TiO_2 dans un polymère. D'autre part, on utilise les nanomatériaux en électrochromisme. Rappelons que dans les matériaux électrochromiques les propriétés optiques peuvent être altérées de manière réversible, par application d'un champ électrique. Des vitres avec ces matériaux permettront de contrôler le flux d'énergie solaire entrant dans un immeuble. Ces matériaux permettent de fabriquer des miroirs à réflectance variable, des écrans faibles émetteurs de lumière (protection des yeux) et un haut contraste. Estrada et al. (1988) avaient montré que la transmittance solaire des films de NiO_xH_y avec des grains de 10 nm peut passer de 29 à 74 %. Chen et al. (1995) avaient montré que des films de particules de 5 à 10 nm de NiO ont des caractéristiques électrochromiques qui s'altèrent avec l'augmentation de la taille des particules.

Matériaux magnétiques:

Les nanoparticules magnétiques sont du point de vue taille proches du domaine du magnétisme individuel (discret) dans lequel tous les spins magnétiques sont alignés pour produire un moment magnétique dans une direction (Kruis et al. 1998). La taille d'une particule dans le domaine individuel de formation des éléments ferromagnétiques Fe, CO, et Ni est de typiquement de quelques dizaines de nanomètres. Pour des applications utilisant des matériaux d'enregistrement à hautes densités magnétiques, de grandes coercitivités (qui représentent la résistance à la démagnétisation) et magnétisation sont essentielles. Il a été montré que la valeur maximale de coercitivité est obtenue pour les matériaux à nanocristaux magnétiques, avec des cristaux dont la taille est proche du domaine du magnétisme individuel. Des poudres de Fe dont avec des cristaux de 13 nm montrent des coercitivités de 900 Oe alors que le fer ne présente que 10 Oe (Gangopadhay et al. 1992). Xiao et Chien (1987) rapportent pour des matériaux magnétiques nanocomposites des valeurs de coercitivité de 2500 Oe. Parallèlement à ces matériaux (hard) à fortes valeurs coercitivités, on trouve des matériaux (soft) à faibles valeurs de coercitivités. Parmi eux des exemples typiques sont les alliages de FeSi, FeNi (ferrites et grenat). On les rencontre dans les transformateurs électriques, les têtes d'enregistrements vidéo, audio et informatiques, ainsi que le domaine des micro-ondes. En plus de cette propriété concernant la faible valeur de coercitivité, ces matériaux présentent de faibles pertes en courant et de très bonnes propriétés en hyperfréquences. (Yoshizawa et al. 1988 ; Yamauchi et Yoshizawa 1995). Les matériaux nanocomposites possèdent aussi un grand potentiel dans la technologie de la réfrigération magnétique (Zachariah et al. 1995) basée sur l'effet magnétothermique. Les matériaux magnétiques usuels montrent en général une magnétisation décroissante quand la température augmente ce qui limite ainsi à un demi cycle de réfrigération. Les nanoparticules super paramagnétiques noyées dans un matériau 'hôte' peuvent repousser ces limites en combinant une magnétisation élevée avec un effet magnétothermique. Zachariah et al. (1995) avaient trouvé un comportement super paramagnétique de particules de 5 à 10 nm de Fe_2O_3 noyées dans des particules de tailles beaucoup plus grandes de SiO_2 . Une importante propriété des nanocomposites trouvée ces dernières années, est l'effet magnéto résistance géante (Effet GMR). C'est le phénomène de grande décroissance de la résistivité de certains matériaux quand ils sont exposés à un champ magnétique. La variation résistivité – température peut changer jusqu'à 80 % alors qu'elle n'est que de quelques pour-cent dans les métaux usuels. Cet effet avait été observé dans des matériaux multicouches magnétiques, ensuite dans des systèmes de particules Co-Cu, où des cristaux ferromagnétiques de CO sont dispersés dans une matrice non magnétique de Cu. Le champ magnétique aligne le domaine ferromagnétique, réduit la diffusion des électrons, ce qui a pour effet de réduire la résistivité électrique. L'effet GMR est observé dans les métaux non miscibles comme CO-Cu ; Fe-Ag ; Fe-Cu ; Fe-Au ; et CO-Ag. Plus le diamètre des particules est petit, plus l'effet GMR est grand. Il est maximum au seuil de percolation (Wang et Xiao 1994).

Liens avec la science des aérosols

Dans la partie qui suit, nous rappelons de manière excessivement succincte le lien entre ce que nous venons de voir et la science des aérosols. Ce lien s'applique dans trois étapes différentes du processus de fabrication des nanoparticules : la synthèse, le contrôle de la taille et le dépôt et enfin la protection des nanoparticules car comme nous l'avons vu, elles sont très réactives avec le milieu qui les entoure.

Synthèse des nanoparticules :

La plupart des méthodes utilisées pour produire des nanoparticules reposent sur la nucléation homogène en phase gazeuse ou la condensation hétérogène.

Nucléation homogène:

On rencontre les réacteurs à four (autour de 1700 °C), les réacteurs à laser, vaporisation de solide par un rayon laser, réacteur à flamme, réacteur à plasma, arc électrique et explosion de fil, crépitements. Attoui (1998)

Condensation hétérogène et autres :

Ablation de solide par laser pulsé Boulaud (1993), évaporation de gouttelettes microniques dans lesquelles les particules étaient préalablement dissoutes,...

Non agglomération des nanoparticules: pour empêcher les nanoparticules de s'agglomérer et ainsi de grossir, on utilise le refroidissement brutal, la dilution par apport de gaz froid et filtré, l'expansion à travers une tuyère. Protection des nanoparticules : à cause de leur réactivité avec le milieu environnant (oxydation entre autre) les nanoparticules doivent être protégées. On rencontre les nanoparticules noyées dans des polymères ou verre, on les entoure de gaz inertes, on les encapsule dans des matériaux par exemple NaCl qui sera ensuite retiré par lavage ou sublimation.

Séparation des particules de différentes tailles en phase gazeuse :

Pour la séparation des particules, la science des aérosols dispose de dispositifs qui reposent principalement sur les propriétés électriques des aérosols depuis quelques décennies déjà. Pour les nanoparticules, on citera les nanoDMA (Chen et al. 1998) et le SMEC (Mesbah 1994, Lebronec et al. 1998, Levronnes 1998).

Dépôt des nanoparticules: la science des aérosols possède dans ce domaine aussi quelques atouts et quelques longueurs d'avance. On citera le Précipitateur électrostatique (Dixkens et Fissan 1997 ; Prost et al. 1998).

Conclusion :

Comme nous venons de le voir même de manière succincte, nous avons un croisement de plusieurs disciplines de la physique (on parle de plus en plus de nouvelle frontière), avec entre autre l'électronique et la physique du solide. On assiste à l'intérêt croissant pour les nanoparticules et leurs applications. Du point de vue théorique, il y a un énorme travail de façon à expliquer ces propriétés et phénomènes nouveaux. Pour la science des aérosols, il y a encore d'énormes potentiels pour les technologies du futur.

Références :

- Attoui, M.B., Renoux, A., Boulaud, D. (1998) : 'Generation, detection and granulometry of nanoparticles in the air'. IDOJARAS Vol. 102 N°1. p 1-18
- Alivisatos, A. P. (1996) Semiconductor clusters, nanocrystals, and quantum dots. *Science* 271, 933-937.
- Bezryadin, A., Dekker, C. and Schmid, G. (1997) Electrostatic trapping of single conducting nanoparticles between nanoelectrodes. *Appl. Phys. Lett.* 71, 1273-1275.
- Birringer, R., Gleiter, H., Klein, H. P. and Marquardt, P. (1984) Nanocrystalline materials, an approach to a novel solid structure With gas like disorder. *Phys. Lett. A* 102, 365.
- Blandenet, G., Court, M. and Lagarde, Y. (1981) Thin layers deposited by the pyrosol process. *Thin Solid Films* 77, 81-90.
- Boulaud, D. (1993) : 'Aerosol production by laser ablation'. In Proceedings of the international workshop on the synthesis and measurement of ultrafine particles. Delft May 28-29 1993. Ed. Marijnissen J.C.M., Pratsnis S. Delft University Press.
- Brankovic, Z., Milosevic, O., Uskokovic, D., Poleti, D. and Karanovic, L. (1994) Nanostructured constituents of ZnO-based varistors prepared by mechanical attrition. *Nanostruct. Materials* 4, 149-157.
- Brus, L. E. (1983) A simple model for the ionization potential, electron affinity, and aqueous redox potentials of small semiconductor crystallites. *J. Chem. Phys.* 79, 5566-5571.
- Brus, L. (1991) Quantum crystallites and nonlinear optics. *Appl. Phys. A* 53, 465-474.
- Brus, L. E., Szajowski, P. F., Wilson, W. L., Harris, T. D., Schuppler, S. and Chitrin, P. H. Electronic spectroscopy of Si nanocrystals: relationship to bulk c-Si and porous Si. *J. Am. Ceram. Soc.* 117, 2915-2922.
- Carey, M. J., Young, A. P., Starr, A., Rao, D. and Berkowitz, A. E. (1992) Giant magnetoresistance in heterogeneous AgCo alloy films. *Appl. Phys. Lett.* 61, 2935-2937.
- Chadda, S., Ward, T. L., Carim, A., Kodas, T. T., Ott, K. and Kroeger, D. (1991) Synthesis of $YBa_2Cu_3O_{7-y}$ and $YBa_2Cu_4O_8$ by aerosol decomposition. *J. Aerosol Sci.* 22, 601-616.
- Chen, X., Hu, X. and Feng, J. (1995) Nanostructured nickel oxide films and their electrochromic properties. *Nanostruct. Materials* 6, 309-312.
- Danek, M., Jensen, K. F., Murray, C. B. and Bawendi, M. G. (1994) Preparation of II-VI quantum dot composites by electrospray organometallic chemical vapor deposition. *J. Crystal Growth* 145, 714-720.
- Deppert, K., Magnusson, M., H., Carlsson, S., B., (1998) : 'Nanometer aerosols for electronic devices'. Abstracts of first joint ESF-NSF symposium on Aerosols for nanostructured materials and devices. Edimburg september 12,
- Dieguez A., Romano-Rodriguez, A., Morante J. R., Weimar, U., Schweizer-Berberich, M. And Göpel, W. (1996) Morphological analysis of nanocrystalline SnO_2 for gas sensor applications. *Sensors and Actuators B* 31, 1-8.
- Dixkens, J. and Fissan, H. (1997) : Design of sampling system for off-line particle analysis. In Fine Solid Particle (ed. J. Schwedes, S. Bernotat), Shaker Verlag, Aachen, Germany.
- E1-Shall, M. E. and Edelstein A. S. (1996) Formation of clusters and nanoparticles from a supersaturated vapor and selected properties. In *Nanomaterials: Synthesis, Properties and Applications* (Edited by Edelstein A. S. and Cammarata, R. C.), pp. 13-54. Institute of Physics Publishing, Bristol, U.K.
- Estrada, W., Andersson, A. M. and Granqvist, C. G. (1988) Electrochromic nickel-oxide- based coatings made by reactive dc magnetron sputtering: preparation and optical properties. *J. Appl. Phys.* 64, 3678-3683.

- Fröhlich, K., Machajdik, D., Rosova, A. Vavra, I., Weiss, F., Bochu, B. and Senateur, J. P (1995) Growth of SrTiO₃ thin epitaxial films by aerosol MOCVD. *Thin Solid Films* 260, 187-191.
- Fujita, T., Oshima, K. and Kuroishi, T. (1976) Temperature dependence of electrical conductivity in films of fine particles. *J. Phys. Soc. Japan* 40, 90-92.
- Gangopadhyay, S., Hadjipanayis, G. C., Dale B., Sorensen, C. M., Klabunde, K. J., Papaefthymiou, V. and Kostikas A. (1992) Magnetic properties of ultrafine iron particles. *Phys. Rev. B* 45, 9778-9787.
- Gao, H. J., Xue, Z. Q., Wu Q. D. and Pang S. J. (1995) Structure and electrical properties of Ag-ultrafine-particle-polymer thin films. *J. Vac. Sci. Technol. B* 13, 1242-1246.
- Gautheron, B., Labeau, M., Delabouglise, G. and Schmatz, U. (1993) Undoped and Pd-doped SnO₂ thin films for gas sensors *Sensors and Actuators B* 15-16, 357-362.
- Goldstein, A. N., Echer, C. M. and Alivisatos, A. P. (1992) Melting in semiconductor nanocrystals. *Science* 256, 1425-1427.
- Göpel, W. (1996) Ultimate limits in the miniaturization of chemical sensors. *Sensors and Actuators A* 56, 83-102.
- Goswami, R., Banerjee, S., Chattopadhyay, K. and Raychaudhuri, A. K. (1993) Superconductivity in rapidly quenched metallic systems with nanoscale structure *J. Appl. Phys.* 73, 2934-2940.
- Hide, F., Schwartz, B. J., Diaz-Garcia, M. A. and Heeger, A. J. (1996) Laser emission from solutions and films containing semiconducting polymer and titanium dioxide nanocrystals. *Chem. Phys. Lett.* 256, 424-430.
- Holtz, R. L., Provenzano, V. and Imam, M. A. (1996) Overview of nanophase metals and alloys for gas sensors, getters, and hydrogen storage. *Nanostruct. Materials* 7, 259-264.
- Horvath, J., Birringer, R. and Gleiter, H. (1987) Diffusion in nanocrystalline material. *Sol. State Comm.* 62 319-322.
- Hu, W.S., Liu, Z.G. Zheng, J.G., Hu, X.B., Guo, X.L. and Göpel, W. (1997) Preparation of nanocrystalline SnO₂ thin films used in chemisorption sensors by pulsed laser reactive ablation. *J. Mater. Sci. Mater. Elec.* 8, 155-158.
- Ishikawa, K., Yoshikawa, K. and Okada N. (1988) Size effect on the ferroelectric phase transition PbTiO₃ ultrafine particles. *Phys. Rev. B* 37, 5852-5855.
- Ito, O., Asai, T. Ogawa, T., Hasegawa, M. Ikegami A., Endoh, Y. Araya T., Atoh, K. And Kobayashi, T. (1991) Effect of conduction particle size on LaBb thick film resistor. *Thin Solid Films* 198, 17-27.
- Iwama, S., Hayakawa, K. and Arizumi, T. (1982) Ultrafine powders of TiN and AlN produced by a reactive gas evaporation technique with electron beam heating. *J. Crystall Growth* 56, 265-269.
- Jergel, M. Hanic, F., Strbik, V., Liday J. Plesch, G. Melisek, T. and Kubranova, M. (1992) Thin BSCCO films prepared by deposition from aerosol. *Supercond. Sci. Technol.* 5 663-670.
- Kanemitsu, Y., Uto, H., Matsumoto, Y. and Maeda, Y. (1992) On the origin of visible photoluminescence in nanometer-size Ge crystallites. *Appl. Phys. Lett.* 61, 2187-2189.
- Kizaki, Y. Osada H. and Aoki, H. (1993) Ultrafine particle beam deposition III: Applications to thermoelectric materials. *Jpn. J. Appl. Phys.* 32, 5778-5790.
- Koch, F. and Petrova-Koch, V. (1996) Light from Si-nanoparticle systems-a comprehensive view. *J. of Non-Cryst. Solids* 198-200, 840-846.
- Kruis, F. E., A. and Fissan, H., Peled, A. (1998) Synthesis of Nanoparticles in Gas Phase for electronic, optical and magnetic application- review. *J. Aerosol Sci.* 29, N° 5/6 511-535
- Kruis, F. E., Goossens, A. and Fissan, H. (1996) Synthesis of Semiconducting Nanoparticles. *J. Aerosol Sci.* 27, S1, 165-166.
- Kruis, F., E. (1998) Gas phase synthesis and handling of nanoparticles. Abstracts of first joint ESF-NSF symposium on Aerosols for nanostructured materials and devices. Edimburg september 12, Scotland.
- Kundu, T. K. and Chakravorty, D. (1995) Nanocomposite films of lead zirconate titanate and metallic nickel by sol-gel route. *Appl. Phys. Lett.* 66, 3576-3578.
- Kundu, T. K. and Chakravorty, D. (1996) Electrical properties of sol-gel derived films containing composites of glass-ceramics and nanocrystalline silver. *J. Mater. Res.* 11, 200-203.
- Labeau, M., Gautheron, B., Cellier, F., Vallet-Regi, M., Garcia, E. and Gonzalez Calbet, J.M. (1993) Pt nanoparticles dispersed on SnO₂ thin films a microstructural study. *J. Sol State Chem.* 102, 434-439.
- Labeau, M., Gas'kov, A. M., Gautheron, B. and Senateur, J. P. (1994) Synthesis of Pd-doped SnO₂ films on silicon and interaction with, ethanol, and CO. *Thin Solid Films* 248, 6-11.
- Lebronec, E., Renoux, A., Boulaud, D. Pourprix, M. (1998) Effect of gravity in differential mobility analysers. A new method to determine the density and mass of aerosol particles. *J. Aerosol Sci.* Vol. 30 N°1 P. 89-103
- Lebronec, E. (1998) Thèse université Paris 12.
- Lide, Z. and Chi-Mei, M. (1995) Luminescence in nanostructured materials. *Nanostruct. Materials* 6, 831-834.
- Linderoth, S. and Moerup, S. (1990) Ultrasmall iron particles prepared by use of sodium amalgam. *J. Appl. Phys.* 67, 4496-4498.
- Mesbah, B. (1994) Thèse de l'Université Paris 12.
- Mimura, H., Matsumoto, T. and Kanemitsu, Y. (1994) Blue electroluminescence from porous silicon carbide. *Appl. Phys. Lett.* 65, 3350-3352.
- Moulson, A.J. and Herbert, J.M. (1990) *Electroceramics-Materials, Properties, Applications*. Chapman and Hall, London, UK.
- Ogawa, H., Abe, A., Nishikawa, M. and Hayakawa, S. (1981b) Electrical properties of tin oxide ultrafine particle films. *J. Electrochem. Soc.* 128, 2020-2025.

- Ogawa, H., Nishikawa, M. and Abe, A. (1982) Hall measurement studies and an electrical conduction model of tin oxide ultrafine particle films. *J. Appl. Phys.* 53, 4448-4455.
- Ohtsuka, S., Koyama, T., Tsunetomo, K., Nagata, H. and Tanaka, S. (1992) Nonlinear optical properties of CdTe microcrystallites doped glasses fabricated by laser evaporation method *Appl. Phys. Lett.* 61, 2953-2954.
- Parker, J.C. (1996) Commercialization opportunities for nanophase ceramics: a small-company perspective. In: *Nanomaterials: Synthesis, Properties and Applications* (Edited by Edelstein A. S. And Cammarata, R. C.), pp. 573-581. Institute of Physics Publishing, Bristol, U.K.
- Pehnt, M., Schulz, D. L., Curtis, C. J., Jones, K. M. and Ginley, D. S. (1995) Nanoparticle precursor route to low-temperature spray deposition of CdTe thin films. *Appl. Phys. Lett.* 67, 2176-2178.
- Peled, A. (1997) Review: state of the art in liquid phase photodeposition processes and applications (LPPD). *Lasers Engng* 6, 41-72.
- Peyghambarian, N., Hanamura, E., Koch, S. W., Masumoto, Y. and Wright, E. M. (1996) Optical characterization and applications of semiconductor quantum dots. In: *Nanomaterials: Synthesis, Properties and Applications* (Edited Edelstein, A. S. and Cammarata, R. C.), pp. 395-436. Institute of Physics Publishing, Bristol, U.K.
- Prost, W., Kruis, F. E., Otten, F., Nielsch, K., Rellinghaus, B., Auer, U., Peled, A., Wassermann, E. F., Fissan, H. and Tegude, F. J. (1997) Monodisperse aerosol particle deposition: Prospects for nanoelectronics, presented at Micro- and Nanoelectronics Engineering (MNE) Conf. 1997, *J. Microelect. Engng.*
- Qin, X. Y., Wu, B. M., Du, Y. L., Zhang, L. D. and Tang, H. X. (1996) An experimental study of thermal diffusivity of nanocrystalline Ag. *Nanostruct. Materials* 7, 383-391.
- Salata, O.V., Dobson, P.J. and Hutchison, J.L. (1994 b) Fabrication of Cds nanoparticles embedded in a polymer film by gas-aerosol reactive electrostatic deposition technique. *Thin Solid Films* 251, 1-3.
- Sarkas, H. W., Arnold, S. T., Hendricks, J. H., Kidder, L. H., Jones, C. A. and Bowen, K. H. An investigation of catalytic activity in mixed metal oxide nanophase materials. *Z Phys. D* 26, 46-50.
- Service, R. F. (1996) Small clusters hit the big time. *Science* 271, 920-922.
- Schmatz, U., Delabouglise, G., Labeau, M. and Garden, J. (1994) Electrical and microstructural studies of SnO₂ ceramics obtained by tin sulfate pyrolysis. *J. Electrochem. Soc.* 141, 3254-3258.
- Takao, Y., Awano, M., Kuwahara, Y. and Murase, Y. (1996) Preparation of oxide superconductive composite by an electrostatic mixing process. *Sensors and Actuators B* 31, 131-133.
- Tolbert, S. H. and Alivisatos, A. P. (1995) High-pressure structural transformations in semiconductor nanocrystals. *Ann. Rev. Phys. Chem.* 46, 595-625.
- Tourtin, F., Daviero, S., Ibanez, A., Haidoux, A., Avinens, C. and Philippot, E. (1995) Low temperature deposition of gallium phosphate amorphous dielectric thin films by aerosol CVD. *J. of Non-Crist. Solids* 187, 435-442.
- Vezzoli, G. C., Chen, M. F. and Caslavsky, J. (1994) New high dielectric constant materials: micro/nanocomposites of suspended Au clusters in SiO₂ / SiO₂-Al₂O₃-Li₂O gels and relevant theory for high capacitance applications. *Nanostruct. Materials* 4, 985-1009.
- Viswanath, R. N., Ramasamy, S., Ramamoorthy, R., Jayavel, P. and Nagarajan, T. (1995) Preparation and characterization of nanocrystalline ZnO based materials for varistor applications. *Nanostruct. Materials* 6, 993-996.
- Volkening, F. A., Naidoo, M. N., Candela, G. A., Holtz, R. L. and Provenzano, V. (1995) Characterization of nanocrystalline palladium for solid state gas sensor applications. *Nanostruct. Materials* 5, 373-382.
- Wang, J. and Xiao, G. (1994) Transition-metal granular solids: Microstructure, magnetic properties, and giant magnetoresistance. *Phys. Rev. B* 49, 3982-3996.
- Weisbuch, C. and Vinter, B. (1991) *Quantum Semiconductor Structures: Fundamentals and Applications*. Academic Press, San Diego, U.S.A.
- Weissmüller, J. (1996) Characterization by scattering techniques and EXAFS. In: *Nanomaterials: Synthesis, Properties and Applications* (Edited by Edelstein, A. S. And Cammarata, R. C.), pp. 219-276. Institute of Physics Publishing, Bristol, U.K.
- Weller, H. (1993) Colloidal semiconducting Q-particles: chemistry in the transition region between solid state and molecules. *Ngew. Chem. Int. Ed. Engl.* 32, 41-53.
- Xiao, G. and Chien, C. L. (1987) Giant magnetic coercivity and percolation effects in granular Fe-(SiO₂) solids. *Appl. Phys. Lett.* 51, 1280-1282.
- Xu, C., Hampden-Smith, M. J. and Kodas, T. T. (1994) Aerosol-assisted chemical vapor deposition (AACVD) of silver, palladium and metal alloy (Ag_{1-x}Pd_x, Ag_{1-x}Cu_x and Pd_{1-x}Cu_x) films. *Adv. Mater.* 6, 746-748.
- Yamauchi, K. and Yoshizawa, Y. (1995) Recent development of nanocrystalline soft magnetic alloys. *Nanostruct. Materials* 6, 247-254.
- Yofle, A. D. (1993) Low-dimensional systems: quantum size effects and electronic properties of semiconductor microcrystallites (zero-dimensional systems) and some quasi-two-dimensional systems. *Adv. Phys.* 42, 173-266.
- Yoshizawa, Y., Oguma, S. and Yamauchi, K. (1988) New Fe-based soft magnetic alloys composed of ultrafine grain structure. *J. Appl. Phys.* 64, 6044-6046.
- Zachariah, M. R., Aquino, M. I., Shull, R. D. and Steel, E. B. (1995) Formation of super para-magnetic nanocomposites from vapor phase condensation in a flame. *Nanostruct. Material* 5, 383-392.
- Zhao, D. and Pan, X. (1994) Investigation of optical and electrical properties of ZnO ultrafine particle films prepared by direct current gas discharge activated reactive method. *J. Vac. Sci. Technol. B* 12, 2880-2883.

OBSERVATIONS EXPERIMENTALES DES DEPOTS D'AEROSOLS HYGROSCOPIQUES FINS SUR DES CIRCUITS ELECTRONIQUES ET DES DEGRADATIONS RESULTANTES DES PERFORMANCES DES CIRCUITS CONTAMINES

A. Litvak^{(1,2)*} - A. J. Gadgil⁽¹⁾ - W. J. Fisk⁽¹⁾

⁽¹⁾ Indoor Environment Program, Energy and Environment Division
Lawrence Berkeley National Laboratory,
One Cyclotron Road, MS 90-3058, Berkeley, CA 94720 USA

⁽²⁾ Ecole Nationale des Travaux Publics de l'Etat, Laboratoire des Sciences de l'Habitat
Département Génie Civil et Bâtiment URA CNRS 1652
Rue Maurice Audin, 69518 Vaulx-en-Velin Cedex - FRANCE

RESUME

Nous présentons une étude expérimentale sur les mécanismes complexes de dépôts particuliers sur les surfaces de circuits électroniques et sur la fiabilité du matériel contaminé en vue de contrôler ce type de contamination dans les environnements intérieurs. Des équipements électroniques sont exposés à un aérosol artificiel dans une chambre environnementale de taille réduite. Dans cette chambre, les dépôts particuliers sont accélérés d'un facteur 500, de par la valeur élevée de la concentration massique particulaire. Nous mesurons la vitesse de dépôt sur les surfaces électroniques. Les résultats expérimentaux démontrent l'influence forte des forces électrostatiques sur les localisations et sur les taux de dépôts particuliers. Les dépôts particuliers et l'humidité relative (HR) affectent significativement l'amplitude de l'isolation électrique (IE) entre les conducteurs électriques adjacents. Nous suggérons des méthodes possibles de réduction de la contamination du matériel électronique dans les environnements intérieurs conventionnels.

MOTS CLES

Electronique, Expériences, Dépôt, Défaillances, Aérosols intérieurs fins, Hygroscopicité, Humidité Relative, Contrôles.

INTRODUCTION

Contexte

La protection des circuits électroniques vis à vis des polluants de l'air intérieur représente un problème important pour les pays industrialisés, dont l'économie dépend de matériels électroniques de communication et de traitement de l'information de tailles sans cesse miniaturisées. Weschler (1994) estime qu'aux Etats Unis, 1 milliard de dollars sont dépensés annuellement pour réparer les équipements électroniques défectueux dans les centraux téléphoniques. Approximativement 20% de ces défectuosités (soit 200 millions de dollars) sont causées par les polluants de l'air intérieur. Dans une étude récente, Weschler (1991) suggère que dans de nombreux centraux téléphoniques, les coûts induits par une ventilation et une filtration plus adaptées sont plus que compensés par les économies induites par la diminution résultante des défectuosités des équipements électroniques contaminés.

* Adresse actuelle : CETE Lyon - DVT/HTC - 46, rue St-Théobald BP 128 38081 ISLE D'ABEAU Cedex
tél 04 724 27 51 67 - fax 04 74 27 52 52 - e-mail (internet) andres.litvak@cetelyon.equipement.gouv.fr

Effets de la contamination d'aérosols fins sur les équipements électroniques

Dans l'industrie des semi-conducteurs les éléments des circuits intégrés sont encapsulés lors de leur fabrication, de manière à protéger les composants les plus sensibles à l'exposition aux polluants particulaires lors de leur activité normale. Toutefois, certains éléments restent exposés directement à l'air ambiant, comme c'est le cas des "pattes" des puces électroniques qui relient les composants inclus dans ces dernières aux conducteurs surfaciques des circuits imprimés. Les particules fines (de taille [0.01-2 µm]) peuvent ainsi contaminer un circuit en créant un pontage entre deux conducteurs électriques adjacents non protégés, comme le montrent Weschler et Shields (1991). Par ailleurs, la fiabilité du matériel contaminé n'est pas forcément immédiatement affectée suite à la contamination. Par exemple, les circuits électroniques contaminés par des sels hygroscopiques peuvent fonctionner normalement à basse HR, et montrer des défaillances lorsque l'HR est élevée, c'est à dire lorsque les aérosols provoquent des courants de fuite ou des court-circuits, comme l'illustrent Burnett et al. (1992) et Frankenthal et al. (1993).

OBJECTIFS

Les mécanismes intervenant lors du dépôt particulaire sur les surfaces du matériel électronique ne sont pas encore totalement compris. L'impact de la contamination particulaire sur la fiabilité du matériel électronique nécessite également d'être étudié. L'objectif principal de ce travail est de déterminer l'impact du dépôt particulaire d'aérosol hygroscopiques sur le fonctionnement de matériels électroniques pollués. Nous désirons démontrer expérimentalement que le dépôt particulaire sur les surfaces électroniques conduit à une diminution de l'IE entre les conducteurs surfaciques ainsi qu'à des défaillances prématurées des équipements. Nous nous intéressons également à l'influence des forces électrostatiques sur les taux d'accumulation particulaire et à l'influence de l'HR sur l'IE des circuits électroniques exposés.

CONCEPT THEORIQUE DE VITESSE DE DEPOT

Comme l'expliquent Nazaroff et al. (1993), la plupart des modèles de prédiction de la qualité de l'air intérieur évaluent les interactions polluants-surfaces intérieures à l'aide du paramètre v_d , la vitesse de dépôt, par des mécanismes de pertes au premier ordre, cf. Eqn. 1 :

$$v_d = \frac{F}{C} \quad \text{Eqn. 1}$$

où F [kg/s/m²] est la densité de flux massique de polluants
 C [kg/m³] est la concentration des polluants, supposée homogène dans la pièce.

METHODES

Des expériences sont menées pour étudier le dépôt, et la contamination résultante, d'aérosols fins hygroscopiques sur des composants électroniques exposés dans une chambre environnementale de taille réduite EC1. Dix téléviseurs et 20 circuits imprimés dotés de puces électroniques (CPE) sont exposés à des aérosols très concentrés dans CE1. Les CPE sont orientés soit verticalement, soit horizontalement. Quatre téléviseurs et 2 CPE sont parallèlement exposés à l'air ambiant du laboratoire dans une seconde chambre environnementale CE2.

Description des matériels électroniques

Des téléviseurs de taille réduite achetés dans le commerce (Radio Shack Portavision, modèle 16-121A) sont choisis pour représenter des équipements électroniques typiquement présents dans les

locaux intérieurs de type bureaux (tels que les moniteurs d'ordinateurs). Durant les expériences, les téléviseurs sont connectés à un générateur d'images vidéo normalisées.

Des CPE standards sont spécialement fabriqués pour notre étude, voir Figure 2. Ils sont constitués d'une puce électronique carrée de 1 cm², vidée de tout composant électronique, dont les 52 pattes (espacées de 0.65 mm de centre à centre) sont connectées aux conducteurs surfaciques du circuit imprimé. Les pattes des puces sont classées en deux catégories : type I pour celles connectées individuellement et type II, pour les pattes connectées en réseau parallèle (voir Figure 2). De par la géométrie des conducteurs surfaciques des CPE, il est ainsi possible d'exposer les pattes adjacentes des puces à diverses différences de potentiel (ddp, tension continue).

Génération des particules et mesures dans EC1

Les particules sont générées par atomisation d'une solution aqueuse de sulfate d'ammonium et de traces d'uranine (rapport uranine/sulfate d'ammonium : $\xi = 1\%$), en utilisant un atomiseur à réponse constante (TSI modèle 3076) et de l'air comprimé sec filtré. Un volume d'air de EC1 est dilué et échantillonné en vue d'être analysé par un compteur optique (PMS Model LASAIR 1003) et par un analyseur différentiel de mobilités (TSI Modèles 3071 et 3025) (de cette manière, les distributions granulométriques des aérosols sont analysées respectivement pour les dimensions [0.1-2.0 μm] et [0.01-0.1 μm]). Le diamètre massique médian des aérosols polydispersés ainsi générés est de 0.48 μm , avec un écart géométrique type de 1.8. La concentration massique des aérosols est mesurée dans EC1 approximativement $C = 15 \text{ mg/m}^3$.

Exposition et tests de fiabilité du matériel électronique

Dans une première phase expérimentale, les deux types d'équipements électroniques sont exposés simultanément durant 281 heures dans les deux chambres environnementales. Lors de l'exposition, 3 différences de potentiel sont distinctement appliquées aux pattes de puces : 0 Volt, 10 Volt et 240 Volt. La concentration massique dans CE1 est approximativement 500 fois plus élevée que la valeur de référence de la concentration massique moyenne d'aérosols intérieurs, mesurée par Turk et al. (1989), lors d'une étude sur 38 locaux commerciaux. Ainsi, l'exposition du matériel électronique dans CE1 est équivalente à approximativement 16 années d'exposition à un aérosol intérieur *normal*.

Dans une seconde phase expérimentale, les équipements électroniques sont observés visuellement et à l'aide de microscopes optiques. La fiabilité des téléviseurs est déterminée par l'observation des écrans lors du fonctionnement, pour des HR élevées. De même, les IE des pattes adjacentes des puces des CPE sont mesurées en fonction de l'HR, avant et après la contamination particulaire, d'après une méthodologie présentée par Litvak et al. (1998). La résistance électrique équivalente entre les pattes adjacentes est déterminée à partir de la loi d'Ohm, à savoir par le quotient entre la différence de potentiel appliquée entre les pattes adjacentes et le courant électrique, mesuré par un pico-ampèremètre KEITHLEY 619. Pour chaque circuit, les mesures sont réalisées pour des HR stables entre 30 % et 90 % (les mesures à HR bas précédant celles à HR élevées).

Mesures des vitesses de dépôt

Au terme des tests de fiabilité, les taux de dépôts particulaires sur les surfaces des CPE sont mesurés par une analyse fluorimétrique, d'après la technique présentée par Litvak (1998). Les échantillons extraits des surfaces exposées sont analysés à l'aide d'un fluorimètre TURNER 450. La masse particulaire totale déposée, m_{dep} , est déterminée à partir de la masse particulaire fluorescente déposée m^* , mesurée par les instruments. La densité de flux F de particules déposées sur une surface S par unité de temps Δt est calculée à partir de l'Eqn. 2 :

$$F = \frac{m_{\text{dep}}}{S \times \Delta t} = \frac{100}{\delta} \cdot \frac{m^*}{\xi \times S \times \Delta t} \quad \text{Eqn. 2}$$

où δ [%] est l'efficacité de la technique d'extraction de l'analyse fluorimétrique.

Les vitesses de dépôt entre les pattes des puces contaminées sont déterminées à partir des Eqn. 1 et Eqn. 2. L'aire de la surface de dépôt permettant de calculer v_d correspond à l'aire de la projection de la puce sur la carte électronique (voir Fig. 2)

RESULTATS

Observations

Contrairement à notre objectif initial, nous n'observons pas de dysfonctionnement sur les écrans des téléviseurs contaminés, même lorsque l'HR dépasse l'HR critique du sulfate d'ammonium (81 %). Les observations des pattes des puces mettent en évidence les niveaux d'accumulation particuliers les plus élevés entre les pattes de types II exposées à une différence de potentiel forte. Toutefois, l'accumulation particulière est aussi observée entre les pattes soumises à des ddp modérée ou nulle. Des dépôts hétérogènes révèlent dans certains cas l'existence d'un "pontage" particulière entre les pattes adjacentes des puces. Par ailleurs, en certains endroits, la courbure prononcée des pattes met en évidence un dépôt particulière préférentiel (plus particulièrement, à l'endroit où les pattes des puces forment un angle droit). Si les agglomérats particuliers entre les pattes des puces exposées à une ddp élevée sont généralement grossiers, nous observons néanmoins la présence de fibres à l'intérieur des agrégats les plus fins. Enfin, nous observons clairement la déliquescence des agrégats hygroscopiques lorsque l'HR critique du sulfate d'ammonium est dépassée, ainsi que la persistance des fibres non-hygroscopiques.

Mesures des vitesses de dépôt

La Figure 3 représente les vitesses de dépôt mesurées. Les vitesses de dépôt ne sont pas statistiquement différentes pour les CPE orientés verticalement soumis à des ddp nulle ou modérée. La vitesse de dépôt augmente significativement lorsque la ddp est élevée (v_d augmente d'un facteur 5 lorsque ddp passe de 10 V à 240 V).

Mesures des IE

Les IE entre les pattes adjacentes de type II mettent en évidence une décroissance (approximativement) exponentielle avec l'HR. L'IE pour ces CPE soumis à une ddp de 240 V décroît approximativement de 3 ordres d'amplitude (des T Ω aux G Ω) lorsque l'HR augmente de 35 % à 65 %. Par ailleurs, à HR constante (60 %), les circuits exposés à une ddp élevée ont une IE environ 1000 fois plus faible (des T Ω aux G Ω) après la contamination, tandis que l'IE des CPE soumis à une ddp nulle ou modérée, ne diminue que d'un facteur 20 après contamination. A 90 % d'HR, l'IE d'un circuit soumis à une ddp de 240 V décroît jusqu'à 9 kV. Des observations microscopiques de la surface de ce CPE mettent en évidence des traces de brûlures entre les conducteurs électriques surfaciques.

DISCUSSION ET CONCLUSION

Les expériences ne démontrent pas que la contamination particulière entraîne des défaillances prématurées de téléviseurs commerciaux. Toutefois, les expériences relatives aux CPE indiquent que l'accumulation particulière et une HR élevée sont deux mécanismes indépendants dont la conjonction peut causer des diminutions très importantes de l'IE entre les conducteurs adjacents des CPE. De plus, les localisations des particules déposées indiquent très clairement l'influence des forces électrostatiques sur les taux et localisations des dépôts.

Burnett et al. (1992) proposent un critère permettant d'évaluer le seuil admissible de fiabilité de circuits analogiques et numériques contaminés. A partir d'un modèle, le dysfonctionnement total des équipements est prédit lorsque l'isolation électrique entre les conducteurs électriques adjacents est inférieure à 1 M Ω . A partir de ce critère, la décroissance des IE mesurées dans notre étude peuvent ainsi significativement affecter la fiabilité des équipements électroniques. De plus, Weschler (1991) estime qu'un taux d'accumulation d'aérosols fins d'environ 25 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ peut, dans la plupart des cas, permettre la "connexion" (c'est à dire la création d'un pontage particulaire entre deux conducteurs électriques adjacents) et ainsi contaminer la surface du circuit électronique. Dans notre étude, la densité de masse déposée sur les circuits dont l'IE est inférieur à 1 M Ω est supérieur à 37 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$, ce qui corrobore le critère de Weschler.

Cette étude met en évidence le fait que l'IE entre conducteurs adjacents diminue significativement avec le dépôt particulaire sur les surfaces sensibles. Ainsi, des méthodes possibles de réduction des taux de défaillances des équipements électroniques consistent à réduire les concentrations des aérosols intérieurs et/ou les vitesses de dépôt (cf. Eqn 1). De telles conditions sont généralement atteintes dans l'industrie des semi-conducteurs (salles blanches). Toutefois, les coûts d'installation et de maintenances de tels techniques sont impropres aux bâtiments classiques, pour une utilisation en conditions normales des équipements électroniques. Pour maintenir les taux de dépôts particuliers à des niveaux faibles dans de tels bâtiments, la ventilation et la filtration sont essentielles et nécessitent d'être adaptées, en fonction des risques de contamination mais également des soucis d'économies d'énergie. Ainsi, les critères de contamination admissibles présentés ci-dessus peuvent contribuer à cette démarche.

Par ailleurs, dans la mesure où le dépôt particulaire a lieu préférentiellement sur des sites précis des composants électroniques, la modification de la géométrie des pattes des puces électroniques peut ainsi contribuer à diminuer les taux de contaminations particulières et les défaillances résultantes. Des solutions sont proposées par Litvak et al. (1998).

Des résultats qualitatifs et quantitatifs sont présentés dans cet article pour nous permettre de mieux comprendre les mécanismes complexes de la contamination particulaire sur les composants électronique. A plus long terme, l'approfondissement de ces connaissances doit permettre de développer des outils de prédiction capables d'optimiser la ventilation et la filtration des locaux, en vue de réduire les risques de contamination du matériel électronique résidant.

REFERENCES

- W. H. BURNETT, F. S. SANDROFF and S. M. D'EGIDIO (1992). *Circuit failure due to fine mode particulate air pollution*. ISTFA '92, p. 329-333
- R. P. FRANKENTHAL, D. J. SICONOLFI and J. D. SINCLAIR (1993). Accelerated life testing of electronic devices by atmospheric particles : why and how. *Journal of electrochemical Society*, V 140, p. 3129-3134.
- A. LITVAK, A. J. GADGIL and W. J. FISK (1998). Hygroscopic fine mode particle deposition on electronic circuits and resulting degradation of circuit performance : an experimental study. *submitted to Indoor Air (May 1998)*
- A. LITVAK (1998). *Contribution à l'étude du dépôt d'aérosols fins sur les surfaces du matériel électronique à l'intérieur du bâtiment*. PhD Thesis, INSA Lyon
- W.W. NAZAROFF, C. J. WESCHLER, A. J. GADGIL (1993). Critique of the use of deposition velocity in modeling indoor air quality. *Modeling of Indoor Air Quality and Exposure, American Society for Testing and Materials*, ST 1205, N. L. Nagda, Philadelphia, 1993, 81-104.
- B. H. TURK, et al. (1989). Commercial buildings ventilation rates and particle concentrations. *ASHRAE Transactions* V 95, p. 422-433
- C. J. WESCHLER (1991). Predictions of benefits and costs derived from improving indoor air quality in telephone switching offices. *Indoor Air* V 1, p. 65-78
- C. J. WESCHLER and H. C. SHIELDS (1991). The impact of ventilation and indoor air quality on electronic equipment. *ASHRAE Transactions* V 97, p. 455-463
- C. J. WESCHLER (1994). *Personal communication*, Dr. C.J; Weschler, Distinguished Member of the Professional Staff, Bellcore, Red Bank, NJ (USA).

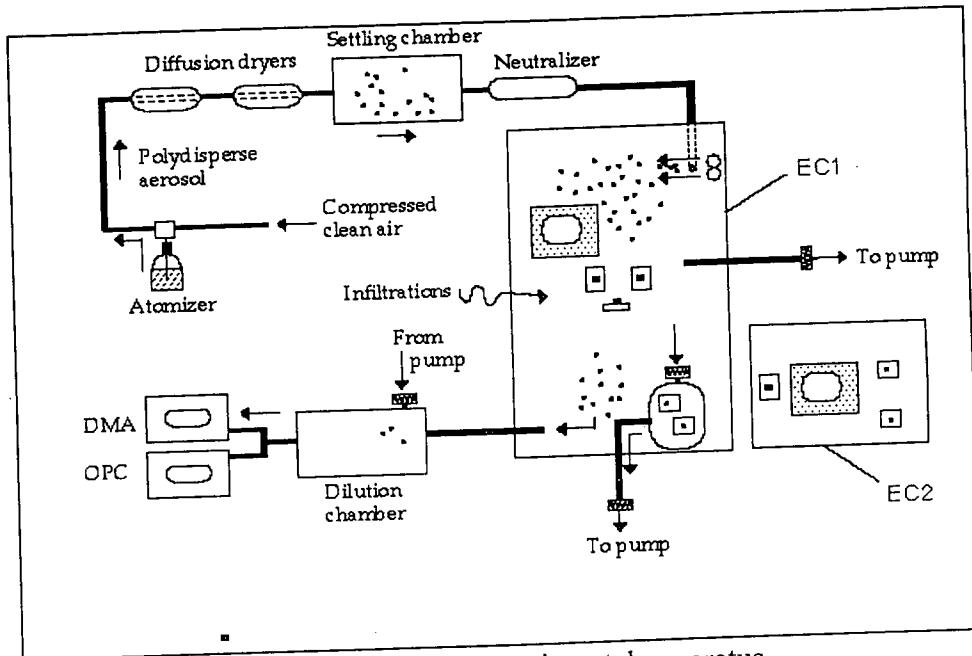


Figure 1. Diagram of primary experimental apparatus.

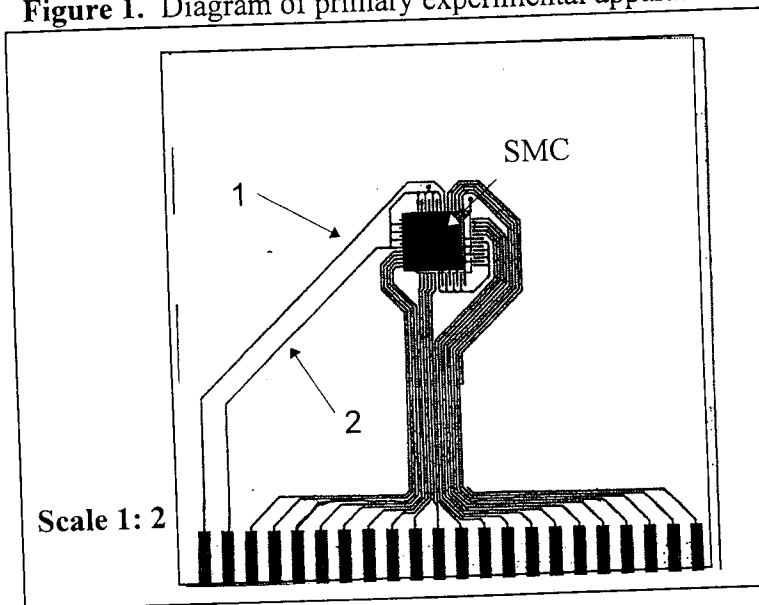


Figure 2. Layout of surface trace conductors on SMC circuit. Differential DC voltage was applied to legs of type II via connectors 1-2.

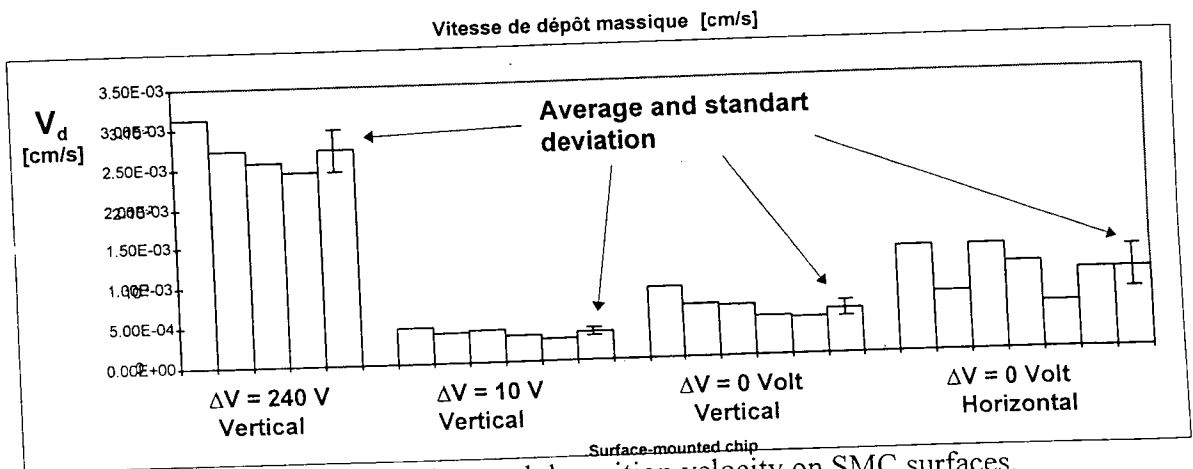


Figure 3. Measured deposition velocity on SMC surfaces.

Les dépôts chimiques métalliques par aérosol

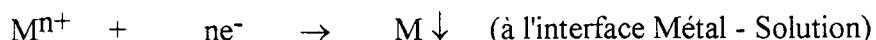
A.FARES KARAM^a, Y.SAÏKALI^b, G.STREMSDOERFER^{a1}

^a Laboratoire Ingénierie et Fonctionnalisation des Surfaces, UMR CNRS 5621
Ecole Centrale de Lyon, B.P. 163, 69131 ECULLY Cedex

^b Laboratoire de Chimie Inorganique, Université Libanaise, Beyrouth.

Introduction

Parmi les méthodes de revêtement métallique par voie "humide", la méthode electroless (sans courant électrique) ou autocatalytique permet d'élaborer des films métalliques ou d'alliages sur des supports de façon uniforme. L'épaisseur du film peut être facilement contrôlée par les caractéristiques du bain de dépôt, à savoir : la concentration des espèces en solution, le pH, la température et la durée d'immersion de l'échantillon dans le bain. Le mécanisme général des dépôts par voie chimique en milieu aqueux consiste en la réduction contrôlée d'un cation métallique selon la réaction globale:



Dans le cas d'un dépôt électrochimique, la solution constitue une réserve de matière sous forme d'un sel métallique, les électrons étant apportés à l'interface métal-solution par l'intermédiaire d'une source de courant extérieure.

Dans le cas d'un dépôt electroless (sans courant électrique) ou autocatalytique, le bain de dépôt constitue une réserve de matière sous la forme d'un ou de plusieurs sels métalliques généralement complexés et d'une réserve d'électrons sous forme d'un réducteur qui en s'oxydant les libère. Au contact d'une surface catalytique ou rendue préalablement catalytique, le réducteur est oxydé, permettant la réduction du cation métallique à la surface du substrat. Le métal déposé étant généralement catalytique pour l'oxydation du réducteur, le dépôt s'entretient par un mécanisme autocatalytique. Le complexant permettant d'augmenter la constante de stabilité du cation métallique dans la solution, évite la réaction d'oxydo-réduction spontanée dans le milieu. Le bain de dépôt reste donc stable. On peut considérer que dans ce cas, le dépôt electroless fonctionne de façon statique dans le sens où le bain constitue un volant d'inertie chimique pendant le dépôt¹.

un concept nouveau de dépôt par voie "humide" fonctionnant de façon dynamique, sans volant d'inertie chimique a été décrit récemment^{2,3} ouvrant des nouvelles perspectives dans le domaine des dépôts métalliques par aérosol. Le principe consiste en effet à transporter par un aérosol sur le substrat à recouvrir, une phase aqueuse contenant la matière et la réserve d'électrons, donc les ions métalliques et les agents réducteurs. Dans la mesure où, le rapport électronique Ox/Red est dans des proportions adéquates, que le film aqueux est maintenue suffisamment fin pour éviter un entraînement par précipitation, et que l'énergie de surface (E_s) du substrat est élevée de sorte que la surface présente une bonne mouillabilité, la réaction d'oxydo-réduction se déclenche alors, à la surface du substrat, et forme un film métallique homogène et adhérent. Le maintien d'un film liquide limite exige

¹ A qui toute correspondance devra être adressée

que la projection des deux solutions ne soit pas en continu mais de façon pulsée. Ainsi, la croissance du dépôt métallique sur le substrat a lieu pour une alternance de projections précises et bien définies.

Les premières gouttelettes des deux solutions qui s'écrasent à la surface du substrat ne forment pas immédiatement un film liquide, de composition homogène. La rapidité de formation du film liquide, thermodynamiquement instable, alimenté par le pistolet fonctionnant en mode pulsé dépend significativement des propriétés de surface du matériau à métalliser⁴, de sa mouillabilité⁵, de la constante de vitesse relative au métal complexé et des caractéristiques physico-chimiques de l'aérosol arrivant à la surface⁶.

Dans cette étude nous présentons l'influence de la taille des gouttelettes sur la croissance du film métallique de Nickel, un des métaux le plus déposé industriellement par voie humide. Nous présentons également des résultats relatifs à la cinétique réactionnelle et à la morphologie du dépôt qui sont conditionnées par la phase initiale de formation des noyaux de nickel et donc par la nature et les caractéristiques de l'aérosol arrivant à la surface. Cette investigation permet de mieux comprendre les mécanismes d'initiation et de croissance des films métalliques.

Conditions expérimentales

L'investigation de la taille des gouttelettes de l'aérosol et sa distribution en volume sont réalisées par diffractométrie laser en utilisant le "SPRAYTEC" de "Malvern Instruments". Cet outil s'avère nécessaire car le diamètre de la base de l'angle solide de projection (cône de projection) varie entre 10 et 30 cm et le "SPRAYTEC" est le seul diffractomètre qui permet actuellement d'analyser des aérosols dans un cône de projection si large.

La morphologie des dépôts métalliques a été étudiée par un microscope électronique type Philips XL20 muni d'une sonde X à dispersion d'énergie (EDS) type EDAX. L'étude de la croissance du film métallique et la cinétique réactionnelle sont suivies par une balance à quartz de type "Maxtek PM500". Cet appareil qui permet de mesurer la masse déposée sur une quartz donnée dans un bain de métallisation a été adapté pour la mesure des dépôts par aérosol.

L'appareillage de projection qui est mobile comprend une source d'air comprimé ou de gaz inerte, deux réservoirs distincts, contenant l'un l'oxydant et l'autre le réducteur, et un pistolet bicomposant. Ce dernier comporte une buse centrale en acier inoxydable permettant de nébuliser une des deux solutions et un chapeau de pulvérisation comportant deux cornes qui servent à nébuliser la deuxième solution et constituent, en même temps, une source d'air qui homogénéise le mélange des deux solutions. Des réglages au niveau de la tête du pistolet permettent d'obtenir un jet conique plus ou moins homogène et de contrôler la taille du spray.

Résultats et discussions

L'observation en microscopie électronique (Figure 1) montre la morphologie d'une couche typique de nickel pendant sa phase d'initiation. Le dépôt se présente sous forme des granules sphéroïdales d'un diamètre compris entre 70 et 100 nm.

La figure 2 montre la distribution en volume des gouttelettes de l'aérosol qui a généré ce dépôt. Cette distribution est centrée autour de 90 à 100 μm , valeur nettement plus grande que celle des particules de Nickel observées. Nous avons montré que pour une même quantité de solutions

projetées, le diamètre des agrégats métalliques formés est indépendant de la taille des gouttelettes du spray.

Par contre le rendement en métal déposé a été significativement influencé par cette distribution. La figure 3 montre la variation de la masse du métal déposé, sur un polymère de type ABS, en fonction de la distribution de taille des gouttelettes pulvérisées. Les valeurs du diamètre indiquées sur la courbe correspondent chacune à la valeur $Dv(50)$ de la distribution lognormale mesurée par le diffractomètre laser. Lorsque la distribution (en volume) des diamètres des gouttelettes est centrée autour 40 μm ou des valeurs inférieures, nous constatons alors que le rendement devient très faible jusqu'à s'annuler vers 10 μm . Aucune réaction électrochimique ne se déclenche à la surface du substrat et on n'obtient aucun dépôt métallique en dessous de cette valeur.

Cette inhibition de la réaction d'oxydo-réduction, obtenue avec des gouttelettes de faibles tailles, est due probablement au fait que le nombre de collisions efficaces, conduisant à une condensation entre deux gouttelettes chimiquement différentes, est très réduit. Ceci empêche le déclenchement de la réaction d'oxydo-réduction à la surface et aucun film métallique n'est formé. Cette hypothèse nécessite plus d'investigations pour mieux comprendre ces observations.

Il faut noter que notre distribution est mesurée en volume de gouttelettes et non en nombre. La détermination exacte de la distribution en nombre peut probablement nous fournir des renseignements complémentaires. La figure 3 montre aussi une région où le rendement est optimal pour une distribution en volume centrée autour de 120 μm .

La présence d'une zone de rendement optimal nous a conduit donc à tester plusieurs têtes de pulvérisations du pistolet pneumatique, afin de déterminer l'outil de projection optimal. Nous avons donc exclu les têtes de pulvérisation qui donnent un aérosol de gouttelettes de petites tailles avec un rendement médiocre.

La figure 4 montre la variation de taille des gouttelettes en fonction du temps de pulvérisation, pour un jet d'une durée de 800 ms et pour différentes têtes de pulvérisation. Avec les mêmes conditions opératoires (pressions et débits), nous remarquons qu'au début de la pulvérisation nous avons une zone turbulente comprenant des gouttelettes de grande taille. Nous constatons ensuite, au delà de 320 ms, une zone d'équilibre où l'aérosol devient plus homogène avec une distribution de taille de gouttelettes inférieure à celle de la zone précédente. Cette diminution de diamètre est de l'ordre de 35% à 46 %.

Si nous comparons les deux têtes de pulvérisations (symbolisées par CA et CB sur la figure 4) qui donnent les meilleurs résultats (rendements similaires), nous remarquons qu'à l'équilibre le CA donne un aérosol dont la distribution de taille est de l'ordre de 140 μm contre 170 μm pour le CB. Mais le CA atteint l'équilibre dans 320 ms contre 210 ms pour le CB.

Nous constatons que même si le CB donne un aérosol qui se stabilise plus rapidement que le CA (110 ms d'écart), il n'en demeure pas moins vrai que le CA produit un aérosol de gouttelettes de taille (140 μm) proche de l'optimum comme nous l'avons remarqué sur la figure 3 (optimum à 120 μm). Sachant que les rendements mesurés sont similaires pour les deux têtes de pulvérisations dans les mêmes conditions opératoires, nous pouvons conclure que pour une projection de 800 ms, la différence de profil de distribution de gouttelettes entre les deux têtes de pulvérisation, n'a pas de conséquence sur le rendement réactionnel.

En d'autre terme, les 110 ms d'écart pendant lesquelles le CB génère un aérosol dont le rendement est moyen (cf. figure 3), compensent le fait que le CA donne un aérosol à rendement optimal à l'équilibre. (La durée de l'aérosol à rendement optimal de CA est plus courte - de 110 ms - que la durée de l'aérosol à rendement moyen du CB donc il y a une compensation de rendement).

Ces résultats sont obtenus pour une projection de 800 ms, mais en général il y a un choix à faire en fonction de l'application. Le CB convient pour les dépôts métalliques dont la durée de pulvérisation est courte où les 110 ms d'écart peuvent influencer sensiblement le rendement. Par contre pour les dépôts métalliques à longue durée de pulvérisation, où l'écart du temps n'est pas significatif, il convient d'utiliser le CA.

Conclusion

L'investigation des propriétés de l'aérosol dans le procédé de métallisation chimique dynamique nous a permis d'élucider l'influence de ses caractéristiques sur le rendement et d'optimiser également la technique en terme de choix d'outil de pulvérisation pour atteindre une cinétique de croissance de l'ordre de 35 à 40 $\mu\text{m/h}$ et un rendement massique de l'ordre de 40% à 50%. Ces résultats sont obtenus à température ambiante et sans préparation préalable du support (en particulier pour le rendre catalytique). Finalement cette étude nous a permis de mieux contrôler l'apport des espèces réactives à la surface de l'échantillon, ce qui permet d'ajuster la consommation des produits réactionnels à la demande et de diminuer par la suite le coût du dépôt métallique et la quantité des effluents à traiter.

Collaborations :

- Ce travail est réalisé en collaboration avec les sociétés "ETAP" (Brion), "Malvern Instruments France" (Lyon) et "ITW Surface et Finitions-France" (Valence).

Références

- 1- G. Stremstoerfer, A. Fares Karam, Proceedings of the International Meeting of Electrochemistry, Ecole Polytechnique de Montréal, Canada (1997).
- 2- G. Stremstoerfer, A. Fares Karam, Brevet International n° 97-06834 (1997).
- 3- A. Fares Karam, G. Stremstoerfer, Plating & Surface Finishing, Vol.85,n°1, p 88-92, (1998).
- 4- G. Stremstoerfer, A. Fares Karam, Product Finishing, Vol.51,n°1,p14-15, (1998).
- 5- A. Fares Karam, G. Stremstoerfer, Proceedings of the 192th International Meeting of the Electrochemical Society, Paris (1997).
- 6- Parker C. Reist, "Aerosol Science and Technology", McGraw-Hill International Editions, 1993.

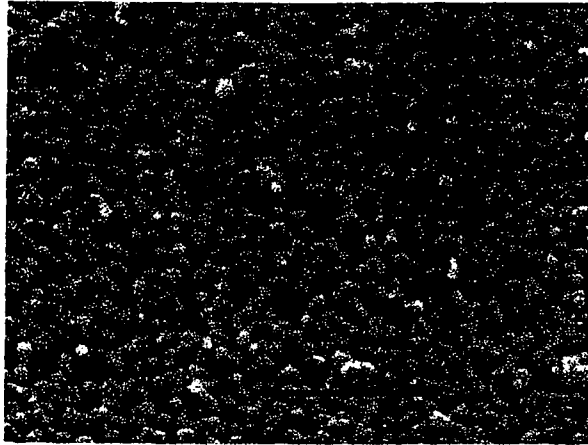


Figure 1: Morphologie d'un dépôt de NiB par aérosol

Distribution de taille

22/06/98 14:57:58.4900 - 14:57:58.50

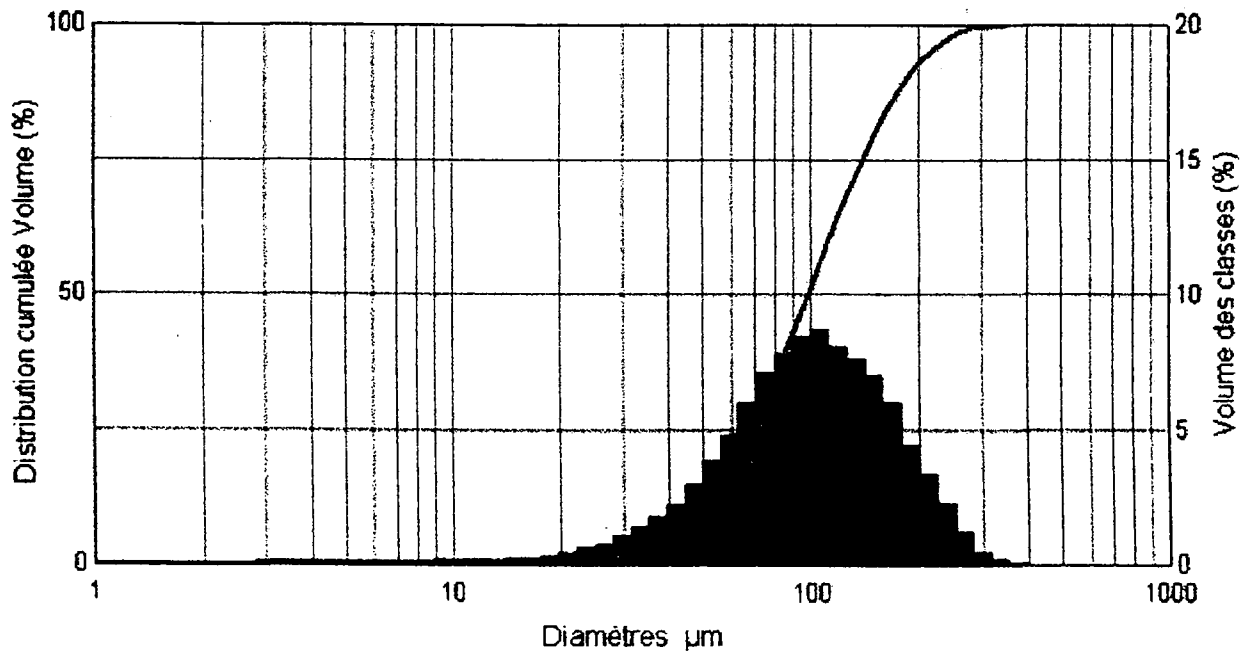


Figure 2: Distribution en volume des gouttelettes d'un aérosol généré par un pistolet pneumatique double buses pour élaborer le dépôt métallique montré sur la figure 1.

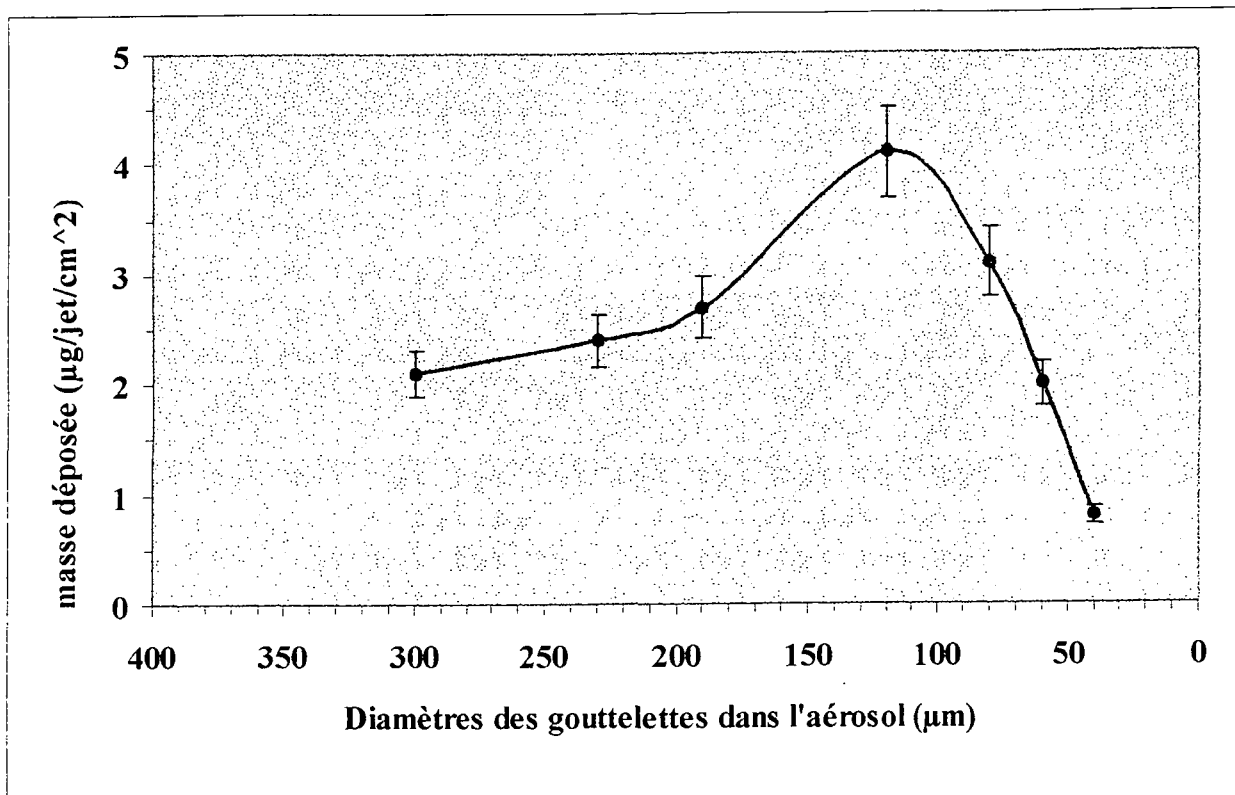


Figure 3 : Variation du rendement du dépôt métallique en fonction de la distribution de taille de l'aérosol

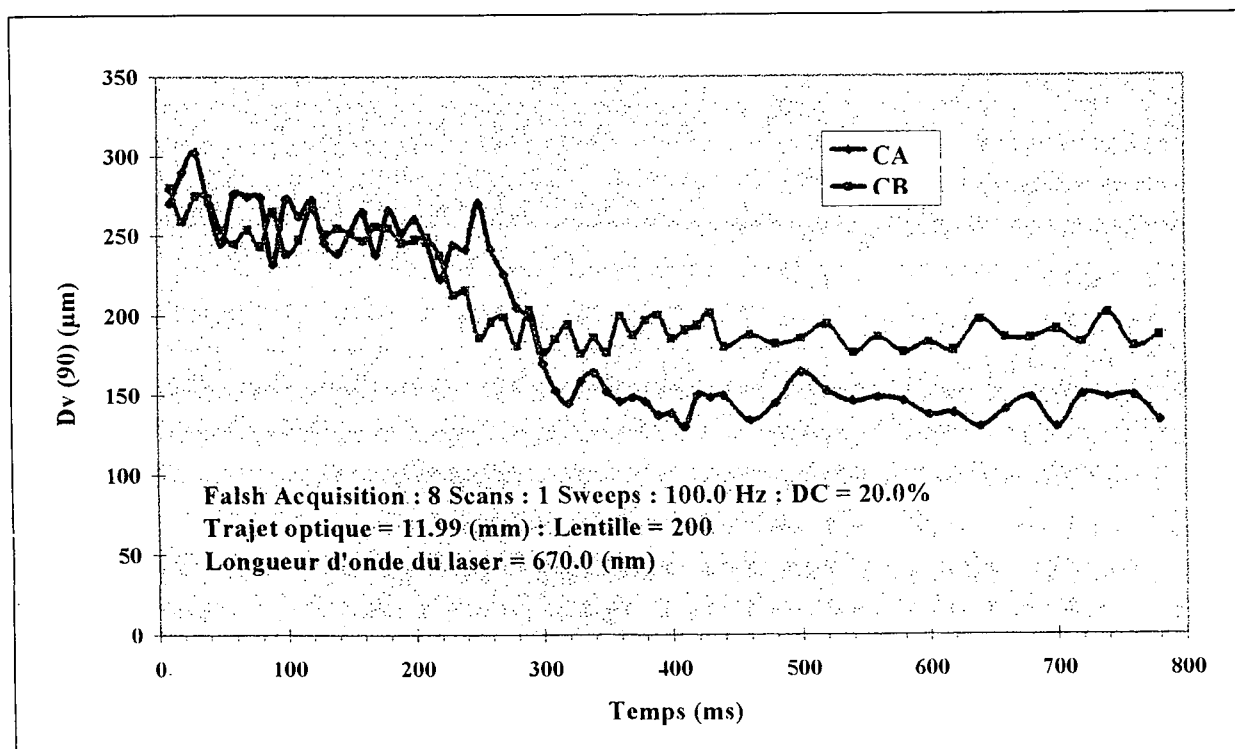


Figure 4 : Variation de la taille des gouttelettes (Dv (90)) de l'aérosol généré par un pistolet pneumatique double buses " en fonction du temps de pulvérisation

MESURES DE FLUCTUATIONS DE VITESSE TURBULENTE DE TRACEURS D'UN ÉCOULEMENT EN TUYÈRE

K. Jurski[#], M. Mebenga, E. Géhin
Jurski@lbhp.jussieu.fr, Gehin@univ-paris12.fr

Laboratoire d'Énergétique et de Thermique Industrielle de l'Est Francilien L.E.T.I.E.F.
IUT - Université Paris XII, av. du G^{ral} de Gaulle, 94000 - Créteil.

[#]Laboratoire de Biorhéologie et d'Hydrodynamique Physico-chimique L.B.H.P. ESA 7057
Université Paris VII, 2 place Jussieu, 75005 Paris.

L'étude s'inscrit dans le cadre de la compréhension des différents phénomènes susceptibles de modifier la granulométrie de la phase dispersée en écoulement turbulent. Celle-ci a révélé que le diamètre de la dispersion était directement influencé par le taux de dissipation turbulente ε , lui-même fonction des fluctuations turbulentes de vitesse. Après avoir « construit » une base de données, nous avons analysé les vitesses dans une approche spatiale puis temporelle. Il a ainsi été possible d'estimer la variation des fluctuations de vitesse au cours du temps en différentes sections du convergent et le long du convergent pour une section donnée.

The aim of the study is to determine the size stability area for droplets in a gas turbulent flow in a nozzle. The diameter stability area in such a flow is related to ε (m^2/s^3), the turbulent energy dissipation rate of the flow. But, most theoretically based relationships for ε are based on theories which apply to conditions outside the proper scope of nozzle flows. Therefore, an attempt has been made to determine ε by measuring the longitudinal mean-square fluctuating velocities in a nozzle.

Cette étude se place dans un cadre général de la compréhension des interactions entre phases dans un écoulement au passage d'une brèche (généralement simulée par une tuyère convergente - divergente) provoquée par la rupture accidentelle d'une canalisation ou d'un réservoir contenant des vapeurs condensables sous pression. D'un point de vue expérimental, le LETIEF est doté d'une boucle d'essai permettant l'étude d'un écoulement diphasique en tuyère convergente / divergente. L'évolution granulométrique des écoulements diphasiques dispersés en tuyère convergente / divergente a été analysée en terme d'interaction gaz - gouttes. L'influence de la nature, de la taille et de la concentration de la suspension ainsi que les effets de la turbulence sur l'évolution de la phase dispersée a été étudiée théoriquement et expérimentalement sur la boucle d'essai « Tapioca » (Jurski [1997]).

Dans le cas d'un écoulement turbulent gaz - gouttes en absence de vitesse relative moyenne entre phases, l'analyse des phénomènes de dislocation ou coagulation a montré la nécessité de déterminer théoriquement ou expérimentale le taux de dissipation turbulente ε de l'écoulement, fonction des fluctuations locales de vitesse turbulente. Jusqu'à présent, ce taux était estimé en entrée de tuyère à l'aide de formulations valables pour des écoulements établis en conduite à section constante (Kolmogorov [1949], Hinze [1955], Thomas [1981]).

En toute rigueur, cette détermination théorique de ε , basée sur des hypothèses de turbulence homogène et isotrope ne peut être transposée à l'écoulement dans une conduite à section variable. L'effet d'une contraction sur une turbulence initialement homogène a originellement été établi par Prandtl et Taylor [1934], puis Ribner et Tucker [1953], et Batchelor et Proudman [1954]. Selon Prandtl, la contraction provoque une augmentation spatiale des composantes latérales des fluctuations tandis que la composante longitudinale diminue en valeur absolue (aucune indication n'étant donnée sur l'évolution de la valeur relative). Cependant, Ramjee et Hussain [1976], qui soulignent effectivement une forte tendance à l'anisotropie de la turbulence au passage d'une contraction, rappellent des résultats expérimentaux qui vont à l'encontre de la théorie proposée par Prandtl (Hussain et Ramjee [1976], Uberoi [1956], Klein et Ramjee [1973], Voytovich [1974]).

Compte tenu des désaccords entre les différentes théories et les observations expérimentales, cette étude présente les mesures de fluctuations axiales longitudinales de vitesse turbulente de traceurs de l'écoulement (aérosol micronique de DOP) dans le régime continu, couplée à l'analyse critique de leurs évolutions spatiale et temporelle.

1. Dispositif expérimental

La boucle d'essai permet de générer par une décharge un écoulement diphasique dispersé constitué d'air sec et de traceurs au passage d'une tuyère convergente - divergente (section rectangulaire). Elle est instrumentée de façon à mesurer en cours de décharge les pressions, températures, débit massique ainsi que les vitesses axiales au cours de la décharge du réservoir amont au réservoir aval (Jurski et al. [1995]). Pour chaque décharge, les conditions d'expérience sont identiques ($p_{\text{amont}} = 4 \times 10^5$ Pa, $T_{\text{amont}} \approx 20^\circ\text{C}$).

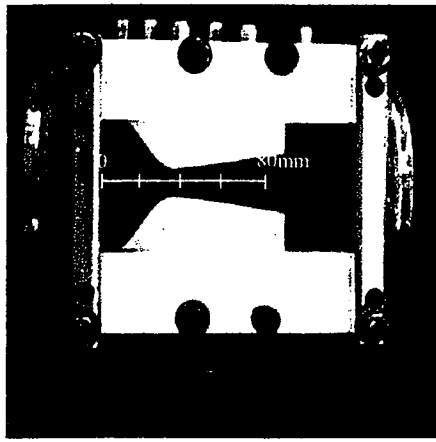


Figure 1 : vue de face de la tuyère convergente - divergente (paroi en pyrex de 30 mm d'épaisseur).

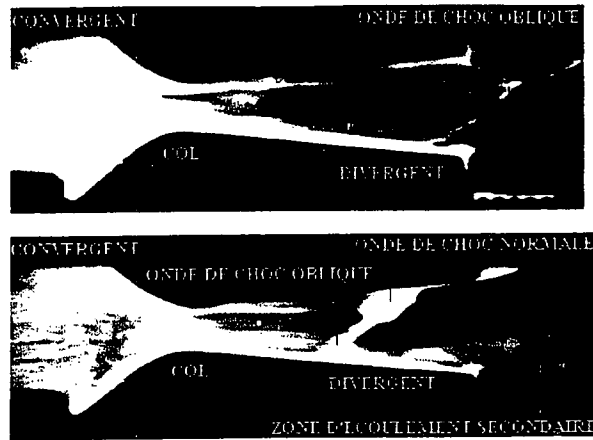


Figure 2 : visualisation de l'écoulement le long de la tuyère à différents instants de la décharge.

La phase liquide dispersée est constituée d'aérosol micronique de Di-octyl-phtalate ($\rho_{DOP} = 980 \text{ kg/m}^3$) généré par évaporation - condensation contrôlée puis injecté dans le réservoir amont par balayage à la pression atmosphérique (Attoui [1995]). Lors de la décharge, il se répartit de façon naturelle et homogène au sein de la phase continue (Figure 2). L'aérosol est monodispersé, de diamètres et concentrations connus ($0,4$ ou $1,3 \text{ }\mu\text{m}$, 10^4 à 10^7 p/cm^3 initialement dans le réservoir amont). Dans ces gammes de diamètres et de concentrations, l'aérosol de DOP est traceur de l'écoulement (Jurski [1997]).

Afin de caractériser expérimentalement le fluide en écoulement au passage de la tuyère, plusieurs séries de décharges d'un mélange d'air sec filtré et d'aérosol de DOP ont été effectuées. Pour chaque décharge, outre les mesures relatives au fluide en écoulement (pression, température, débit), les vitesses longitudinales des traceurs sont relevées en différentes positions dans le convergent, axialement discrétisé par pas de 2 mm. Ces mesures sont présentées dans une approche spatiale et temporelle et analysées en termes de fluctuations absolues (vitesse instantanée - vitesse moyenne) et relatives (vitesse instantanée / vitesse moyenne). Pour des raisons liées au dispositif expérimental, seules les vitesses axiales longitudinales ont pu être mesurées.

2. Approche spatiale de l'évolution de la vitesse axiale dans le convergent

2.1. Rappel sur la vitesse axiale moyenne

La chaîne de vélocimétrie et un traitement par densité spectrale de puissance (DSP) et périodogramme moyenné (Jurski et al. [1996]) ont permis d'obtenir un profil de vitesse dans le convergent à différents instants de la décharge. La Figure 3 indique les vitesses mesurées en différentes section du convergent pour un traceur constitué d'aérosol de DOP de $0,8 \text{ }\mu\text{m}$ de diamètre.

L'ensemble des vitesses mesurées révèle un profil graduellement croissant de la vitesse de l'aérosol DOP dans le convergent. Le profil évolue de 60 m/s à 300 m/s entre le début ($z = 0,005 \text{ m}$) et la fin du convergent ($z = 0,029 \text{ m}$), mettant en évidence la forte accélération à laquelle sont soumis les traceurs. Ces évolutions de vitesses sont à relier à la configuration de l'écoulement, qui jusqu'à $t = 13 \text{ s}$ est en branche critique dans le convergent.

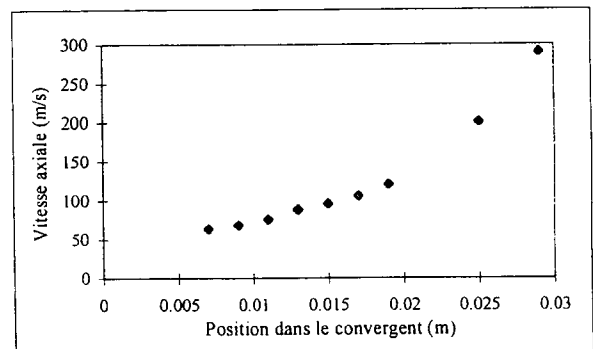


Figure 3 : profil de vitesse des gouttes mesuré dans le convergent de la tuyère en début de décharge ($t=3\text{s}$) pour un aérosol de DOP de $0,8 \text{ }\mu\text{m}$ de diamètre et une concentration initiale de 10^7 p/cm^3 dans le réservoir amont.

2.2. Mesures des fluctuations longitudinales de vitesse

La procédure utilisée pour déterminer les fluctuations de vitesse consiste en une décomposition du signal initial en 16 sous échantillons de taille identique (1024 points), puis pour chaque sous échantillon une estimation la DSP.

Les vitesses correspondantes aux 16 sous fichiers obtenus pour différentes positions sont illustrées sur la Figure 4, avec indication des valeurs maximales et minimales (barres verticales).

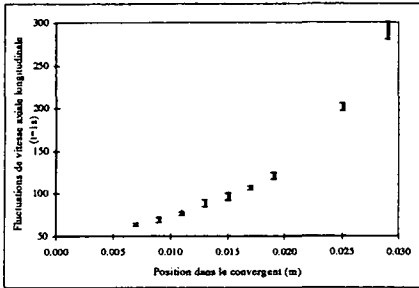


Figure 4 : profil de vitesses obtenus à partir de 16 sous fichiers pour chaque position dans le convergent en début de décharge.

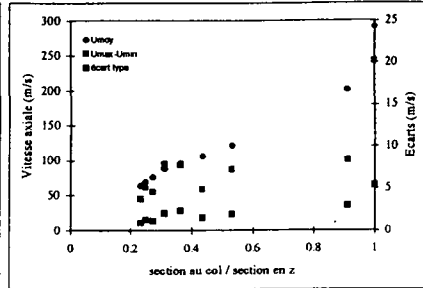


Figure 5 : Évolution de l'écart type et de l'écart entre U_{max} et U_{min} en fonction du rapport section au col / section en z . Rappel de l'évolution des vitesses moyennes.

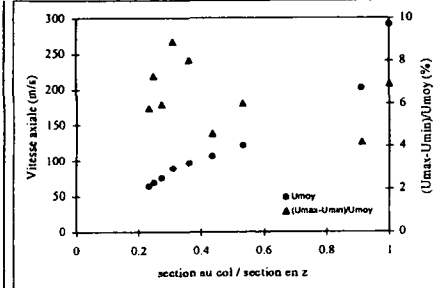


Figure 6 : Évolution du rapport $(U_{max} - U_{min})/U_{moy}$ en fonction du rapport de section (section au col / section en z) en début de décharge.

L'examen des informations souligne une tendance à l'augmentation des fluctuations de vitesse longitudinales autour de la valeur moyenne locale à l'approche du col.

De façon plus précise, la Figure 5 souligne une tendance à l'augmentation de l'écart type ainsi que de l'écart entre U_{max} et U_{min} en fonction de l'inverse du rapport de section (section au col / section en z).

Si une tendance à l'augmentation des écarts a pu être mise en évidence sur les courbes précédentes, la Figure 6 représentant l'évolution spatiale du rapport $(U_{max} - U_{min})/U_{moy}$ selon z et en fonction du rapport de section ne souligne aucune tendance notable. Notons cependant que l'intervalle de dispersion $(U_{max} - U_{min})$ normalisé par la vitesse locale moyenne reste globalement compris entre 4 et 10 %.

3. Approche temporelle de l'évolution de la vitesse axiale dans le convergent

3.1. Rappel sur la vitesse axiale moyenne

Les Figure 7 présentent les évolutions temporelles de la vitesse des traceurs en différentes positions dans la tuyère au cours de la décharge, pour un aérosol de DOP de diamètre $0,8 \mu\text{m}$ et de concentration initiale dans le réservoir amont de 10^7p/cm^3 .

Dans une approche temporelle, les évolutions des vitesses axiales de la phase dispersée indiquent une vitesse pratiquement constante en chaque section tant que le régime d'écoulement est critique.

Dès le déblocage du col, le régime devient subsonique généralisé, les vitesses axiales chutent rapidement.

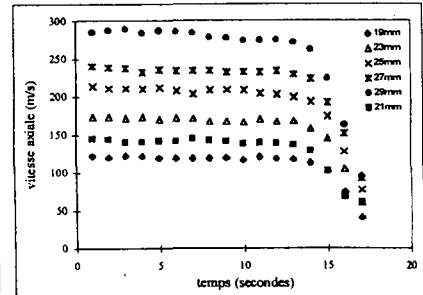
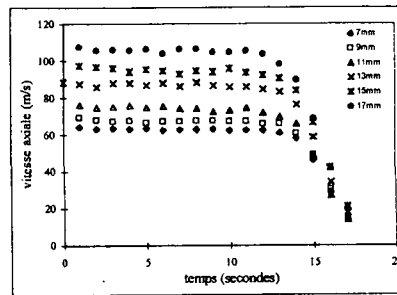


Figure 7 : évolution temporelle de la vitesse des gouttes de DOP de $0,8 \mu\text{m}$ de diamètre à différentes positions dans la tuyère au cours de la décharge. Les vitesses présentent un palier constant jusqu'à environ 13 s.

3.2. Mesures des fluctuations longitudinales de vitesse

Dans une seconde approche, les fichiers de vitesses mesurées ont été exploités en fonction du temps en différentes positions du convergent.

Bien que l'intégralité du convergent ait été décrit, nous choisissons de présenter les évolutions de vitesse pour trois positions uniquement à savoir le début et la fin du convergent, soit respectivement $z = 7 \text{mm}$, $z = 29 \text{mm}$ (rapports de section de 0,23 et 1).

Ces deux derniers groupes de figures ont en ordonnées les écarts de vitesses en m/s (écarts absolus) ou en % (écarts relatifs) selon les figures. Les valeurs des abscisses (s) correspondant à la durée chaque sous fichier (de 1 à 16) de 1024 points échantillonné à f_{ech} sont obtenues comme indiqué dans le tableau suivant :

f_{ech}	$(\tau_j) = \frac{1024}{f_{ech}} \times j$	$z = 7 \text{ mm}$	$z = 29 \text{ mm}$
$\tau_{1024pts}$ (1 sous échantillon)		10 MHz	40 MHz
$\tau_{16 \times 1024pts}$ (16 sous échantillons)		$1,024 \times 10^{-4} \text{ s}$	$2,56 \times 10^{-5} \text{ s}$
		$1,638 \times 10^{-3} \text{ s}$	$4,09 \times 10^{-4} \text{ s}$

Pour chaque position, les Figure 8 et 9 présentent l'évolution des vitesses à chaque seconde de la décharge obtenues pour les 16 sous fichiers.

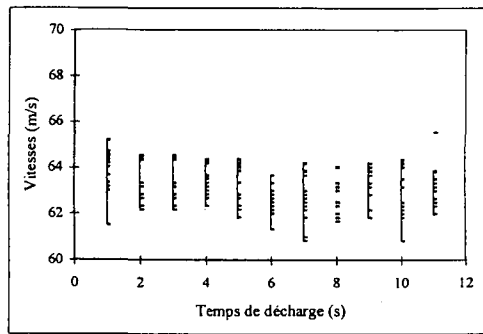


Figure 8 : Évolutions des vitesses en $z = 7$ mm (début de convergent, rapport de sections de 0,23) au cours du temps.

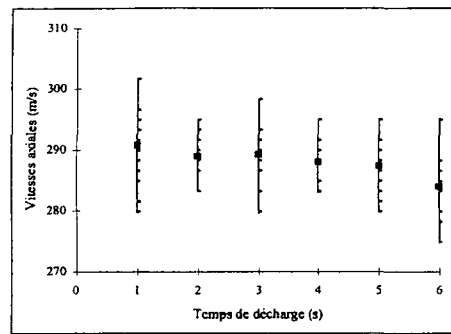


Figure 9 : Évolutions des vitesses en $z = 29$ mm (début de convergent, rapport de sections de 1) au cours du temps.

Les Figure 10 et Figure 11 présentent les 16 écarts de vitesses ($U_j - U_{moy}$ en m/s) obtenus à partir des 16 sous échantillons j à différents instants t (s) de la décharge (ces valeurs seront appelées « écarts absolus »), ainsi que les 16 rapports $(U_j - U_{moy})/U_{moy}$ en % obtenus à partir des 16 sous échantillons j à différents instants t (s) de la décharge (ces valeurs seront appelées « écarts relatifs »).

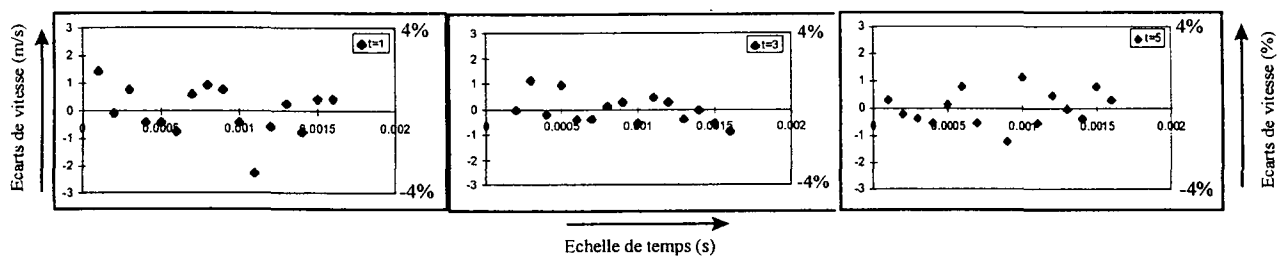


Figure 10 : Écarts de vitesses absolus (m/s) et relatifs (%) déterminés à partir des 16 sous fichiers à différents instants t de la décharge ($z=7$ mm).

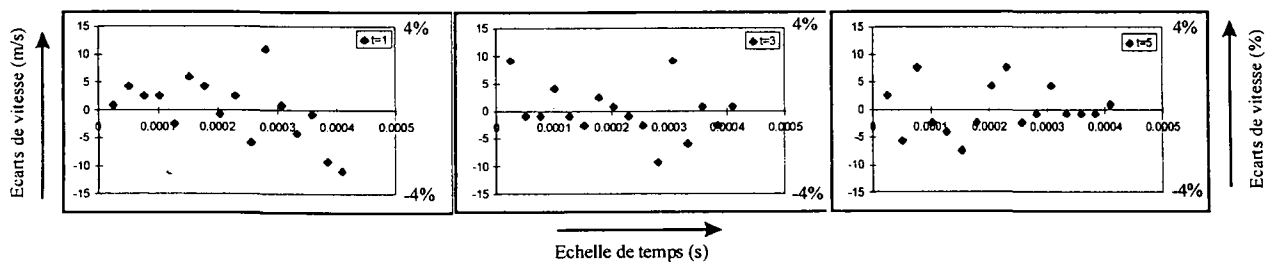


Figure 11 : Écarts de vitesses absolus (m/s) et relatifs (%) déterminés à partir des 16 sous fichiers à différents instants t de la décharge ($z=29$ mm).

Les variations des fluctuations de vitesses absolues pour les positions $z = 7$ mm et 29 mm à différents instants sont caractérisées par une répartition homogène des points autour de zéro, et ceci indépendamment de la position dans le convergent.

Pour $z = 7$ mm, c'est à dire à l'entrée du convergent, l'amplitude des fluctuations absolues varie entre 2 et 4 m/s alors que la vitesse moyenne en début de convergent est de l'ordre de 60 m/s.

Pour la dernière position étudiée ($z = 29$ mm), il y a confirmation de la tendance, à savoir une légère augmentation des fluctuations absolues et quasi constance des fluctuations relatives.

Le caractère relativement constant des fluctuations de vitesse en fonction du temps en une section a été confirmé par un relevé en continu de vitesses temporelles en $z = 21$ mm obtenu après traitement de l'information Doppler par un appareil commercial IFA 750 qui procède par chronométrage de la fonction d'autocorrélation du signal Doppler (Jenson [année non spécifiée]). L'observation en continu des fluctuations de la vitesse mesurée indique un écart $U_{max} - U_{min}$ de l'ordre de 10 m/s soit un écart par rapport à la valeur moyenne d'environ +/- 5 m/s sur la partie critique de l'écoulement.

En résumé sur l'approche spatiale et temporelle des vitesses :

- tendance à l'augmentation de l'écart entre U_{\max} et U_{\min} ainsi que de l'écart type dans une approche spatiale en fin de convergent (en début de décharge).
- aucune tendance notable dans l'évolution spatiale du rapport $(U_{\max} - U_{\min}) / U_{\text{moy}}$ en fonction z ni en fonction du rapport de section (en début de décharge).
- aucune tendance notable des évolutions temporelles des fluctuations en une section donnée pour les écarts relatifs et absolus présentés en $z = 7$ mm, 17 mm et 29 mm.

4. Conclusion

L'étude que nous avons menée s'inscrit dans le cadre de la compréhension des différents phénomènes susceptibles de modifier la granulométrie de la phase dispersée en écoulement turbulent. Celle-ci a révélé que le diamètre de la dispersion était directement influencé par le taux de dissipation turbulente ε , lui-même fonction des fluctuations turbulentes de vitesse.

Afin de déterminer expérimentalement les fluctuations de vitesse, nous avons utilisé un traitement reposant sur un moyennage des spectres fréquentiels (Densité spectrale de puissance associé à une méthode de périodogramme moyenné) : le traitement se base sur les informations Doppler relevées sur 16 sous échantillons de taille identique.

Après avoir « construit » une base de données (Mebenga [1998]), nous avons analysé les vitesses selon deux approches, l'une spatiale et l'autre temporelle. Il a ainsi été possible d'estimer la variation des fluctuations de vitesse au cours du temps en différentes sections du convergent et le long du convergent pour une section donnée.

Les évolutions ont révélé plusieurs points intéressants, notamment une croissance des fluctuations longitudinales absolues le long du convergent, ce qui va à l'encontre de la théorie de Prandtl. Nous pouvons expliquer cette contradiction par le fait de la géométrie particulière de notre tuyère. En fait d'après Prandtl, une contraction augmente les composantes latérales et diminue les composantes longitudinales des fluctuations, c'est à dire que la norme de la fluctuation est constante ; dans notre cas de figure, la tuyère possède une épaisseur constante (10 mm) qui modifie fortement voir inverse la tendance prévue.

Le manque de théorie globale sur l'évolution des fluctuations de vitesses au passage d'une contraction et la divergence des résultats expérimentaux montre d'une manière générale la forte dépendance des fluctuations en fonction des géométries des tuyères et de la nature de la turbulence à l'entrée des convergents.

D'autre part, un autre phénomène peut entacher les mesures de fluctuations de vitesses, certaines incertitudes de mesure sont aléatoires et fluctuent autour d'une valeur, on peut donc se poser la question de la nature de nos mesures : fluctuations physiques ou dispersions de la mesure liées à des erreurs aléatoires, essentiellement dues à des causes non identifiées qui varient de manière non contrôlée. Ces erreurs dites aléatoires ont de nombreuses causes qu'il sera nécessaire de déterminer de façon à finaliser l'étude.

Signalons pour conclure que dans le cas d'un écoulement gaz - gouttes, la densité de la phase continue est très faible comparée à celle de la phase dispersée. Selon Koca ustafaogullari et al. [1994], lorsque $\rho_d > \rho_c$, il existe une vitesse relative *locale* entre fluide et traceurs, qui implique que l'entraînement des gouttelettes par les tourbillons turbulents ne soit plus complet. Si ce phénomène est effectivement présent au sein de l'écoulement étudié, alors les fluctuations de vitesse mesurées sous estiment les fluctuations turbulentes vraies.

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, 1997.

KOLMOGOROV, A.N., *The break-up of droplets in a turbulent stream*, Dokl. Akad. Nauk. SSSR, vol. 66, pp. 825 - 828, 1949.

HINZE, J.O., *Fundamentals of the hydrodynamic mechanism of splitting in dispersion processes*, AIChE Journal, vol. 1, n°33, pp. 289 - 295, 1955.

THOMAS, R.M., *Bubble coagulation in turbulent flows*, Int. J. of Multiphase Flow, vol. 7, pp. 709 - 717, 1981.

RIBNER, H.S., TUCKER, M., *Spectrum of turbulence in a contracting stream*, NACA Report, vol. 1113, 1953.

BATCHELOR, G.K., PROUDMAN, I., *The effect of rapid distortion of a fluid in turbulent motion*, Quarterly Journal Mechanics and Applied Mechanics, vol. 7, pp. 83 - 103, 1954.

RAMJEE, V., HUSSAIN, A.K.M.F., *Influence of the axisymmetric contraction ration on free stream turbulence*, J. of fluids Engineering, pp. 506 - 515, 1976.

HUSSAIN, A.K.M.F., RAMJEE, V., *Effects of axisymmetric contraction shape on incompressible turbulent flow*, J. of Fluids Engineering, pp. 58 - 69, 1976.

UBEROÍ, M.S., *Effect of wind tunnel contraction on free stream turbulence*, J. Aerosol Sci., vol. 23, pp. 754 - 764, 1956.

-
- KLEIN, A., RAMJEE, V., *Effects of contraction geometry on non isotropic free stream turbulence*, Aero. Quaterly vol.23, pp. 34 - 38, 1973.
- TAYLOR, G.I., Proc. R. Soc., Ser. A 146, pp. 501 - 523, 1934.
- VOYTOVICH, L.N., *Influence of nozzle contraction damping of turbulent pulsations*, NASA Technical Translation, NASA TT F-15, p.724, July 1974.
- JURSKI K., GÉHIN E., DEGERATU M., PIAR G., *Etude expérimentale de la phase liquide dispersée dans un écoulement diphasique en tuyère convergente - divergente*, Association Française d'études et de Recherches sur les Aérosols, COFERAe, Actes du 11^{ème} congrès Français sur les Aérosols, pp. 182 - 187, Paris, 5 - 6 Décembre 1995.
- ATTOUI M., *Une nouvelle approche expérimentale de la mesure de l'efficacité des filtres à fibres à basse pression*, Thèse en Physique des Aérosols, Université Paris XII, Rapport CEA-R-5690, 1995.
- 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*, Actes du 5^{ème} Congrès Francophone de Vélométrie Laser, pp. F3, 1 - 8, Rouen, 24 - 27 Septembre 1996.
- JENSON, L.M., *LDV Digital Signal Processor based on Autocorrelation*, TSI Inc., St. Paul, MN, USA (année non spécifiée).
- JENSON, L.M., *Automatic Digital Signal Processing for LDV*, TSI Inc. St. Paul, Minnesota, USA (année non spécifiée).
- MEBENGA, M., *Étude expérimentale des fluctuations de vitesse turbulente en tuyère*, Rapport de DEA SPI, Université Paris XII, 1998.
- KOCAMUSTAFAOGULLARI, G., SMITS, S.R., RAZI, J., *Maximum and mean droplet sizes in annular two phase flow*, Int. J. Heat Mass Transfer, vol. 37, n°6, pp. 955 - 965, 1994.

¹ Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, Département de Prévention et d'Etude des Accidents, Service d'Etudes et de Recherches en Aérocontamination et en Confinement CEA/Saclay, Bat 389, 91191 Gif-sur-Yvette cedex, France.

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

Mots clés Aérosol, charges électriques, milieu fortement ionisé.

RESUME

En cas d'accident hypothétique dans un réacteur nucléaire à eau sous pression, l'irradiation gamma peut créer une atmosphère fortement ionisée. Dans une telle situation la connaissance des propriétés électriques de l'aérosol est utile afin de modéliser le transport et le dépôt des particules dans une enceinte. Notre dispositif expérimental permet de produire des concentrations ioniques pouvant atteindre 10^{14} paires d'ions par m^3 à l'aide de sources de ^{60}Co , et de mesurer en parallèle la distribution de charges de l'aérosol ainsi que les propriétés des ions. Nos résultats expérimentaux montrent que la distribution de charges est négative, conformément aux mesures des propriétés ioniques et au modèle de Clement et Harrison. Dans le cas de particules de latex de diamètre égal à $0,3\mu\text{m}$, la charge moyenne limite est égale à $-0,6e$ pour des concentrations ioniques de l'ordre de $10^{12} m^{-3}$. Cette charge moyenne est réduite à $-0,2e$ en milieu très fortement ionisé, lorsque la concentration en ions atteint $10^{14} m^{-3}$. Dans ce cas, il existe une charge d'espace qui tend à réduire le paramètre d'asymétrie de charge, défini par le rapport des conductibilités électriques dues aux ions respectivement positifs et négatifs.

INTRODUCTION

Dans l'hypothèse d'un accident grave survenant dans un réacteur nucléaire et conduisant au relâchement de produits de fissions, l'enceinte de confinement est soumise à une irradiation importante. Le rayonnement gamma issu de ces produits de fissions, provoque alors une ionisation indirecte du milieu due aux électrons secondaires émis lors des interactions photons-matière. Le débit de dose rencontré dans une telle situation peut atteindre 10 kGy/h . Ainsi, l'aérosol présent dans l'enceinte de confinement se trouve en présence d'un milieu fortement ionisé. Classiquement la distribution de charges électriques d'un aérosol est représentée par la loi de Boltzmann (Keefe *et al.* 1959). Cependant, dans une telle situation la distribution de charges de l'aérosol peut être différente de celle prédite par l'équilibre de Boltzmann (Bricard *et al.* 1965., Hoppel et Frick 1986, Renoux et Boulaud 1998).

Notre étude a pour objectif de déterminer la distribution de charges d'un aérosol en milieu fortement ionisé, en fonction des propriétés ioniques du milieu. La connaissance de cette distribution de charges doit permettre de mieux décrire les effets électriques sur le transport et l'évolution d'un aérosol dans une enceinte, par exemple le cas du transport d'aérosols induit par une charge d'espace ou bien encore le dépôt de particules sur des parois conductrices par effet de force image.

ELEMENTS THEORIQUES

L'interaction d'un rayonnement nucléaire avec un gaz produit des ions primaires dit "petits ions" (Israël 1957, Bricard 1977, Harrison 1992), dont la mobilité électrique est comprise entre $2,2 \cdot 10^4$ et $0,2 \cdot 10^4 \text{ m}^2/\text{V/s}$. La charge électrique d'un aérosol résulte de la fixation des petits ions présents dans le milieu sur la surface des particules. On obtient ainsi des "gros ions" ou particules d'aérosols chargés (Whitby et Liu 1966) dont la mobilité est inférieure à environ $10^5 \text{ m}^2/\text{V/s}$. Cette fixation est principalement fonction des phénomènes de diffusion brownienne et d'attraction coulombienne. Ces termes sont représentés par des coefficients de fixations des ions sur les particules d'aérosol (Gunn 1954, Bricard et Pradel 1966). Plusieurs expressions utilisant ces coefficients, ont été établies afin de déterminer le niveau de la charge électrique sur les particules en fonction des propriétés ioniques du milieu. Gunn (1954) établit une expression (1) pour le calcul de la charge moyenne de l'aérosol à l'état stationnaire. Cette expression est fonction d'un paramètre d'asymétrie $X = n_+ \cdot \mu_+ / n_- \cdot \mu_-$. Ce paramètre est défini par le rapport entre la conductibilité électrique due aux charges positives et la conductibilité électrique due aux charges négatives dans le milieu étudié.

$$J = \frac{1}{2 \cdot \lambda} \cdot \ln \left(\frac{n_+ \cdot \mu_+}{n_- \cdot \mu_-} \right), \text{ avec } \lambda = \frac{e^2}{4\pi \cdot \epsilon_0 \cdot dp \cdot k \cdot T}, \quad (1)$$

où J représente la charge moyenne des particules de l'aérosol (nombre de charges élémentaires), μ_+ et μ_- les mobilités électriques des ions respectivement positifs et négatifs ($\text{m}^2/\text{V/s}$), n_+ et n_- les concentrations des ions respectivement positifs et négatifs (m^{-3}), dp le diamètre des particules (m), ϵ_0 la permittivité du vide ($8,85 \cdot 10^{-12} \text{ F/m}$), e la charge élémentaire ($1,6 \cdot 10^{-19} \text{ C}$), k la constante de Boltzmann ($1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J/K}$) et T la température (K).

Par la suite, Gunn (1955) modélise la distribution de charges par une gaussienne centrée sur J et d'écart type $\sigma = 1/\sqrt{2\lambda}$. Cette expression est valide dans le régime continu, c'est à dire pour un nombre de Knudsen $\text{Kn} = 2 \cdot l.p.m / dp < 1$ (où $l.p.m$ est le libre parcours moyen des ions dans le gaz). Dans les conditions standards de température et de pression (STP, $T=293 \text{ K}$, $P=1013 \text{ hPa}$) l'expression est valide pour des particules de diamètres supérieurs à $0,1 \mu\text{m}$.

Si le milieu peut être considéré comme électriquement neutre (pas de charge d'espace), Bricard *et al.* (1965) proposent une nouvelle expression pour le calcul de la charge moyenne de l'aérosol. Cette expression est fonction du taux d'ionisation ainsi que de la concentration de l'aérosol. Cette loi a été expérimentalement validée par Pourprix (1973), ce qui a permis de montrer que la charge moyenne de l'aérosol définie par Gunn est atteinte seulement en milieu fortement ionisé. Plus récemment, Clement et Harrison (1992) ont établi une expression analytique (2) qui modélise la distribution de charges d'un aérosol monodispersé à l'état stationnaire. Cette expression est également fonction du rapport entre les conductibilités dues aux ions positifs et négatifs.

$$\frac{C_j}{C_0} = \frac{(\mu_+ \cdot n_+ / \mu_- \cdot n_-)^j}{\lambda \cdot j} \cdot \sinh(\lambda \cdot j) \cdot \exp(-\lambda \cdot j^2), \quad (2) \quad \text{où } C_j \text{ représente la concentration de}$$

particules portant j charges (m^{-3}) et C_0 la concentration de particules neutres (m^{-3}). La concentration totale de l'aérosol est définie par $C = \sum_j C_j$. Comme le montre la figure 1, les distributions de Gunn et de Clement et Harrison donnent des résultats très proches dans les

conditions standards de température et de pression. On note également que ces distributions sont significativement décalées vers les charges négatives par rapport à l'équilibre de Boltzmann. Dans la figure 1, le paramètre d'asymétrie utilisé pour la représentation des modèles est calculé en supposant les concentrations en ions positifs et négatifs égales (Chalmers 1967, Bricard 1977). Nous avons alors utilisé le rapport entre les mobilités des ions positifs et négatifs produits par un rayonnement alpha dans l'air. Ce rapport est déterminé expérimentalement par plusieurs auteurs (Bricard *et al.* 1970, Mohnen 1974, Ungethüm 1974), et est égal en moyenne à : $\mu_+ / \mu_- = 0,72$.

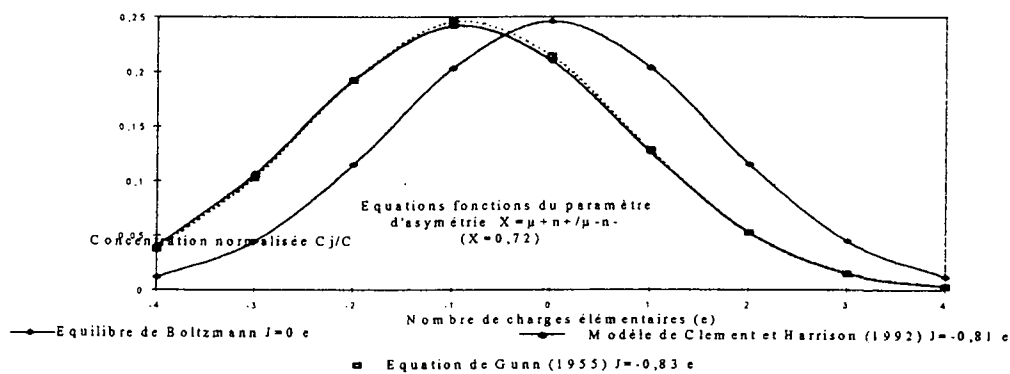


Figure 1 : distributions de charges théoriques pour un aérosol de diamètre $d_p=0,3 \mu m$.

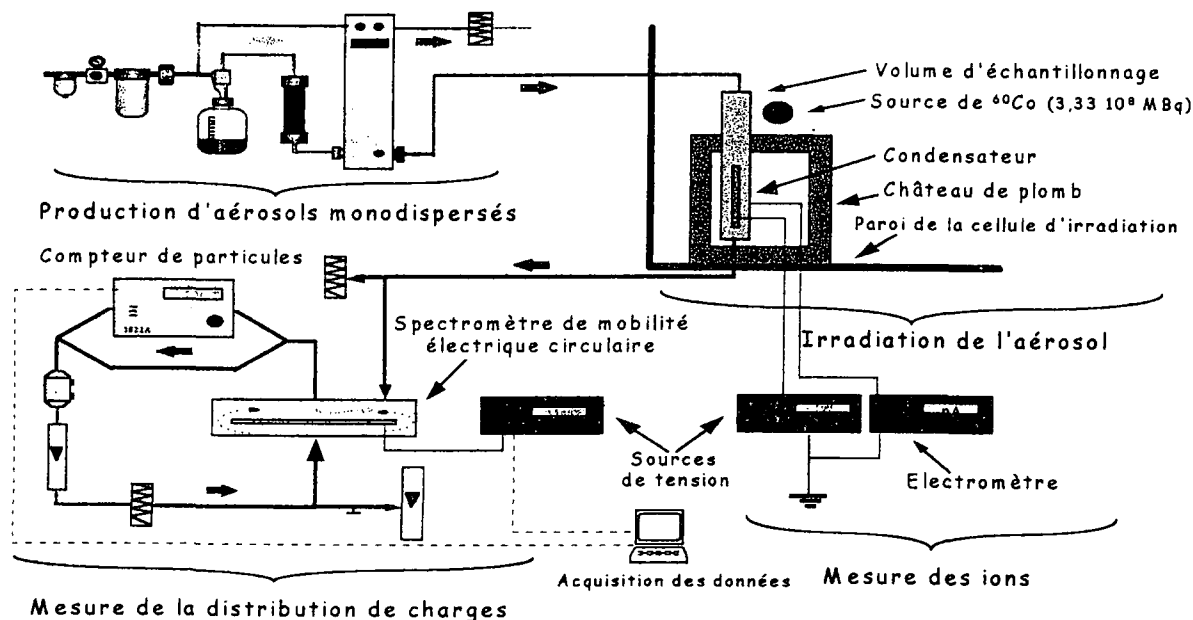


Figure 2 : dispositif expérimental.

Le dispositif expérimental que nous avons développé et qui est représenté figure 2 comporte 4 parties distinctes.

Production d'aérosols monodispersés.

Nous générons un aérosol de billes de latex à l'aide d'un pulvérisateur et d'un classificateur électrostatique. L'aérosol ainsi obtenu a un diamètre et une charge électrique parfaitement déterminés avant de pénétrer dans la zone ionisée (Liu 1976).

Irradiation de l'aérosol.

L'ionisation de l'aérosol s'effectue dans un conduit cylindrique placé à l'intérieur d'une cellule d'irradiation contenant des sources de ^{60}Co d'une activité totale de $3,33 \cdot 10^8$ MBq. Nous pouvons ainsi obtenir un débit de dose allant jusqu'à 7 kGy/h dans le volume d'échantillonnage. Ce qui correspond à un taux d'ionisation dans l'air de $q=4,4 \cdot 10^{17}$ paires d'ions/ m^3/s dans les conditions STP.

Mesure de la distribution de charges.

La mesure s'effectue grâce à un spectromètre de mobilité électrique circulaire d'ordre 1 (SMEC) (Mesbah 1994) et d'un compteur de particules. L'aérosol étant monodispersé, sa mobilité électrique dépend seulement de l'état de charge des particules.

Mesure de la conductibilité électrique du milieu.

La mesure de la conductibilité positive et négative des ions présents s'effectue à l'aide d'un condensateur cylindrique en appliquant la méthode de Gerdien (Bricard 1977, Renoux *et al.* 1979). Cette mesure permet de calculer le paramètre d'asymétrie $X = \frac{n_+ \cdot \mu_+}{n_- \cdot \mu_-}$, nécessaire pour la validation de l'équation de Clement et Harrison (1992).

Mesure des caractéristiques des petits ions produits sous irradiation gamma.

Cette mesure utilise un condensateur cylindrique placé en aval du volume irradié. Le condensateur est protégé du rayonnement gamma par un château de plomb d'une épaisseur de 10 cm, ceci afin de réduire le taux de production d'ions dans l'appareil. L'air ionisé passe dans le condensateur avec un débit déterminé. La tension entre les bornes permet de capter sur l'électrode de mesure tous les ions dont la mobilité est supérieure à la mobilité critique du système. Cette mobilité critique est définie par la relation suivante.

$$\mu_0 = \frac{\epsilon_0 \cdot D}{c \cdot U}, \quad (3)$$

où μ_0 est la mobilité critique ($m^2/V/s$), D le débit dans le condensateur (m^3/s), c la capacité du condensateur (F) et U la tension entre les électrodes (V).

Le courant total produit par les ions d'une polarité et de différentes mobilités, arrivant sur l'électrode de mesure s'exprime par la relation suivante (Israël 1957, Paugam 1978).

$$I = \frac{c \cdot U}{\epsilon_0} \cdot \gamma(0, \mu_0) + D \cdot \rho(\mu_0, \infty), \quad (4)$$

où I est le courant d'ions arrivant sur l'électrode de mesure (A), $\gamma(0, \mu_0)$ la conductibilité électrique due aux ions de mobilité comprises entre 0 et μ_0 ($\Omega^{-1} \cdot m^{-1}$) et $\rho(\mu_0, \infty)$ la densité de charges due aux ions de mobilités supérieures à μ_0 (C/m^3).

Si nous supposons qu'il existe pour chaque polarité, une seule catégorie d'ion de mobilité μ_{\pm} dans le système. La conductibilité due aux ions de cette polarité s'écrit alors :

$$\gamma_{\pm} = e \cdot \mu_{\pm} \cdot n_{\pm}, \quad (5)$$

où γ_{\pm} est la conductibilité due aux ions respectivement positifs ou négatifs ($\Omega^{-1} \cdot m^{-1}$), μ_{\pm} la mobilité des ions respectivement positifs ou négatifs ($m^2/V/s$) et n_{\pm} la concentration des ions respectivement positifs ou négatifs (m^{-3}).

Nous utilisons l'électrode externe dans notre condensateur pour la collection des ions (Tammet 1967). Lorsqu'on applique une tension négative sur l'électrode centrale, les ions négatifs sont collectés par l'électrode de mesure externe. Ainsi, en faisant varier la tension, on détermine la conductibilité correspondant aux ions négatifs $\gamma_- = e \cdot \mu_- \cdot n_-$. On effectue la même opération pour déterminer la conductibilité des ions positifs, en portant l'électrode centrale à un potentiel positif. Lorsque la tension est suffisamment élevée (la mobilité critique est donc très faible), tous les petits ions pénétrant dans le condensateur sont collectés. La conductibilité due aux gros ions dont la mobilité est inférieure à la mobilité critique est négligeable, car leur concentration est très faible par rapport à la concentration des petits ions. Le courant devient donc constant et le condensateur fonctionne comme un compteur intégral. Nous pouvons ainsi déterminer la concentration totale en ions de chaque signe dans le milieu suivant la relation :

$$I = n \cdot D \cdot e, \quad (6)$$

où I représente l'intensité (A), n la concentration ionique (m^{-3}), D le débit (m^3/s) et e la charge élémentaire (C).

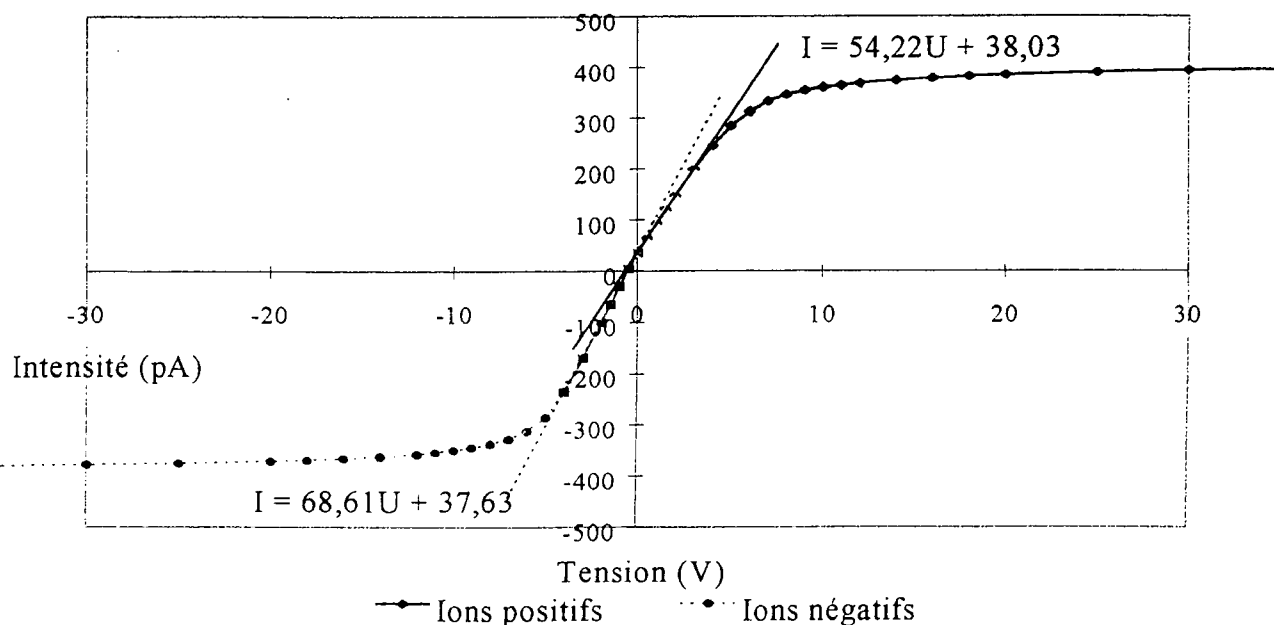


Figure 3 : mesure des caractéristiques des petits ions obtenus pour un débit de dose de 24 Gy/h.

Sur la figure 3 nous observons pour l'analyse des ions positifs ou négatifs, une seule pente propre à chaque caractéristique (positive ou négative). Ce résultat indique la présence d'une seule catégorie de mobilité pour les ions positifs et d'une seule catégorie de mobilité pour les ions négatifs. D'après la figure 3 nous pouvons déduire directement le rapport d'asymétrie X, pour un débit de dose de 24 Gy/h en effectuant le rapport des deux pentes relatives aux caractéristiques des ions positifs et négatifs. Nous obtenons ainsi $X=0,79$. Les concentrations en ions sont déterminées d'après le courant de saturation, nous obtenons les valeurs suivantes : $n_+=3,40 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-3}$ et $n_-=3,28 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-3}$, donc $n_-/n_+ < 1$. Ce résultat s'explique par une perte plus importante d'ions négatifs sur les parois du volume d'échantillonnage, due à une diffusion plus rapide des ions négatifs. Ce résultat est en accord avec la modélisation numérique des profils de concentrations ioniques dans un conduit réalisé par Hoppel et Frick (1990).

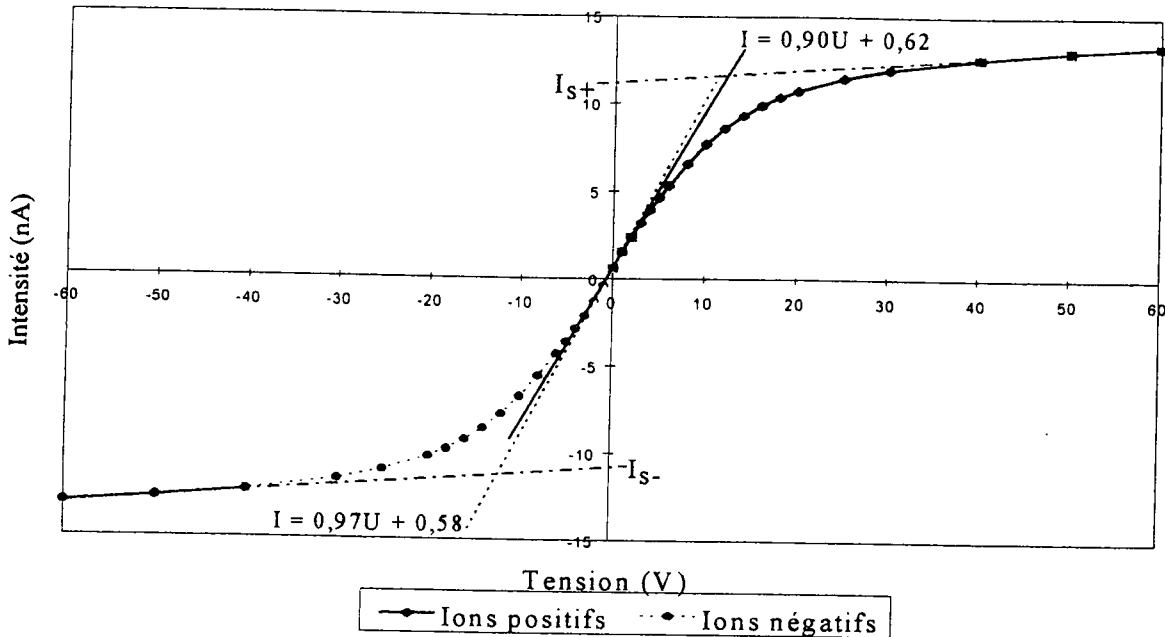


Figure 4 : mesure des caractéristiques des petits ions obtenus pour un débit de dose de 7 kGy/h.

D'après la figure 4, nous constatons que les pentes des caractéristiques relatives aux ions positifs et négatifs sont plus proches que dans le cas présenté figure 3. Le rapport des conductibilités dues aux ions positifs et négatifs se rapproche de l'unité pour un débit de dose de 7 kGy/h. Ce résultat peut être interprété à l'aide des remarques suivantes. Le taux d'ionisation et la concentration en ions sont suffisamment élevés dans cette situation, pour que l'on ne puisse plus négliger les interactions entre les ions pendant leur migration dans le champ électrique du condensateur. Une des hypothèses définissant l'expression de la mobilité d'un ion n'est alors plus vérifiée (Bricard 1977). De plus, la charge d'espace due à la différence de concentration entre les ions positifs et négatifs, crée un champ électrique supplémentaire qui peut distordre le champ dans le condensateur. Ce champ tend à ralentir les ions négatifs et à accélérer les ions positifs. C'est pourquoi, les mesures des conductibilités positives et négatives tendent à être égales. Le paramètre d'asymétrie est alors calculé d'après le rapport des pentes à l'origine des caractéristiques obtenus pour les ions respectivement positifs et négatifs. Nous obtenons ainsi d'après la figure 4 un rapport d'asymétrie égal à $X=0,93$.

Nous remarquons de plus sur la figure 4 que le courant de saturation, correspondant à la collection de tous les ions d'une polarité n'est pas constant. Ce résultat s'explique de la façon suivante. Dans le cas où le volume d'échantillonnage est soumis à un très fort débit de dose (7 kGy/h), le château de plomb d'une épaisseur de 10 cm ne permet pas d'atténuer suffisamment le rayonnement gamma, et il subsiste un taux d'ionisation non négligeable dans le condensateur. Notre compteur d'ions fonctionne alors selon le principe d'une chambre d'ionisation en régime linéaire (Bernigau et Luck 1986). L'intensité du courant mesuré est alors fonction de la collection des ions provenant du volume d'échantillonnage et d'un terme dépendant du taux de production d'ions dans le condensateur et du champ électrique appliqué entre les électrodes. En l'absence d'aérosol nous pouvons calculer l'intensité du courant mesuré à l'aide de l'expression suivante :

$$I = n \cdot D \cdot e + \frac{c \cdot e}{\epsilon_0} \cdot \mu \cdot \sqrt{\frac{q}{\alpha}} \cdot U, \quad (7)$$

où I est l'intensité du courant (A), n la concentration en ions de la polarité étudiée (m^{-3}), D le débit (m^3/s), e la charge élémentaire (C), c la capacité du condensateur (F), μ la mobilité des ions étudiés ($\text{m}^2/\text{V}/\text{s}$), q le taux d'ionisation dans le condensateur (paires d'ions/ m^3/s), α le coefficient de recombinaison des ions ($\alpha=1,6 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3/\text{s}$, Chalmers 1957, Bricard 1977) et U la tension entre les électrodes (V).

Pour calculer les concentrations ioniques obtenues pour un débit de dose de 7 kGy/h, nous utilisons d'après l'équation 7 les valeurs I_{s+} et I_{s-} extrapolées pour une tension nulle des courants de saturation représentés figure 4. Les concentrations en ions mesurées dans ce cas sont : $n_+=1,19 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-3}$ et $n_-=1,15 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-3}$.

Mesure de la distribution de charges d'un aérosol en milieu fortement ionisé.

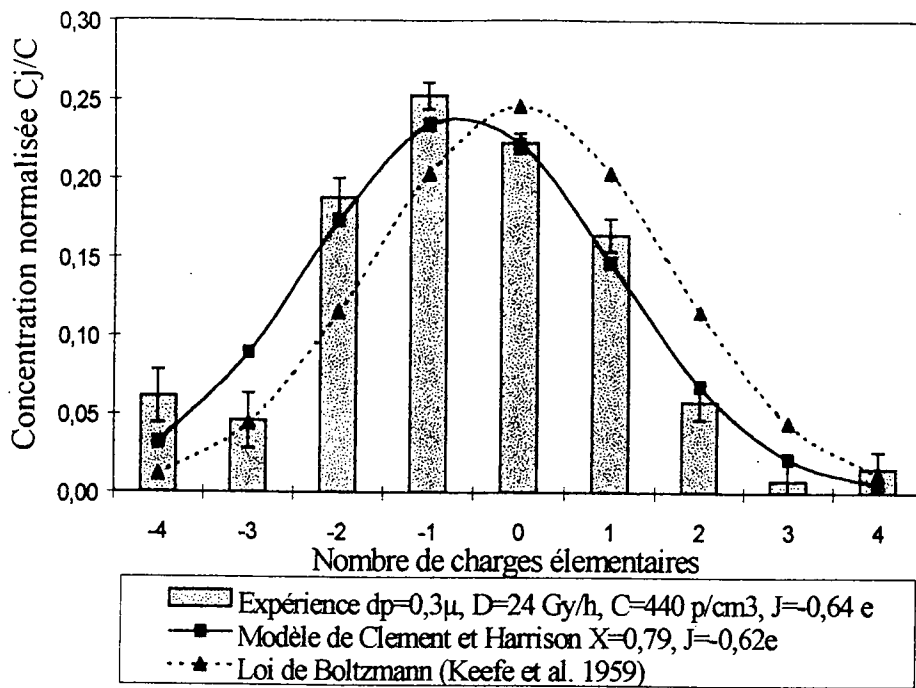


Figure 5 : distribution de charges d'un aérosol de diamètre $dp=0,3 \mu\text{m}$ pour un débit de dose de 24 Gy/h.

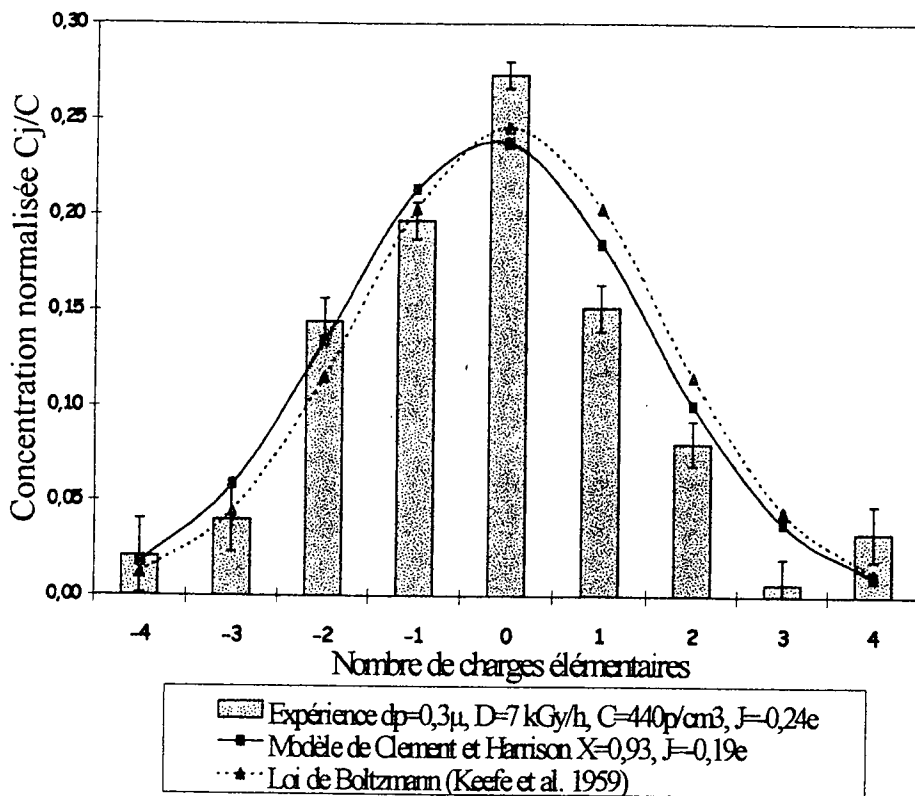


Figure 6 : distribution de charges d'un aérosol de diamètre $dp=0,3 \mu\text{m}$ pour un débit de dose de 7 kGy/h.

Les distributions de charges expérimentales qui sont présentées dans les figures 5 et 6 sont comparées aux distributions de charges théoriques calculées d'après le modèle de Clement et Harrison, en intégrant les paramètres d'asymétrie déterminés dans chacun des cas. Nous observons dans les deux cas, une bonne concordance entre le modèle théorique et nos résultats expérimentaux. On remarque que lorsque le milieu est très fortement ionisé, la charge moyenne de l'aérosol est plus faible que dans le cas où il est moins fortement ionisé. Dans nos expériences, la charge moyenne de l'aérosol varie entre $J=-0,64 \text{ e}$ et $J=-0,19 \text{ e}$, les écarts types associés à ces mesures sont respectivement $\sigma=0,11 \text{ e}$ et $\sigma=0,13 \text{ e}$. La figure 7 représente la variation de la charge moyenne en fonction d'un paramètre de charge pour un aérosol de diamètre $dp=0,3 \mu\text{m}$ dans l'hypothèse où le milieu est électriquement neutre (Bricard *et al.* 1965). Ce paramètre de charge est défini par le rapport entre l'intensité d'ionisation effective (nombre de petits ions susceptibles d'être fixés par seconde et par m^3 sur l'aérosol) et le carré de la concentration totale de l'aérosol soit Q/C^2 . Cette courbe a été définie pour un rapport entre les mobilités des ions positifs et négatifs égal à 0,79. La charge moyenne de l'aérosol est supposée indépendante du paramètre de charge (Q/C^2) lorsque celui-ci est supérieur à $10^{-9} \text{ m}^3/\text{s}$ (Bricard *et al.* 1965). Cette constatation a été expérimentalement vérifiée par Pourprix (1973) pour des valeurs du paramètre de charge atteignant environ $8,3 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3/\text{s}$.

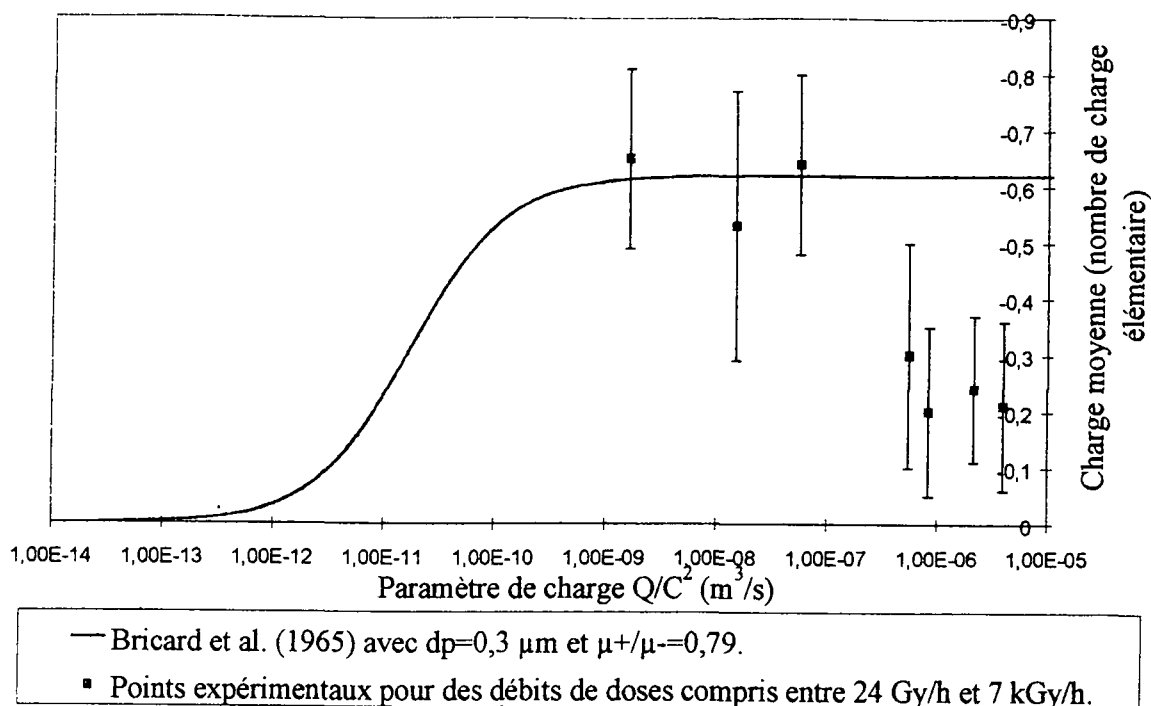


Figure 7 : variation de la charge moyenne de l'aérosol en fonction de l'intensité d'ionisation du milieu.

Nos expériences montrent que pour des valeurs supérieures de ce paramètre ($Q/C^2 \geq 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$, obtenu pour un débit de dose égal à 7 kGy/h) la charge moyenne n'est plus indépendante de Q/C^2 . La charge moyenne diminue, nous obtenons une charge d'environ $J=-0,2e$. Dans ce cas, le fort taux d'ionisation affecte les propriétés électriques du milieu et fait tendre le paramètre d'asymétrie vers 1 comme le montre la figure 4. Par ailleurs, les distributions de charges théoriques obtenues d'après le modèle de Clement et Harrison sont en accord avec nos résultats expérimentaux si l'on tient compte des mesures effectuées sur les propriétés ioniques (conductibilités, concentrations) du milieu. La charge électrique de l'aérosol se rapproche de l'équilibre de Boltzmann en milieu très fortement ionisé et ceci conformément à la variation mesurée du paramètre d'asymétrie.

Finalement, l'ensemble de nos résultats montre clairement qu'il est nécessaire de connaître les caractéristiques des ions présents (conductibilités, concentrations) dans le milieu afin de prévoir l'état de charge d'un aérosol.

BIBLIOGRAPHIE

- Bernigau N.G., Luck H.O. (1986) The principle of the ionization chamber in aerosol measurement techniques-A review. *J. Aerosol Science*. 17, 511-515.
- Bricard J., Girod P., Pradel J. (1965) Etat de charge des aérosols ultra-fins en milieu faiblement ionisé. *J. Physique Appliquée*. 26, 141-147.
- Bricard J., Pradel J. (1966) Electric charge and radioactivity of naturally occurring aerosols. In *Aerosol Science* edited by C.N. Davies, Academic Press.
- Bricard J., Cabane M., Madelaine G., Vigla D. (1970) Spectre de mobilité des petits ions de l'air. *J. Recherches Atmosphériques*. 107-113.
- Bricard J. (1977) Physique des aérosols 2° partie. Rapport CEA-R-4831(2).
- Chalmers J.A. (1967) Atmospheric Electricity. 2nd Edition Pergamon Press.
- Clement C.F., Harrison R.G. (1992) The charging of radioactive aerosols. *J. Aerosol Science*. 23, 481-504.
- Gunn R. (1954) Diffusion charging of atmospheric droplets by ions, and the resulting combination coefficients. *J. Meteorology*. 11, 339-347.
- Gunn R. (1955) The statistical electrification of aerosols by ionic diffusion. *J. Colloid Science*. 10, 107-119.
- Harrison R.G. (1992) Aerosol charging and radioactivity. Ph. D, London University. N° DX193810.
- Hoppel W.A., Frick G.M. (1986) Ion-Aerosol attachment coefficients and the steady-state charge distribution on aerosols in a bipolar ion environment. *Aerosol Science Technology*. 5, 1-21.
- Hoppel W.A., Frick G.M. (1990) The nonequilibrium character of the aerosol charge distribution produced by neutralizers. *Aerosol Science Technology*. 12, 471-496.
- Israël H. (1957) Atmosphärische Elektrizität. Teil 1, Leipzig Akademische Verlagsgesellschaft Geest & Portig.
- 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. (1976) Standardization and calibration of aerosol instruments. In *Fine Particles* edited by B.H.Y. Liu. Academic Press.
- Mesbah B. (1994) Le Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire. Théorie, performances et applications. Thèse de doctorat. Université Paris XII. Rapport CEA-R-5693.
- Mohnen V.A. (1974) Formation, nature, and mobility of ions of atmospheric importance. *Proc 4th Int. Conf. Atmospheric Electricity*, Garmisch-Partenkirchen.
- Paugam J.Y. (1978) Etude des principaux paramètres électriques de l'air, sur un site côtier, en atmosphère peu polluée. Thèse de doctorat. Université de Bretagne Occidentale (Brest).
- Pourprix M. (1973) Un nouveau précipitateur électrostatique : Application à l'étude de la charge des aérosols par diffusion d'ions bipolaires. Thèse de docteur ingénieur. Université Paris VI. Rapport CEA-R-4553.
- Renou A., Paugam J.Y., Madelaine G. (1979) Principe de la mesure des principaux paramètres de l'électricité atmosphérique-Résultats expérimentaux en atmosphère maritime peu polluée. *Pollution Atmosphérique*. 84, 297-302.
- Renou A., Boulaud D. (1998) Les aérosols : Physique et Métrologie. ed. Lavoisier, technique & documentation.
- Tammert H.F. (1967) The aspiration method for the determination of atmospheric-ion spectra. Translated from Russian, Israel program for scientific translations.
- Ungethüm E. (1974) The mobilities of small ions in the atmosphere and their relationship. *J. Aerosol Science*. 5, 25-37.
- Whitby K.T., Liu B.H.Y. (1966) The electrical behaviour of aerosols. In *Aerosol Science* edited by C.N. Davies, Academic Press.

INTERACTIONS CHIMIQUES ENTRE LES AEROSOLS D'ARGENT METALLIQUE ET LES COMPOSES IODES DANS L'ENCEINTE DE CONFINEMENT D'UN REACTEUR NUCLEAIRE A EAU PRESSURISEE EN CAS D'ACCIDENT GRAVE

D. SERRA⁽¹⁾, O. SAINT-RAYMOND⁽¹⁾, T. MONTANELLI⁽²⁾, A. ZOULALIAN⁽¹⁾

(1) LERMAB-ENSTIB - Université Henri Poincaré-Nancy 1 - BP 239 - 54506 VANDOEUVRE-LES-NANCY Cédex

(2) IPSN/DRS/SESHP/LEATS Centre d'Etudes de Cadarache - 13108 SAINT-PAUL-LEZ DURANCE Cédex

Abstract

During an hypothetical severe accident in a PWR, the iodide fission products can be transferred into the liquid phase of the containment with silver particles (or silver colloid) resulting from the fusion and the vaporisation of neutronic control rods. The chemical interactions between the iodide ions and the molecular iodine with the silver particles are studied in an aqueous phase separately and without radiation.

The interaction between the iodide ions and silver particles requires a preliminary oxidation step of the silver particles the rate of which depends on the pH, the temperature and the liquid oxygen concentration. A kinetic model including two independent stoichiometries allows to represent correctly the whole experimental runs. At pH = 3, the chemical interactions between molecular iodine and silver particles do not require an oxidation step and a second order kinetic model is able to represent the experimental results considering the operating conditions studied.

I - INTRODUCTION

L'Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire mène en collaboration avec des partenaires internationaux (Communauté Européenne, USA, Japon, Corée, Canada,...) le projet expérimental PHEBUS dans le but d'améliorer les connaissances sur le comportement des produits de fission lors d'un accident grave survenant sur un REP. Les deux premiers essais ont mis en évidence un comportement singulier des composés iodés et plus précisément une faible concentration en iode moléculaire dans la phase gazeuse située au dessus du puisard de la cuve simulant l'enceinte de confinement. Cette diminution apparente de l'iode est due à une interaction chimique entre les composés iodés et les particules d'argent (ou l'argent colloïdal) provenant de la fusion et de la volatilisation des barres de contrôle neutronique à base d'argent, d'indium et de cadmium.

Afin de modéliser ces interactions entre les composés iodés et les particules d'argent au sein des codes, différentes études analytiques ont été confiées aux partenaires du programme. L'étude présentée ci-après est une des contributions confiées par le Département de Recherches en Sécurité de l'IPSN à l'Equipe du Génie des Procédés du LERMAB dans le cadre du DEA en Génie des Procédés de Monsieur Daniel SERRA.

II - MONTAGE ET PROTOCOLE EXPERIMENTAL - GRANDEURS MESUREES ET DEDUITES

L'étude des interactions a été limitée à deux principaux composés iodés, à savoir l'ion iodure et l'iode moléculaire. Les interactions ont été examinées séparément et en l'absence de tout rayonnement ionisant. Les expériences sont réalisées dans un réacteur mécaniquement agité où la phase liquide aqueuse évolue en système fermé. La phase liquide est surmontée par une phase gazeuse dont la composition peut être modifiée par un bullage continu ou discontinu. Le pH de la solution est contrôlé et il peut être régulé.

Le protocole expérimental est le suivant. Un litre de solution aqueuse contenant une concentration fixée d'iodure de potassium ou d'iode moléculaire est placé dans le réacteur. Après l'obtention d'une solution saturée en phase gazeuse et isotherme à la température fixée, on introduit dans le réacteur deux grammes de particules d'argent dont le diamètre, compris entre 2 et 3,5 μm , correspond à une surface spécifique comprise entre 0,163 et 0,285 m^2/g . La consommation des ions iodures et de l'iode moléculaire est suivie au cours du temps par l'intermédiaire de prélèvements. Dans le cas des essais avec l'ion iodure le prélèvement se fait avec une seringue munie d'un filtre de 0,45 μm et les ions iodures sont dosés par chromatographie par électrophorèse capillaire. Pour les expériences avec l'iode moléculaire, l'iode étant piégé par le filtre, l'échantillon prélevé est décanté durant quelques secondes et le surnageant est dosé par absorption UV en présence d'un excès d'iodure connu afin de transformer l'iode en ion triiodure. Des courbes d'étalonnage permettent de transformer les surfaces chromatographiques ou les densités optiques mesurées en concentrations en ion iodure ou en iode moléculaire.

La concentration en ion iodure a été fixée à 2×10^{-4} M et celle en iode moléculaire à 10^{-4} M. L'iode moléculaire est obtenu par l'intermédiaire de la réaction de Dushman entre les ions iodure et iodate en milieu acide.

Les paramètres opératoires examinés lors de l'étude sont respectivement :

* pour les interactions iodure-argent :

- le pH : 3,6 ; 4,6 ; 7 ; 9
- la température : 40 ; 60 ; 80°C
- l'état initial des particules d'argent : argent commercial, argent réduit.

L'influence de la surface spécifique des particules d'argent et la présence d'ion borate en phase liquide ont été également étudiées. Les résultats acquis n'apportant pas de nouveaux éléments, nous ne les présenterons pas dans ce document.

* pour les interactions entre l'iode moléculaire et les particules d'argent, le pH a été fixé à 3 afin d'éviter la réaction d'hydrolyse de l'iode moléculaire. Les paramètres examinés sont l'atmosphère gazeuse (azote, air, oxygène) et la température (40, 60°C).

L'ensemble des essais réalisés permet de préciser l'influence des paramètres examinés et de proposer des modèles cinétiques représentant correctement les résultats expérimentaux.

III - ETUDE DES INTERACTIONS ENTRE LES IONS IODURES ET LES PARTICULES D'ARGENT

Les figures 1, 2, 3 résument respectivement les influences du pH, de l'atmosphère gazeuse et de la température. On constate, dans tous les cas, une décroissance rapide de la concentration en iodure puis une variation en fonction du temps plus ou moins prononcée en fonction du paramètre étudié.

En milieu fortement acide (pH = 3,6) l'interaction iodure-argent est notable. En revanche, au delà d'un pH supérieur ou égal à 4,6, l'interaction est faible, voir nulle. L'influence de la nature de la phase gazeuse est examinée pour les deux pH extrêmes 3,6 et 9. En l'absence d'oxygène et en dehors de l'étape initiale, l'interaction entre les ions iodures et les particules d'argent est inexistante sur la durée des essais. En revanche, au fur et à mesure que l'on augmente la concentration en oxygène dissous, la cinétique de la réaction est accélérée et pour une atmosphère gazeuse d'oxygène pur, la consommation des ions iodures est totale en moins de 20 minutes à pH = 3,6 et en 180 mn à pH = 9. Ces résultats permettent d'affirmer que l'oxygène dissous joue un rôle essentiel sur l'interaction entre les ions iodures et les particules d'argent.

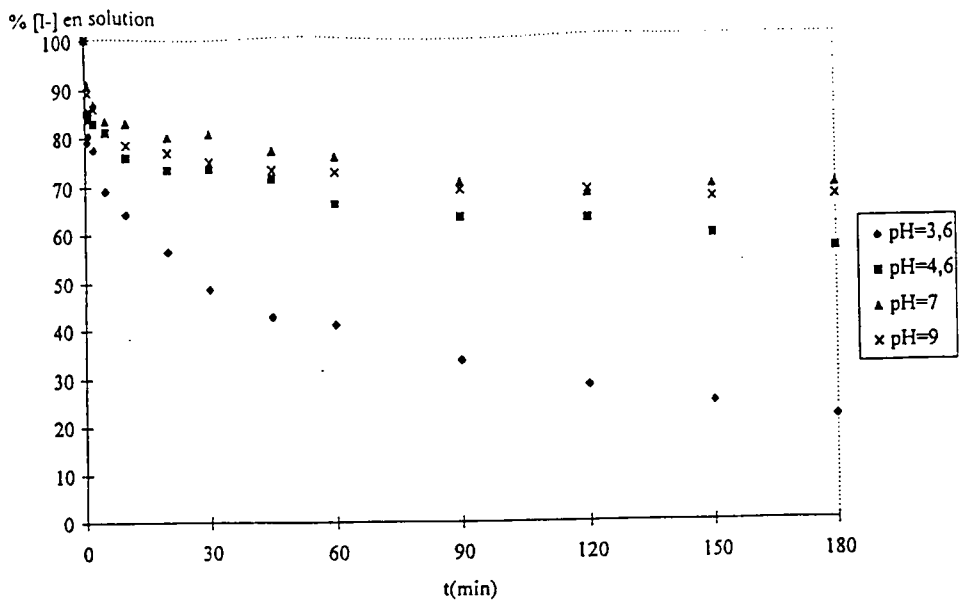


Figure 1 : Influence du pH

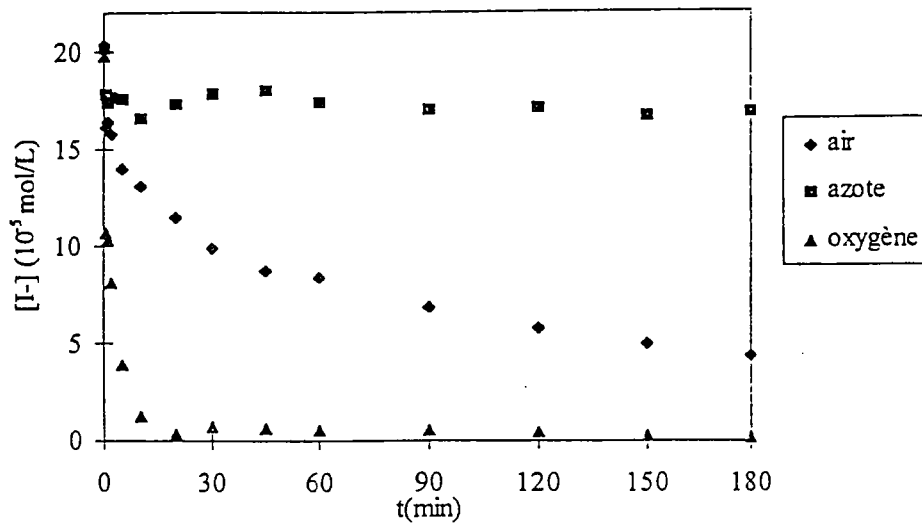


Figure 2 : Influence de l'atmosphère gazeuse

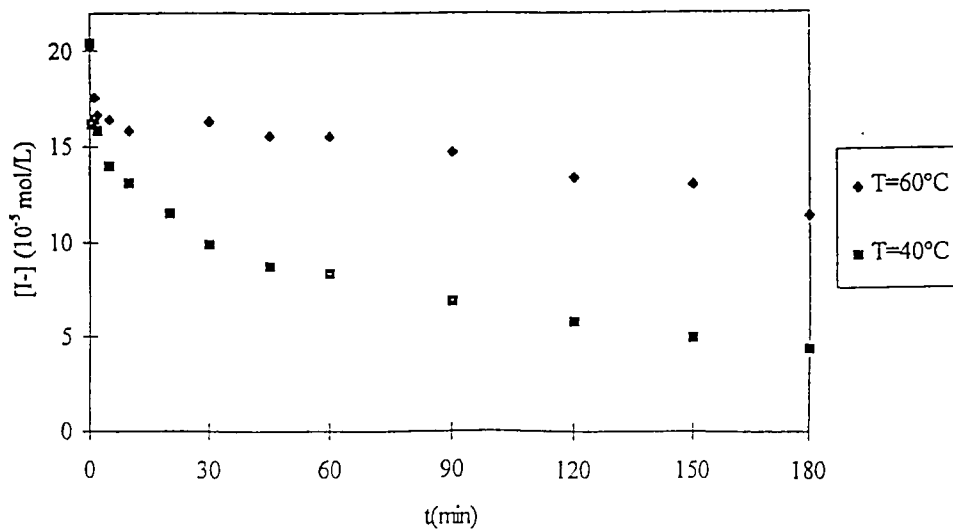


Figure 3 : Influence de la température

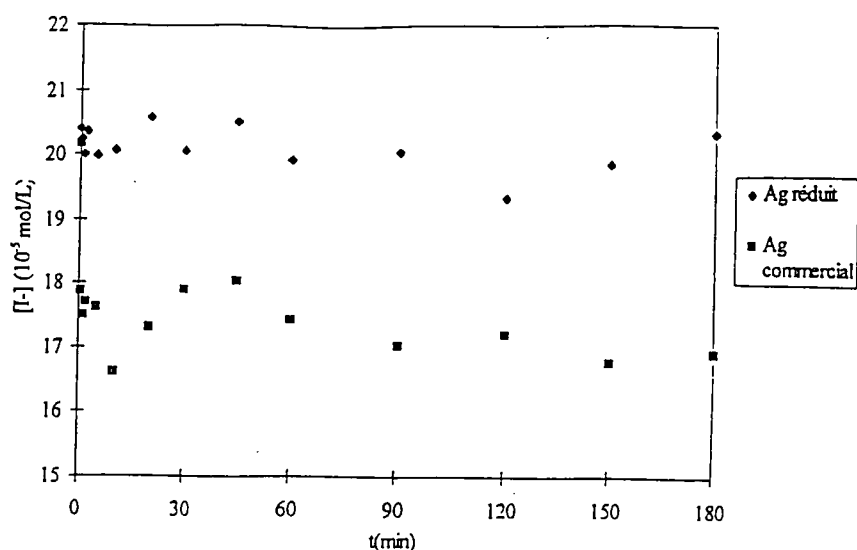


Figure 4 : Influence de l'état initial des particules d'argent

Le rôle de l'oxygène est confirmé dans les essais réalisés à différentes températures. En effet, l'augmentation de la température se traduit par une diminution de la cinétique de la réaction. Ceci ne peut être justifié que si un des réactifs de la transformation est tel que sa concentration diminue en fonction de la température. Pour les conditions opératoires étudiées, les concentrations d'iodure et d'argent étant maintenues constantes, seule celle de l'oxygène dissous peut diminuer en fonction de la température, la constante de Henry étant une fonction croissante de la température. Enfin, pour rendre compte de l'étape initiale de piégeage des ions iodures, nous avons réalisé à pH = 3,6 deux essais en présence d'une phase gazeuse ne contenant pas d'oxygène. Le premier essai est effectué avec les particules d'argent commerciales alors que dans le deuxième essai les particules commerciales sont réduites à 200°C avant leur introduction dans le réacteur. En présence des particules d'argent réduites, l'étape initiale disparaît et on n'observe aucune interaction durant toute la durée de l'essai (figure 4).

En définitive, les ions iodures n'agissent pas directement sur les particules d'argent et une étape d'oxydation des particules d'argent s'avère nécessaire. La modélisation développée ci-après va s'appuyer sur ces observations.

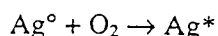
III 2 - Modélisation de l'interaction iodure-argent

Suite aux essais réalisés et compte tenu des données thermodynamiques relatives à l'oxydation des particules d'argent en milieu acide et basique, nous proposons pour représenter la cinétique de l'interaction entre les ions iodures et les particules d'argent, deux étapes réactionnelles indépendantes, à savoir :

- une oxydation de l'argent métallique en une forme oxydée Ag*
- une réaction entre I⁻ et Ag*

Pour justifier la décroissance rapide d'iodure lors de l'introduction des particules d'argent, nous admettrons que les particules d'argent commerciales sont recouvertes d'un oxyde d'argent immédiatement disponible pour réagir avec les ions iodures pour former Ag I en surface.

L'étape d'oxydation de stoechiométrie :

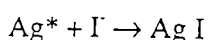


admet pour loi de vitesse :

$$v_1 = k'[\text{O}_2][\text{Ag}^\circ] = K = Ct \quad (1)$$

$$(\text{à } T \text{ et } P_{\text{O}_2} \text{ fixés et } [\text{Ag}^\circ] \gg [\text{I}^-]_0)$$

L'étape d'oxydo-réduction de stoechiométrie :



admet pour loi de vitesse :

$$v_2 = k[\text{Ag}^*][\text{I}^-] \quad (2)$$

Les bilans de matière des espèces réactives I⁻ et Ag* évoluant en système fermé s'écrivent respectivement :

$$\text{bilan de Ag}^* : \frac{d[\text{Ag}^*]}{dt} = K - k[\text{Ag}^*][\text{I}^-] \quad (3)$$

$$\text{bilan de I}^- : \frac{d[\text{I}^-]}{dt} = -k[\text{Ag}^*][\text{I}^-] \quad (4)$$

avec comme conditions initiales :

$$[\text{I}^-] = [\text{I}^-]_0 \quad (5)$$

$$[\text{Ag}^*]_0 = [\text{A}_0] \quad (6)$$

La concentration $[\text{I}^-]_0$ est une donnée ; en revanche $[\text{A}_0]$ est une inconnue. A partir des courbes donnant $[\text{I}^-]$ en fonction du temps, on peut chercher par optimisation les trois paramètres K , $[\text{A}_0]$ et k permettant de représenter au mieux les résultats expérimentaux. Pour toutes les expériences réalisées, la représentation par le modèle cinétique envisagé est globalement satisfaisante. A titre d'exemple, nous portons sur la figure 5 les courbes calculées et les points expérimentaux pour un essai à pH = 3,6, à T = 40°C et sous une atmosphère d'air. Les paramètres obtenus par optimisation montrent des dépendances physiques par rapport au pH, à la pression partielle d'oxygène et à la température qui conditionnent l'interaction iodure-argent. Ainsi quel que soit le pH, on observe pour K et $[\text{A}_0]$ des variations linéaires des paramètres en fonction de la pression partielle en oxygène de la phase gazeuse (Figure 6). De même, la constante de vitesse de la réaction augmente avec la température selon une loi d'Arrhénius avec une énergie d'activation voisine de 31,8 kJ/mole, valeur conforme pour une réaction en phase liquide.

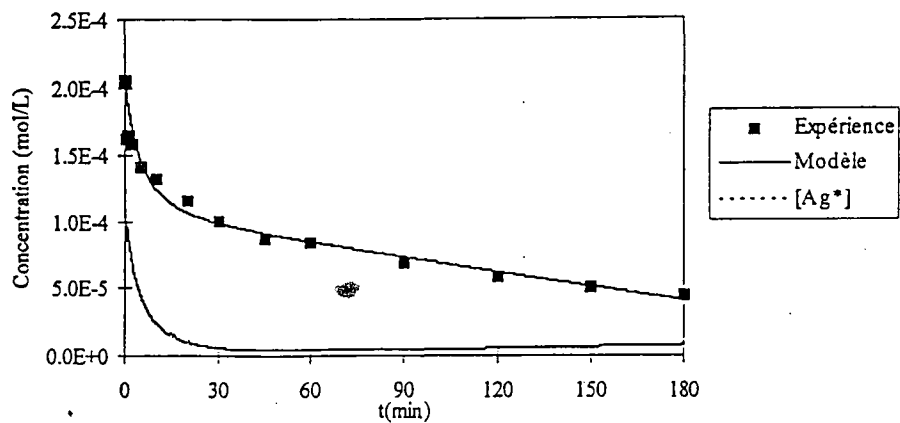


Figure 5 : Comparaison entre courbes calculées et valeurs expérimentales

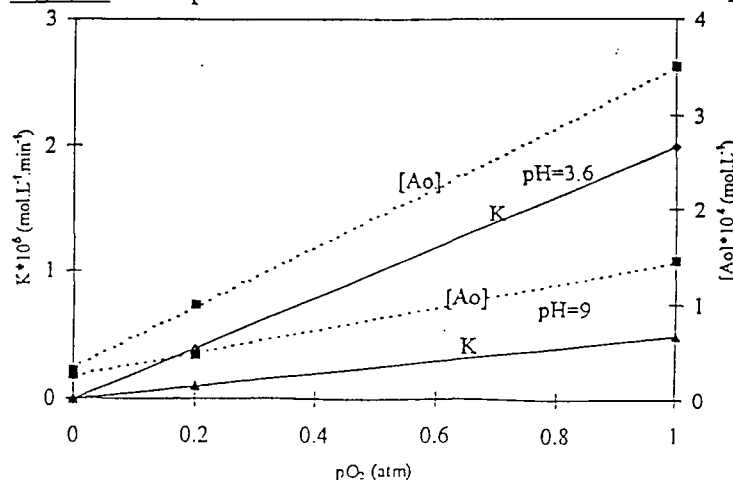


Figure 6 : Variation des paramètres du modèle avec la pression partielle en oxygène

IV - ETUDE DES INTERACTIONS ENTRE L'IODE MOLECULAIRE ET LES PARTICULES D'ARGENT

IV 1 - Résultats expérimentaux

Les figures 7 et 8 représentent respectivement les influences de l'atmosphère gazeuse et de la température. Pour les conditions opératoires choisies, la cinétique de la réaction semble indépendante à la fois de l'atmosphère gazeuse et de la température. La variation de la concentration d'iode est trop rapide pour pouvoir effectuer un nombre suffisant de prélèvements permettant de discerner une influence des paramètres étudiés.

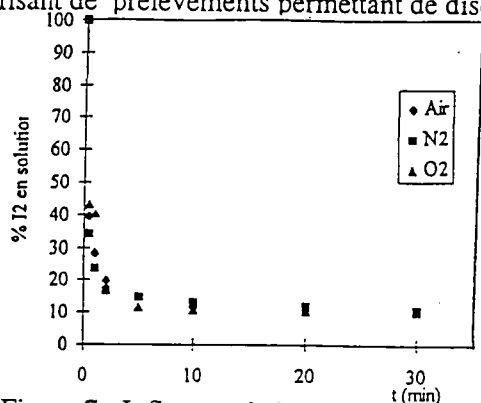


Figure 7 : Influence de l'atmosphère gazeuse

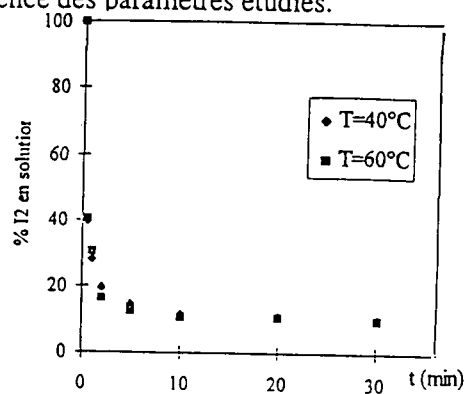


Figure 8 : Influence de la température

IV 2 - Modélisation de l'interaction iode moléculaire-argent

La nature de l'atmosphère gazeuse n'ayant aucune incidence sur la consommation d'iode, l'interaction entre l'iode moléculaire et l'argent ne nécessite pas d'étape préalable d'oxydation. On admet que la réaction obéit à la stœchiométrie unique :



et on suppose que la cinétique de la réaction est du n° ordre par rapport à la concentration en I_2 .

$$v = k[\text{I}_2]^n \quad (8)$$

La valeur de l'ordre n représentant au mieux les résultats expérimentaux est voisine de 2. Il s'agit là d'une conclusion partielle. Il reste en effet à confirmer l'indépendance de la constante de vitesse en fonction de la température ce qui nécessite d'approfondir l'étude de la cinétique de la réaction en augmentant le nombre de prélèvements ou en réduisant la vitesse de la réaction.

IV - CONCLUSIONS

L'interaction entre l'ion iodure et les particules d'argent dépend de nombreux paramètres qui conditionnent en fait l'état d'oxydation des particules d'argent. La réaction nécessite en effet une étape préliminaire d'oxydation qui dépend de la teneur en oxygène dissous du pH et de la température. Une meilleure connaissance de cette étape d'oxydation en phase gazeuse et en phase liquide semble désormais indispensable pour préciser au mieux les interactions entre les ions iodures et l'argent métallique.

L'interaction entre l'iode moléculaire et les particules d'argent ne nécessite pas d'étape préliminaire d'oxydation. L'étude de l'influence de la température mériterait d'être approfondie pour confirmer l'insensibilité apparente de l'interaction à ce paramètre.

Rappelons enfin que toutes ces études ont été conduites en l'absence de rayonnement. Les rayonnements ionisants pouvant engendrer des radicaux et donc diverses molécules oxydantes, leur influence sur l'état d'oxydation des particules d'argent devra être prise en compte pour représenter correctement l'ensemble des interactions entre les composés iodés et les particules d'argent lors d'un hypothétique accident grave sur un REP.

Caractérisation physico-chimique des aérosols émis par la vaporisation des barres de contrôle d'un REP

B.Rabu, C.Pagano, M.Tourasse

CEA/DRN/DEC/SECC, CEA Grenoble, 17 av. des Martyrs, 38054 Grenoble Cedex 9

L.Gros d'Aillon, A. Boucenna

CEA/DRN/DTP/SETEX, CEA Grenoble, 17 av. des Martyrs, 38054 Grenoble Cedex 9

D. Boulaud

IPSN/DPEA/SERAC, CEA Saclay, Bât.389, 91191 Gif-sur-Yvette

R.Dubourg

IPSN/DRS/SEMAR, CEA Cadarache, 13108 St Paul lez Durance

Introduction

Les réacteurs à eau pressurisée (REP) 900 MWe contiennent environ 2 tonnes de barres de contrôle en alliage AIC (Ag 80%- In 15%- Cd 5%). En cas d'accident, les aérosols émis par la vaporisation de ces barres conditionnent notamment l'évolution des produits de fission relâchés, par exemple l'iode ou le tellure. L'expérience EMAIC doit caractériser les aérosols (espèce, débit, granulométrie) émis par l'AIC lors de la dégradation du cœur. Le programme est financé par IPSN et EDF et réalisé au CEA Grenoble. Les résultats permettront de modéliser la source d'aérosols due à la vaporisation de l'AIC pour l'inclure dans le système de codes d'accident grave ASTEC.

Le dispositif expérimental

L'installation EMAIC est principalement constituée d'un four à gradient vertical de température (de 750°C à 1750°C max. sur 1.4m) avec une zone isotherme (1750°C max. sur 0.4m) dans lequel est installé un simulateur d'assemblage avec sa barre de contrôle introduite à la vitesse de dénoyage du cœur, au milieu de 8 tubes en céramique simulant les crayons combustibles. L'expérience est conduite à basse pression (<0.6 MPa). Les aérosols émis sont entraînés dans 6 branches de mesure à ouverture séquentielle munies de filtres à lits de billes et d'impacteurs. Les analyses post-test consistent en des pesées (répartition granulométrique) et des analyses chimiques après mise en solution des aérosols.

Résultats

Le programme est actuellement en cours, 6 essais ont été réalisés dont 2 essais de qualification. Les paramètres étudiés sont l'**atmosphère** (nature: H₂O pure ou mélange H₂O - H₂, débit) et le **gradient de température** dans le four. Nous présenterons les résultats obtenus sur l'essai EMAIC A (1450°C- H₂O : 0.2 g/s- H₂ : 0.004 g/s) ainsi que des comparaisons avec les tests suivants. La concentration des aérosols dans le gaz vecteur atteint des valeurs supérieures à 80 g/m³. La masse d'aérosols déposés sur les filtres croît avec la température de la barre de contrôle ; les aérosols sont retenus préférentiellement par les lits de grosses billes (gros aérosols). Les impacteurs complètent et précisent les informations fournies par les filtres: la majorité des aérosols est de grosse taille (>10μm), la composition chimique des aérosols ne varie pas avec leur taille. L'espèce majoritaire émise est le cadmium suivie de l'indium puis de l'argent. La fraction d'argent et d'indium augmente avec le temps. L'essai EMAIC B est réalisé à 1750°C sous la même atmosphère que EMAIC A ; l'essai EMAIC C est réalisé à 1650°C sous vapeur d'eau pure (0.2 g/s). L'analyse des espèces émises pendant ces essais est en cours.

Conclusion- Perspectives

L'expérience EMAIC a permis d'établir une forte concentration d'aérosols majoritairement de grande taille, l'homogénéité de la composition chimique des aérosols avec la taille. EMAIC présente l'avantage d'être spécifique (AIC seul) et à grande échelle donc représentative du cas réacteur. Le premier objectif du programme concerne les émissions d'aérosols ; un objectif secondaire est l'analyse de la dégradation de la barre en particulier la relocalisation des coulures en partie froide et les interactions avec les crayons périphériques.

INTRODUCTION

Lors d'un éventuel accident sur un réacteur de puissance, le risque majeur consiste en la dissémination de produits radioactifs dans l'environnement. Depuis l'origine, ce risque est limité par l'utilisation de trois barrières entre le combustible, les produits de fission et l'extérieur : la gaine du crayon combustible, le circuit primaire, et l'enceinte de confinement qui devaient suffire à maintenir le risque dans des limites acceptables (la fusion du cœur n'était pas envisagée). Les accidents de TMI 2 et plus récemment de Tchernobyl ont incité les autorités de sûreté à inclure ce risque dans leurs analyses, à élaborer des programmes d'étude correspondants, et à imposer la prise en compte des accidents graves dans la conception des nouveaux réacteurs.

La fusion d'un cœur engendre un magma baptisé « corium » dont la puissance volumique, dissipée par les produits de fission, reste importante (1 MW/m³) et rend son refroidissement à court terme délicat. Cependant, de nombreux produits de fission ont une tension de vapeur élevée aux températures considérées, peu d'interactions physico-chimiques avec les constituants du corium et s'échapperont vers des zones froides diminuant d'autant sa puissance volumique.

Par ailleurs, les aérosols émis par la vaporisation des barres de contrôle d'AIC (Argent 80%, Indium 15%, Cadmium 5% en masse) conditionnent l'évolution physico-chimique des produits de fission relâchés selon leur nature et leur surface spécifique (notamment l'iode), et influent sur les caractéristiques d'un éventuel rejet à l'atmosphère. L'AIC contribue aussi à accélérer la dégradation du cœur. Un REP 900 contient 2000 kg d'alliage AIC.

OBJECTIF

Le programme EMAIC (Emission d'AIC) permet en priorité de caractériser la source d'aérosols (nature, débit, granulométrie) émise par les barres de contrôle après rupture, lors de l'éventuelle fusion du cœur d'un REP pendant le dénoyage, dans des conditions géométriques et thermohydrauliques représentatives. Un objectif secondaire est l'étude de l'écoulement de l'alliage hors de la barre, en particulier la relocalisation en partie froide. Un objectif futur pourra être l'analyse du mode de rupture de la barre et des interactions avec les crayons périphériques.

Les résultats permettront de modéliser la source d'aérosols due à la vaporisation de l'AIC pour l'inclure dans un système intégré de codes d'accidents graves (ASTEC) et de fournir les caractéristiques de la source d'AIC à prendre en compte pour la réaction avec les

produits de fission pendant leur relâchement (essais VERCORS [1]).

Les conditions d'essai ont été évaluées selon divers scénarii par le code VULCAIN, ce qui a permis de dimensionner le dispositif et d'établir la matrice prévisionnelle des essais.

L'INSTALLATION EMAIC

L'installation EMAIC est principalement constituée d'un four à gradient vertical de température (750 =>1750°C maxi sur 1.4 m) et d'une zone isotherme (1750°C maxi sur 0.45 m) dans lequel est installé un simulateur d'assemblage avec sa barre de contrôle introduite à une vitesse équivalente à celle du dénoyage du cœur. Des gaz porteurs sont injectés à la base du four (vapeur d'eau et hydrogène) à des vitesses massiques et des conditions thermodynamiques correspondant aux conditions d'accident réacteur à basse pression (<0.6 MPa).

Le simulateur représente une maille 3*3 d'un assemblage REP à échelle 1 en largeur et 1/2 en hauteur avec la barre de contrôle tronquée au centre. Dans un premier temps, les crayons combustibles sont simulés par des tubes en céramique.

La barre de contrôle est constituée d'un cœur en alliage absorbant d'AIC gainé par de l'acier inoxydable et coulissant dans un tube-guide en zircaloy (alliage de zirconium et d'étain à 2%) (Fig 1). Quatre grilles d'espacement sont fixées sur le tube -guide.

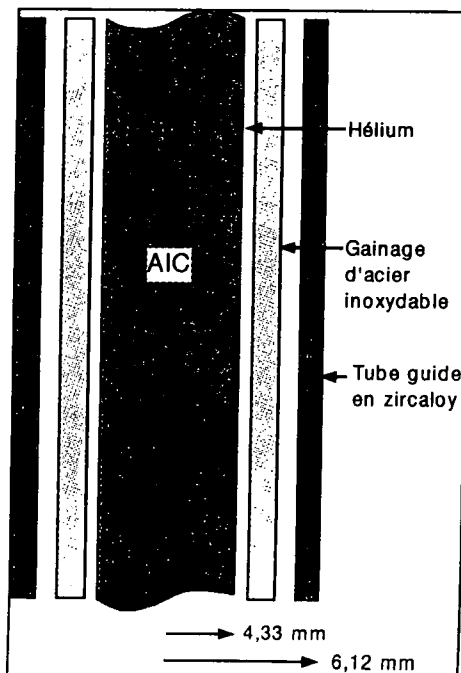


Figure 1 : Barre de contrôle AIC d'un REP

Les aérosols produits par la fusion de la barre de contrôle sont entraînés par les gaz vecteurs dans six branches de mesure (Fig 2) à ouvertures séquentielles munies de 5 filtres et 3 impacteurs qui permettent par une analyse post-essai de définir cinétique d'émission, masse, chimie, et granulométrie.

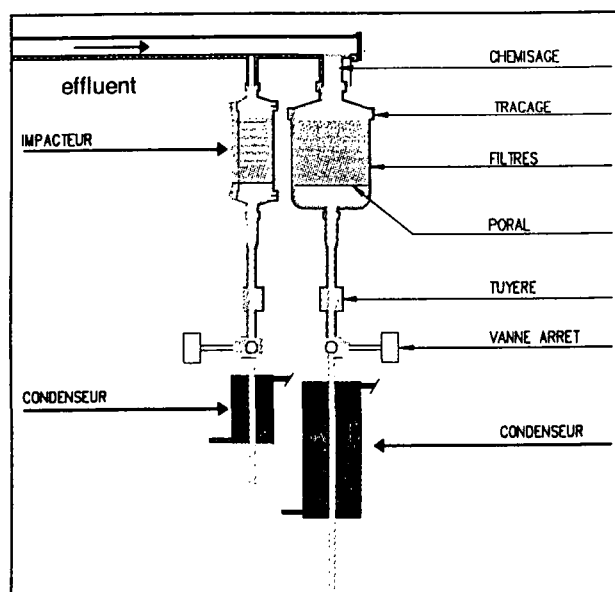


Figure 2 : Ligne de mesure type

Un impacteur élémentaire récupère sur une cible face à une tuyère d'accélération les particules de taille supérieure au diamètre de coupure défini par le nombre de Stokes (rapport des forces d'inertie à celle d'entraînement) dépendant des conditions de l'écoulement, un montage en cascade classe les particules par taille sur le débit utile par un montage en parallèle. Les **impacteurs** sont constitués de 6 cibles, 6 étages, 2 lits de billes et un filtre Poral [2, 3].

Les **filtres** sont constitués de lits de billes de diamètre décroissant en série et conduisent à un bilan de masse sur la séquence d'ouverture, et au contrôle du bilan de l'impacteur.

En fonction de la phase du scénario, les gaz vecteurs sont dirigés vers une branche de mesure particulière par un distributeur rotatif connectant la sortie du four à l'entrée de la branche, et par l'ouverture de sa vanne d'isolement. A l'intérieur de la fenêtre temporelle d'utilisation d'une branche, l'écoulement passe systématiquement par son filtre pour récupérer tous les aérosols, et une fraction du débit est prélevée dans un impacteur pendant une courte période adaptée à sa capacité. Dans les filtres et impacteurs, les gaz vecteurs transitent à la pression de la section d'essai, avant d'être détendus à la pression atmosphérique par des tuyères soniques étalonnées.

Un superviseur associé à un automate gère l'installation et enchaîne les diverses séquences d'un essai de manière automatique, fiable, répétitive et traçable.

Un système d'acquisition adapté aux besoins spécifiques en vitesse et précision stocke les données après traitement. Il effectue le suivi en temps réel de l'historique des grandeurs prépondérantes, et un post traitement rapide en fin d'essai.

MODE OPERATOIRE

La difficulté de réalisation des essais EMAIC liée à l'utilisation de hautes températures sur de grands volumes en milieu fortement oxydant et à prise de mesures délicates a conduit à la mise en place d'un système d'assurance qualité pour garantir le bon fonctionnement de l'installation et la traçabilité des résultats.

Par ailleurs, la préparation d'un essai dure plusieurs mois, et l'essai lui-même une heure avec peu de possibilités d'intervention, et l'autorisation de réalisation de l'essai réel n'est donnée qu'après l'analyse des résultats et validation de critères d'acceptation d'un essai à blanc simulant au mieux l'essai réel sans mettre l'intégrité du système en péril.

Une matrice d'essai prévisionnelle a été élaborée au début du projet, mais chaque essai est défini en fonction de l'acquis du moment. Les paramètres portent sur le gradient axial de température du four (500 à 700°C/m), sa température maximale (1450°C ou 1750°C), le débit et la nature des gaz vecteurs (de 0 à 2 g/s de vapeur d'eau et de 0 à 0.5 g/s d'hydrogène) et la vitesse d'introduction de la barre de contrôle (6 à 100 mm/mn).

Les opérations principales au cours d'un essai consistent à établir les conditions initiales (pressions, températures, débits selon les spécifications) qui devront rester stables pendant tout l'essai, à introduire la barre de contrôle dans le four à la vitesse désirée, et pendant sa montée (de l'ordre d'une heure), à dériver séquentiellement selon des fenêtres temporelles précises les effluents sortant du four sur les circuits de mesures comportant des filtres et des impacteurs.

En fin d'essai, un traitement préliminaire des données est effectué pour le contrôle des critères de validation et le déclenchement de la suite de l'analyse qui comprend plusieurs phases :

- le traitement complet de toutes les données pour définir l'état du système à chaque instant avec les

incertitudes associées contrôlées par divers recouvrements et bilans,

- l'analyse des filtres et impacteurs pour obtenir l'évolution du débit et de la granulométrie des aérosols en masse puis par espèces chimiques, ainsi que l'analyse des dépôts dans diverses autres parties du circuit (lignes, haut du four)
- l'observation du simulateur d'assemblage après démontage pour évaluer l'importance de la fusion de la barre de contrôle et les éventuelles coulures et relocalisation en zone froide.

RESULTATS

Le programme est en cours. Actuellement, deux pré-essais (EMAIC 1 et 2) et trois essais (EMAIC A, B, C) ont été réalisés ; les résultats présentés sont ceux de l'essai EMAIC A. Cet essai est caractérisé par une température du four variant axialement de 750°C en partie basse à 1450°C en partie haute, avec un débit de gaz vecteurs de 200 mg/s de vapeur d'eau et 4 mg/s d'hydrogène à une pression de 3 bars et une température d'entrée de 250°C, ainsi qu'une vitesse de montée de la barre de contrôle de 20 mm/mn.

Toutes les mesures effectuées sur l'installation ont été traitées pour définir avec précision l'historique des variables principales pour modélisation ultérieure, profil de température de la section d'essai, débit des gaz vecteurs, pression du système, position de la barre de contrôle et séquence d'ouverture des lignes de mesures.

Des données secondaires sont aussi traitées comme la température du corps des filtres et impacteurs par rapport à celle des gaz vecteurs pour vérifier l'absence de risque de condensation de vapeurs métalliques, ainsi que les masses de vapeur d'eau condensée en bout de ligne pour qualifier les débits par bilans de masse.

Analyse de l'instrumentation

En parallèle, les filtres, les impacteurs et les chemisages des lignes de mesure ont été démontés avec précaution et emballés dans des enveloppes étanches pour éviter la perte de matière et transférés dans le laboratoire d'analyse pour subir diverses opérations. La première est la pesée des chemises, des lits de billes et du poral de chaque filtre, et des cibles et lits de billes de chaque impacteur qui, comparée à la même pesée effectuée avant l'essai, donne le gain de masse de chaque composant. Au cours de la deuxième opération, les composants sont soumis à une lixiviation dans une solution à 20% d'acide sulfurique et 5% d'acide nitrique portée à ébullition, et dans un troisième temps, des

échantillons de lixiviat sont analysés par ICP-OES, ICP-MS ou absorption atomique pour déterminer les concentrations en argent, indium, cadmium et étain. Le même type d'analyse peut être effectué sur d'autres composants de l'installation où des dépôts parasites seraient observés (haut du four, distributeur).

Toutes ces informations permettent de reconstituer la cinétique de génération d'aérosols par matériau en masse, composition et granulométrie pendant la montée de la barre de contrôle dans le four. La figure 4 montre le résultats des pesées des lits de billes des filtres pour les lignes équipées d'impacteur. Il faut remarquer que la masse d'aérosols récupérée, croît avec le numéro du filtre donc avec la température de la barre de contrôle et la durée de l'essai ; la concentration des aérosols dans les gaz vecteurs est croissante, la valeur moyenne est de l'ordre de 100 g/m³. Les aérosols sont retenus préférentiellement par les premiers lits de grosses billes, ils sont donc de gros diamètres.

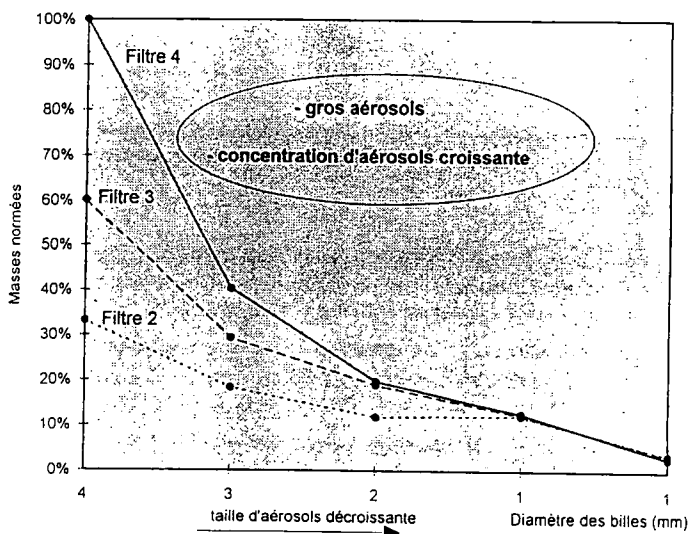


Fig 4 : Masses déposées en fonction du diamètre des billes

La figure 5 présente la composition chimique superposée aux masses relatives sur les différents filtres. La concentration d'aérosols croissante est mise en évidence ainsi que l'augmentation des espèces Ag et In dans les aérosols. Parallèlement, la quantité de cadmium décroît ; l'étain est présent en faible quantité sur tous les filtres, la fraction la plus importante est observée sur le filtre 1 (début d'essai).

La figure 6 présente les résultats obtenus sur les cibles de l'impacteur 2 utilisé lorsque la barre de contrôle a atteint le palier à température maximale. Les diamètres de coupure des différents étages de l'impacteur s'échelonnent de 15 à 0.5 microns, et le filtre de poral descend jusqu'à 0.05 microns. Cette figure montre que la masse d'aérosols recueillie décroît lorsque le diamètre de coupure diminue (étage croissant) ce qui confirme

que les aérosols sont de forte taille. L'espèce majoritaire est le cadmium (très volatil), suivi de l'indium, l'argent et très peu d'étain. On note l'homogénéité de la composition chimique sur les différents étages de l'impacteur : il n'y a pas de ségrégation des espèces en fonction de la taille.

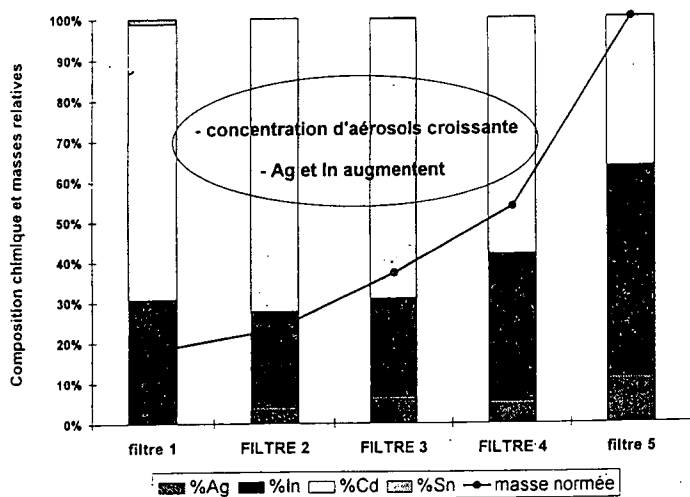


Figure 5 : Composition chimique des aérosols déposés dans les filtres

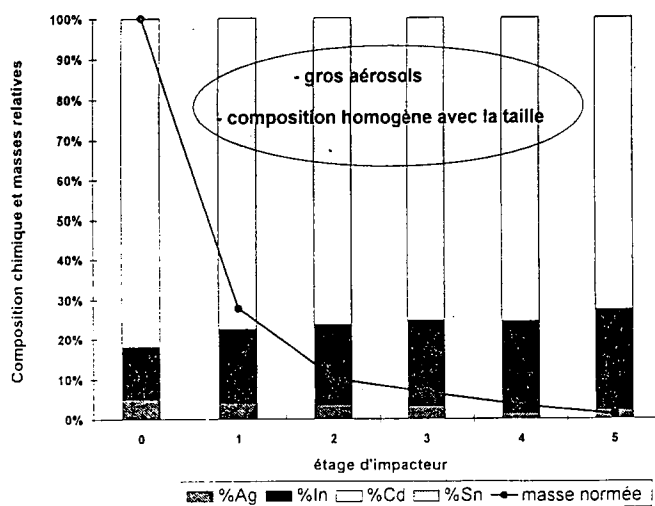


Figure 6 : Composition chimique des aérosols déposés sur un impacteur

L'essai EMAIC B se distingue par une température de 1750°C en haut du four. Les fractions d'aérosols relâchées sont assez proches de EMAIC A ; il faut y voir probablement l'effet d'une dégradation significative conduisant à une relocalisation rapide en partie froide (donc non disponible au relâchement) d'une fraction importante de la barre. Les analyses chimiques fines sont en cours.

L'essai EMAIC C a été réalisé en atmosphère de vapeur d'eau pure, avec une température en haut du four de 1650°C. Un relâchement plus important d'indium était attendu compte tenu de la volatilité des formes oxyde et hydroxyde supposées se former en ambiance oxydante. Ceci n'a pas été observé car en atmosphère vapeur d'eau pure, la forme non volatile In_2O_3 a dû se former.

Un prochain essai (EMAIC E*) va être réalisé en atmosphère plus réductrice pour observer un effet de la chimie en phase gazeuse.

Dégradation de la barre d'AIC

Après démontage, la section d'essai fait l'objet d'observations variées pour définir le type de dégradation de la barre de contrôle (Fig. 7). Une première analyse de l'essai EMAIC A montre que les grilles en zircaloy ont été intégralement détruites par oxydation, que sur les 2147 mm de barre de contrôle, les 350 premiers mm sont restés intacts, sur les 1200 mm suivants le tube-guide est fortement oxydé mais sans perte d'AIC sauf sur les 200 derniers mm où la gaine est vide, et le reste de la barre est totalement détruit.

Une partie importante des matériaux dégradés n'a pas quitté la section d'essai et se retrouve sous des formes diverses. Des morceaux de tube-guide fortement endommagés en partie supérieure sont restés en place, des coulures d'AIC se sont bloquées dans les grilles avant leur destruction sous forme d'amas centimétriques, et de nombreux filaments très concentrés en argent se sont relocalisés en bas de la section d'essai. De plus, dans la zone de destruction de la barre de contrôle, les crayons périphériques ont été fortement agressés (Fig. 7).

La dégradation est assez semblable dans les essais EMAIC B et EMAIC C.

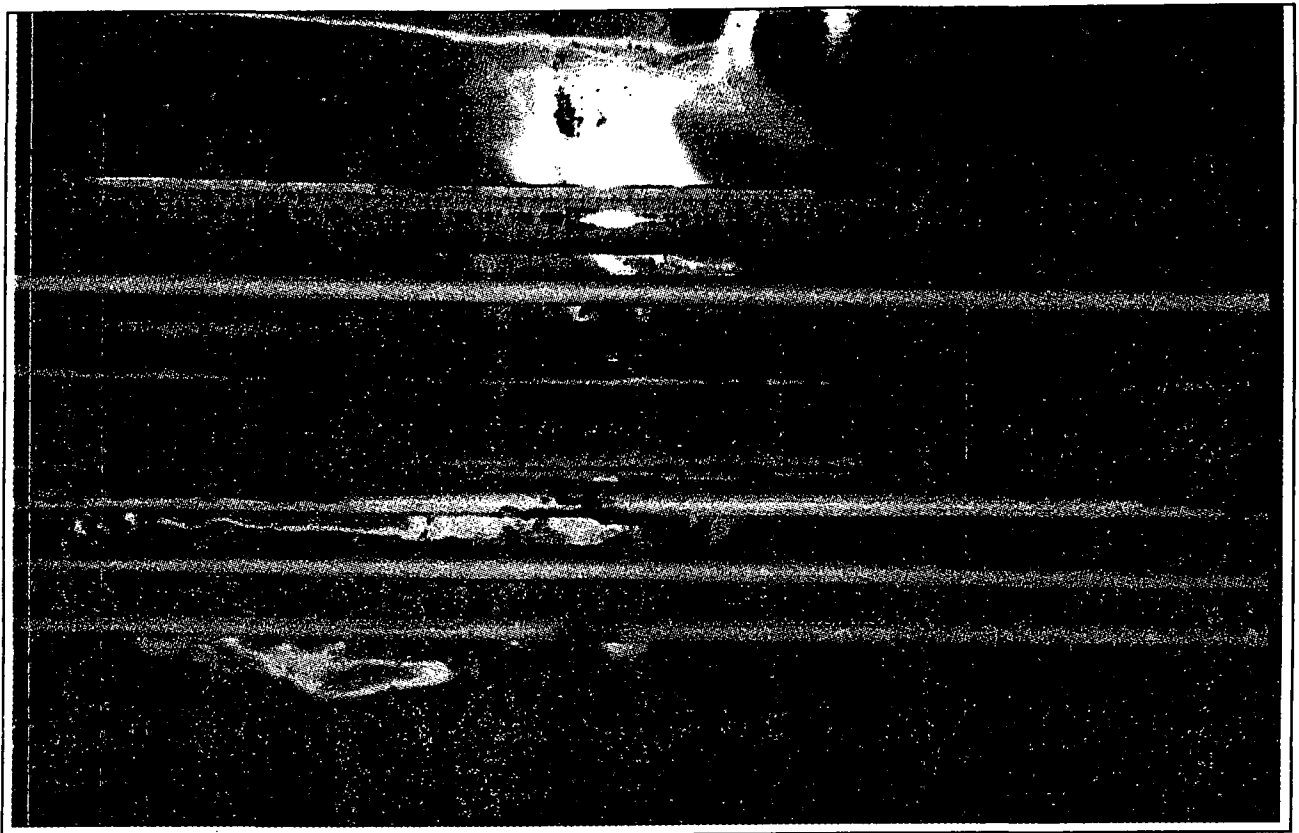


Figure 7 : Section d'essai après démontage

CONCLUSION

De nombreuses expériences incluant des études d'émission d'AIC ont été conduites dans le monde ces dernières années, mais les essais à échelle trop réduite (Sacha, Winfrith...) ne sont pas extrapolables aux cas réacteurs, et les expériences à grande échelle (PBF, PHEBUS..) ne sont pas suffisamment spécifiques du fait du grand nombre d'espèces mises en jeu [5,6]. Les essais EMAIC centrés sur ce sujet fourniront les informations nécessaires pour une modélisation utilisable dans les calculs réacteurs, d'une part sur les

émissions d'aérosols, et d'autre part sur les risques de dégradation des crayons périphériques et sur le bouchage des sous-canaux produits par la fusion des barres de contrôle. Les essais actuels sont ciblés sur les émissions d'aérosols, mais des essais complémentaires seront probablement programmés pour étudier plus spécifiquement la dégradation de la barre de contrôle, celle des tubes guide en zircaloy, ainsi que le comportement particulier de l'explosion de la barre sous la pression des gaz internes à haute température qui conduit à une dispersion mécanique de l'AIC dans l'assemblage [6].

REFERENCES

- [1] *Programme Vercors*, M. Tourasse et al
Rapport scientifique DRN 96, p.104
- [2] *Aerosol measurement : Principles, techniques and applications*
K. Klaus Willeke , P.A . Baron
Van Nostrand Reinhold
- [3] *Granulométrie des particules en mouvement et des aérosols*
A. Kleitz, D. Boulaud
Techniques de l'ingénieur, R2 360.

- [4] *Le programme EMAIC*
B. Rabu, L. Gros d'Aillon
Rapport scientifique DRN 97, p. 107
- [5] *SIC control rod behaviour in severe reactor accidents nuclear technology*
D.A Petti
Nuclear Technology, vol. 84, p 128, 1989
- [6] *Relâchement des éléments des barres de commande : une revue bibliographique*
R. Dubourg, Note technique SEMAR 97/73

Etude théorique de la formation de la bruine par coalescence

F. PIGEONNEAU* et F. FEUILLEBOIS
PMMH (Physique Thermique) ESPCI
10, rue Vauquelin 75231 PARIS Cedex 05

14^{ème} Congrès Français sur les Aérosols, Paris 8 et 9 décembre 1998

Résumé

L'évolution granulométrique d'un nuage de gouttes sous l'effet de la coalescence est décrite par une équation cinétique de type Smoluchowski. La grandeur fondamentale dans cette équation est le noyau de collision qui traduit les collisions entre gouttes. La nouvelle expression du noyau de collision proposée ici modélise les effets de la turbulence et de la sédimentation. L'évolution granulométrique est calculée numériquement en utilisant une discrétisation logarithmique du spectre des gouttes. Les résultats montrent que l'élargissement de ce spectre dépend fortement de l'agitation turbulente. Ces résultats corroborent les observations *in situ*.

Abstract

The size evolution of droplets in a cloud is described by a Smoluchowski like kinetic equation. The main quantity in this equation is the collection kernel, expressing the collision between drops. We propose a novel expression of the collection kernel modeling the influence of turbulence and sedimentation. The size evolution is calculated numerically using a logarithmic partition of the drop spectrum. The results show a strong dependence of the broadening of this spectrum on turbulence. These results are in agreement with previous *in situ* observations.

1 Introduction

La bruine est caractérisée par une polydispersité importante et des diamètres moyens de l'ordre de 200 μm . Elle apparaît généralement dans des nuages atmosphériques de type stratus. Le passage d'un avion dans un nuage de bruine surfondue peut avoir de lourdes conséquences. En effet, la glace formée suite à l'impact de grosses gouttes peut apparaître à l'aval des systèmes de dégivrage. Il s'ensuit une dégradation des caractéristiques aérodynamiques, ce qui peut conduire à des décrochages imprévisibles [2].

Le mode de formation de la bruine reste un phénomène mal connu. La présence de nuages de bruine surfondue reste donc difficile à prédire. Pobanz *et al* [6] s'appuyant sur des campagnes de mesures indiquent que la formation de la bruine est associée à de forts cisaillements de vent verticaux. Mais cette correspondance n'a pas été modélisée. Marwitz [2] indique l'absence de cristaux solides de sorte que les gouttes ne peuvent pas être formées suite au processus de Bergeron. La condensation ne peut pas être non plus l'effet physique responsable car elle conduit plutôt à un rétrécissement du spectre de gouttes. En effet, les taux de condensation diminuent avec l'augmentation des rayons [1]. Par contre, la coalescence suite aux collisions de gouttes semble être un des mécanismes pouvant conduire à l'élargissement des spectres de gouttes.

La quantité essentielle pour l'évolution du spectre de tailles de gouttes est alors le noyau de collision qui décrit les collisions entre gouttes. Cette quantité doit être déterminée en prenant en compte différents effets physiques. Dans les applications atmosphériques, on ne considère généralement que les collisions par différence des vitesses de sédimentation [7]. Et cependant, bien que le niveau de turbulence dans les nuages de type stratus soit assez faible, la turbulence peut avoir un effet important sur les collisions, comme nous allons le voir. Nous avons récemment déterminé une nouvelle expression du noyau de collision permettant de prendre en compte à la fois la sédimentation et la turbulence [3][5]. Nous présentons ici une solution numérique de l'équation décrivant l'évolution granulométrique d'un nuage. Cette équation est rappelée dans le §2. Le noyau de collision est présenté dans le §3. La méthode numérique est ensuite décrite schématiquement dans le §4. Les résultats sur la formation de la bruine sont alors exposés dans le §5. Enfin la conclusion est au §6.

*DRN/SEMT/TTMF, bat. 454, C.E.A.-SACLAY 91191 GIF sur YVETTE Cedex

2 Evolution granulométrique d'un nuage de gouttes

La turbulence est supposée homogène et isotrope. Les inhomogénéités qui peuvent apparaître dans la phase dispersée ne sont pas considérées. Comme indiqué dans l'introduction, la condensation des gouttes est ignorée. On suppose aussi que les gouttes n'éclatent pas. L'évolution granulométrique peut être décrite à l'aide d'une équation cinétique de type Smoluchowski:

$$\frac{\partial f(v, t)}{\partial t} = \frac{1}{2} \int_0^v f(v', t) f(v - v', t) J(v', v - v') dv' - f(v, t) \int_0^\infty J(v, v') f(v', t) dv', \quad (1)$$

où $f(v, t)$ est la fonction de distribution en taille. v est le volume d'une goutte dont le rayon sera noté r . $J(v, v')$ est le noyau de collision.

3 Noyau de collision

On supposera que la collision entre deux gouttes conduit toujours à leur coalescence. En d'autres termes, l'efficacité de coalescence est prise égale à l'unité. Le noyau de collision généralement utilisé dans les applications atmosphériques a la forme suivante:

$$J(v, v') = \pi (r + r')^2 \Delta V E(v, v'), \quad (2)$$

où ΔV représente la vitesse relative de chute entre les deux gouttes:

$$\Delta V = |V_s(v) - V_s(v')|. \quad (3)$$

$V_s(v)$ est la vitesse de chute d'une goutte donnée par la loi de Stokes:

$$V_s(v) = \frac{2(\rho' - \rho)r^2 g}{9\rho\nu}. \quad (4)$$

où ρ' et ρ sont les masses volumiques de la phase dispersée (eau) et du gaz (air), g l'accélération de la pesanteur et ν la viscosité cinématique de l'air. $E(v, v')$ représente l'efficacité de collision, quantité liée aux interactions hydrodynamiques entre les gouttes. Pour simplifier cette étude, $E(v, v')$ sera supposée égale à l'unité. L'introduction rigoureuse des interactions hydrodynamiques dans le cas général de gouttes en sédimentation dans un écoulement turbulent reste un important problème théorique.

La turbulence intervient aussi dans les processus de collision. Nous allons prendre en compte ici à la fois les effets de sédimentation et de turbulence. Nous partons d'une forme générale du noyau de collision qui, pour deux gouttes de rayons r_1 et r_2 et dans le cadre de l'hypothèse d'isotropie s'écrit:

$$J_{12} = \pi (r_1 + r_2)^2 \int \int \|\vec{c}_{p1} - \vec{c}_{p2}\| f_{12}(\vec{c}_{p1}, \vec{c}_{p2}) d\vec{c}_{p1} d\vec{c}_{p2}, \quad (5)$$

où f_{12} est la fonction de distribution de paire des vitesses des gouttes. Dans le cas d'une turbulence homogène et isotrope et en l'absence de gravité, il est possible de montrer que la forme générale de f_{12} est maxwellienne [3] et [5]:

$$f_{12} = A(r_1, r_2, R) e^{-\left[\frac{{}^t \vec{c}_{p1} \cdot \mathbf{B}_{p1} \cdot \vec{c}_{p1}}{2c_{p1}^2} + \frac{{}^t \vec{c}_{p2} \cdot \mathbf{B}_{p2} \cdot \vec{c}_{p2}}{2c_{p2}^2} - \frac{{}^t \vec{c}_{p1} \cdot \mathbf{B}_{p1p2} \cdot \vec{c}_{p2}}{\sqrt{c_{p1}^2 c_{p2}^2}} \right]}, \quad (6)$$

où R est la distance entre les centres des gouttes. La fonction scalaire $A(r_1, r_2, R)$ et les tenseurs \mathbf{B}_{p1} , \mathbf{B}_{p2} et \mathbf{B}_{p1p2} sont définis par:

$$A(r_1, r_2, R) = \frac{1}{\sqrt{\left(2\pi\overline{c_{p1}^2}2\pi\overline{c_{p2}^2}\right)^3 \left[1 - \zeta_{fp1}^2 \zeta_{fp2}^2 f_t^2(R)\right] \left[1 - \zeta_{fp1}^2 \zeta_{fp2}^2 g_t^2(R)\right]}}, \quad (7a)$$

$$B_{p\alpha ij} = \frac{1}{1 - \zeta_{fp1}^2 \zeta_{fp2}^2 f_t^2(R)} \frac{R_i R_j}{R^2} + \frac{1}{1 - \zeta_{fp1}^2 \zeta_{fp2}^2 g_t^2(R)} \left(\delta_{ij} - \frac{R_i R_j}{R^2} \right), \text{ avec } \alpha = 1, 2; \quad (7b)$$

$$B_{p1p2ij} = \zeta_{p1} \zeta_{p2} \left[\frac{f_t(R)}{1 - \zeta_{fp1}^2 \zeta_{fp2}^2 f_t^2(R)} \frac{R_i R_j}{R^2} + \frac{g_t(R)}{1 - \zeta_{fp1}^2 \zeta_{fp2}^2 g_t^2(R)} \left(\delta_{ij} - \frac{R_i R_j}{R^2} \right) \right]. \quad (7c)$$

$f_t(R)$ et $g_t(R)$ sont respectivement les fonctions d'autocorrélation spatiales longitudinale et transversale de l'écoulement turbulent. $\overline{c_{p1}^2}$ et $\overline{c_{p2}^2}$ sont les variances des vitesses des gouttes. ζ_{fp}^2 est le coefficient de corrélation entre les vitesses du fluide et des gouttes défini par la relation:

$$\zeta_{fp}^2 = \frac{(\overline{uc_p})^2}{\overline{u^2} \overline{c_p^2}}, \quad (8)$$

où \hat{u} est la vitesse du fluide «vue» par les gouttes. Il s'agit de la vitesse déterminée en suivant les gouttes dans leur mouvement.

Les quantités $\overline{c_p^2}$ et ζ_{fp}^2 sont calculées à partir d'une analyse de la dispersion en écoulement turbulent. Ici, nous utilisons les travaux de Wang et Stock [9] qui ont obtenu les relations suivantes :

$$\overline{c_p^2} = \frac{\overline{u^2}}{1 + S_t \frac{T_e}{T(S_t)}}, \quad (9)$$

$$\zeta_{fp}^2 = \frac{1}{1 + S_t \frac{T_e}{T(S_t)}}. \quad (10)$$

S_t est le nombre de Stokes basé sur l'échelle intégrale eulérienne, T_e :

$$S_t = \frac{2\rho l^2}{9\rho\nu T_e}. \quad (11)$$

$T(S_t)$ est l'échelle intégrale de la turbulence vue par les gouttes. Elle est fonction de l'inertie des gouttes, donc de S_t . En se basant sur des simulations numériques, Wang et Stock [9] ont proposé la relation suivante :

$$T(S_t) = T_e \left[1 - \frac{1 - \frac{T_l}{T_e}}{(1 + S_t)^{0.4(1+0.01S_t)}} \right], \quad (12)$$

où T_l est l'échelle intégrale lagrangienne. Ainsi, on constate que T varie entre T_l et T_e .

La relation (6) est valable en l'absence de gravité. Lorsque le champ de pesanteur est pris en compte, il est nécessaire de faire le changement de variables suivant dans (6):

$$\tilde{c}_{p1i} = c_{p1i} - \delta_{i3} V_{s1}, \quad (13a)$$

$$\tilde{c}_{p2i} = c_{p2i} - \delta_{i3} V_{s2}. \quad (13b)$$

La connaissance de f_{12} nous permet de faire un calcul explicite du taux de collision. Dans le cas de gouttes en sédimentation dans un écoulement turbulent, l'intégration de (5) donne le noyau de collision suivant :

$$J_{12} = (r_1 + r_2)^2 \left\{ \sqrt{2\pi} \sqrt{w^2} e^{-\frac{(V_{s2} - V_{s1})^2}{2w^2}} + \pi \frac{w^2 + (V_{s2} - V_{s1})^2}{V_{s2} - V_{s1}} \operatorname{erf} \left(\frac{V_{s2} - V_{s1}}{\sqrt{2w^2}} \right) \right\}, \quad (14)$$

où w^2 est égale à

$$w^2 = \overline{c_{p1}^2} + \overline{c_{p2}^2} - 2\sqrt{\overline{c_{p1}^2} \overline{c_{p2}^2}} \zeta_{fp1} \zeta_{fp2} f_t(r_1 + r_2). \quad (15)$$

4 Méthode numérique

Le nouveau noyau de collision (14) est alors reporté dans l'équation d'évolution (1). L'équation intégrodifférentielle ainsi obtenue doit être résolue numériquement. Dans le cadre de nos applications, la méthode numérique doit nous permettre de décrire un spectre de gouttes le plus large possible. Ainsi, l'équation (1) est discrétisée en utilisant un échantillonnage logarithmique : le spectre de gouttes est décomposé en N classes ; si v_1 est le volume de la première classe, le volume v_i de la classe i est déterminé par la relation

$$v_i = v_1 a^{i-1}. \quad (16)$$

a est la raison de cette progression géométrique. Elle est déterminée en se fixant les volumes extrêmes de notre discrétisation :

$$a = \left(\frac{v_N}{v_1} \right)^{\frac{1}{N-1}}. \quad (17)$$

Il est pratique d'utiliser la fraction volumique qui pour la classe i est définie par :

$$\alpha_i(t) = \int_{v_{i-\frac{1}{2}}}^{v_{i+\frac{1}{2}}} v f(v, t) dv, \quad (18)$$

où

$$v_{i\pm\frac{1}{2}} = \frac{v_i + v_{i\pm 1}}{2}. \quad (19)$$

Dans la détermination des α_i , il est nécessaire de se fixer v_0 et v_{N+1} . v_0 est pris égal à 0. Le volume v_{N+1} doit être choisi suffisamment grand, afin de pouvoir négliger la concentration en gouttes de volume v_{N+1} . Dans nos calculs, v_{N+1} a été déterminé en utilisant la relation (16).

Le système d'équations différentielles vérifié pour chaque α_i est obtenu par intégration de l'équation (1) entre $v_{i-\frac{1}{2}}$ et $v_{i+\frac{1}{2}}$. Les termes sources et puits sont déterminés en suivant la méthode décrite par Stankova et Zatevakhin [8]. Le système d'équations est le suivant :

$$\frac{d\alpha_i}{dt} = \sum_{j=1}^N \sum_{k=1}^N \bar{J}_{jk} \alpha_j \alpha_k B_{ijk} - \alpha_i \sum_{j=1}^N \bar{J}_{ij} \alpha_j, \quad (i = 1, \dots, N) \quad (20)$$

où \bar{J}_{ij} est égal à

$$\bar{J}_{ij} = \frac{J(v_i, v_j)}{v_j}. \quad (21)$$

Les gouttes créées par coalescence de gouttes de volumes v_j et v_k tels que la somme $v_j + v_k$ est comprise entre v_i et v_{i+1} doivent être redistribuées entre les classes i et $i+1$. Nous utilisons ici une procédure de redistribution quadratique en utilisant la fonction B_{ijk} définie à partir de polynômes de Lagrange. Ainsi, pour $v_i \leq v_j + v_k < v_{i+1}$ et pour l variant entre -1 et 1 :

$$B_{ijk+l} = \prod_{m=-1, m \neq l}^1 \frac{v_{i+m} - v_j - v_k}{v_{i+m} - v_{i+l}}. \quad (22)$$

La méthode numérique a été testée en utilisant des noyaux de collection simples permettant d'obtenir des solutions exactes de l'évolution granulométrique. Ces tests sont présentés dans les références [3] et [5]. Les avantages de cette méthode numérique sont que : (i) la masse totale de la phase dispersée est bien conservée; (ii) la gamme des spectres de gouttes peut être grande; (iii) un nombre modéré de classes est suffisant pour assurer une bonne description du spectre de gouttes.

5 Application à la formation de la bruine

Les nouvelles expressions du noyau de collision, §3, et la méthode numérique du §4 permettent d'étudier l'influence conjuguée de la turbulence et de la sédimentation dans l'élargissement d'un spectre de gouttes. Dans cette application, la teneur en eau a été fixée à 1 g/m^3 . Le taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente a été pris égal à $10 \text{ cm}^2/\text{s}^3$. L'écart type des vitesses fluctuantes de la phase gazeuse est égal à $0,5 \text{ m/s}$. Ces ordres de grandeur sont typiquement ceux que l'on trouve dans les nuages de type stratus. Initialement, nous utilisons une distribution log-normale de rayon moyen $10 \text{ }\mu\text{m}$ et d'écart type $1,6 \text{ }\mu\text{m}$. Les spectres de gouttes obtenus sans et avec les effets de la turbulence sont donnés sur les figures 1 et 2 respectivement aux instants $t = 0; 1; 5$ et 10 min . Sur les figures 1 et 2, les quantités $\bar{\alpha}_i$ représentent les fractions volumiques réduites (c'est-à-dire les fractions volumiques divisées par la fraction volumique totale du mélange).

Le rôle de la turbulence est clairement démontré. On constate qu'après 10 min , le diamètre volumique médian atteint $204 \text{ }\mu\text{m}$ lorsque la turbulence est prise en compte alors qu'il n'atteint que $42 \text{ }\mu\text{m}$ pour un noyau de collision ne prenant en compte que la sédimentation.

Or, l'ordre de grandeur de $200 \text{ }\mu\text{m}$ est typique de ce que l'on trouve dans les nuages de bruine. Bien que le niveau de turbulence soit faible dans les strati, il apparaît ainsi que son effet se révèle primordial dans l'élargissement du spectre. Pobanz *et al* [6] soulignent qu'il ne faut que quelques minutes ou dizaines de minutes pour trouver des gouttes dont le diamètre est compris entre 100 et $500 \text{ }\mu\text{m}$. Ainsi, nos résultats numériques sont en assez bon accord avec les observations *in situ* pour des temps similaires. De plus, Pobanz *et al* [6] montrent que la formation des grosses gouttes est associée à des cisaillements de vents verticaux. Grâce à leurs observations, ils indiquent que le niveau de turbulence est important dans ces couches de cisaillement. Ce point confirme l'importance de la turbulence sur l'élargissement du spectre.

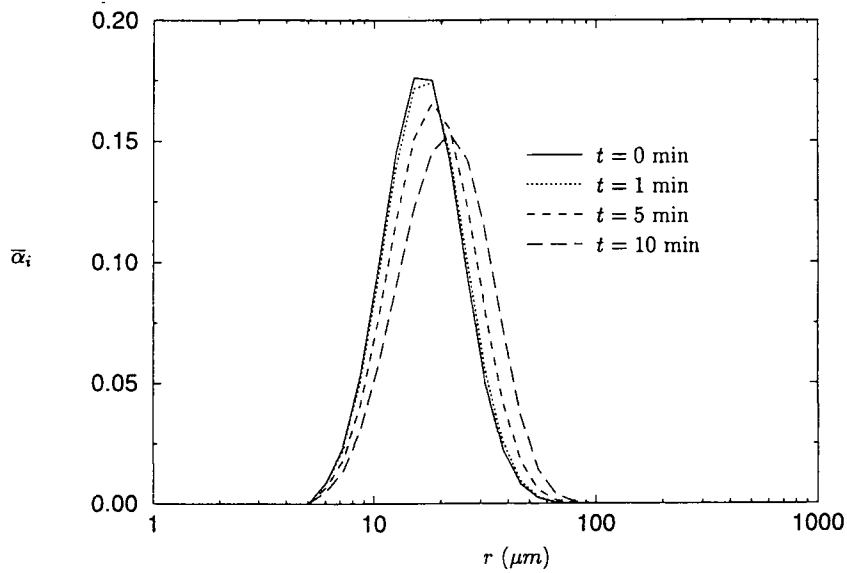


FIG. 1: Granulométries aux instants $t = 0; 1; 5$ et 10 min obtenues sans les effets de la turbulence.

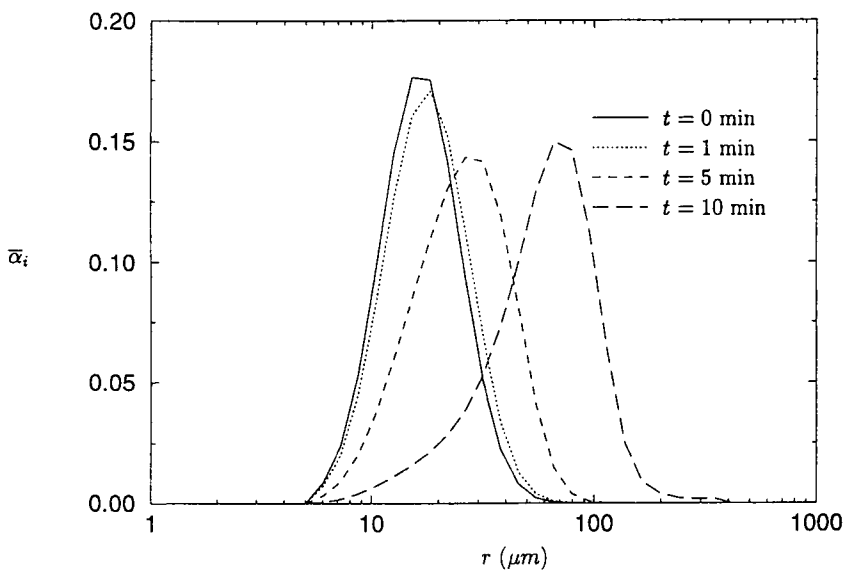


FIG. 2: Granulométries aux instants $t = 0; 1; 5$ et 10 min obtenues avec les effets de la turbulence, utilisation du noyau de collision (14).

6 Conclusion

Les effets de la turbulence sur la formation de la bruine ont pu être évalués grâce à notre nouvelle expression du noyau de collision qui prend en compte à la fois la turbulence et la sédimentation. L'équation d'évolution granulométrique a été résolue numériquement par une méthode spécialement adaptée.

Pobanz *et al* [6] montrent que les régions où se trouvent les grosses gouttes sont associées à des cisaillements de vent. Les mesures indiquent que les niveaux de turbulence les plus importants sont dans ces couches de cisaillement. Nos résultats prouvent que la création de grosses gouttes est liée à l'agitation turbulente.

Le modèle utilisé ici reste à approfondir. D'une part, les interactions hydrodynamiques conduisent à un retard dans l'élargissement du spectre de gouttes [4]. Ces effets doivent être traduits par une efficacité de collision appropriée. D'autre part, la collision entre deux gouttes ne donne pas nécessairement une goutte stable. Il serait alors nécessaire d'introduire une efficacité de coalescence différente de l'unité. Finalement, la présence de grosses gouttes peut conduire à des éclatements qu'il faudrait prendre en compte.

Références

- [1] P. R. Jonas. Turbulence and cloud microphysics. *Atmospheric Research*, 40:283–306, 1996.
- [2] J. Marwitz. A forecast and verification experiment for supercooled large drops (SLD). In *Int. Conf. on Aircraft Inflight Icing, Springfield Virginia, May 6-8*, pages 301–306, 1996.
- [3] F. Pigeonneau. Modélisation et calcul numérique des collisions de gouttes en écoulements laminaires et turbulents. Doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Paris VI, 1998.
- [4] F. Pigeonneau and F. Feuillebois. Collision and size evolution of drops in homogeneous isotropic turbulence. *J. Aerosol Sci.*, 29:S1279–S1280, 1998.
- [5] F. Pigeonneau and F. Feuillebois. Collision rate of particles in turbulent flow. *Int. J. Multiphase Flow*, (soumis), 1998.
- [6] B. M. Pobanz, J. D. Marwitz, and M. K. Politovich. Conditions associated with large-drop regions. *J. Applied Meteorology*, 33:1366–1372, 1994.
- [7] H. R. Pruppacher and J. D. Klett. *Microphysics of clouds and precipitation*. D. Reidel publishing company, 1978.
- [8] E. N. Stankova and M. A. Zatevakhin. The modified Kovetz and Olund method for the numerical solution of stochastic coalescence equation. In *12th Inter. Conf. on Clouds and Precipitations, Zurich, Switzerland 19-23 August*, pages 921–923, 1996.
- [9] L.-P. Wang and D. E. Stock. Dispersion of heavy particles by turbulent motion. *J. Atmos. Sci.*, 50(13):1897–1913, 1993.

Simulation numérique de la collecte des aérosols par une série d'obstacles sphériques

N. Gauchet^(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 Gl de Gaulle - 94010 CRETEIL Cedex, France

Abstract: A numerical simulation of aerosol capture by an array of solid spheres is presented. Particle impaction has been predicted with an eulerian approach. This work performs the evolution of the collection efficiency with the distance between the spheres. Results of the computations are compared with previous works and with experimental data.

Résumé: Cette étude présente une simulation numérique de la collecte d'aérosols par une série d'obstacles sphériques. Une approche eulérienne a été utilisée pour calculer la collecte par impaction des particules sur les sphères. Ce travail se propose d'étudier l'évolution des efficacités élémentaires de collecte des aérosols avec la distance entre les obstacles. 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 les 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 le collecteur 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], Grover [4] et 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.

Tous ces modèles ne concernent que des collecteurs isolés. Les sphères sont plongées dans un environnement à caractéristiques constantes et l'écoulement en aval n'est pas perturbé. Or, dans le

1. Nombre de Reynolds > 1000

2. Nombre de Reynolds $\ll 1$

cas réel d'application de ces corrélations, les collecteurs peuvent se situer à une certaine distance les uns des autres. Par exemple, pour les lits granulaires, les grains sont très proches les uns des autres. Dans le cas de l'aspersion des réacteurs à eau pressurisée, on a estimé la distance entre les gouttes entre 5 et 17 diamètres de goutte. Dans ces situations, chaque collecteur subit l'influence des collecteurs voisins, ce qui entraîne une modification de l'écoulement, ainsi qu'une modification de la concentration en aérosols. Peu d'études ont été faites sur ce sujet, c'est pourquoi, ce travail se propose d'étudier l'influence de la distance entre les obstacles sur l'efficacité élémentaire de collecte des aérosols.

Nous avons développé un modèle numérique de collecte des aérosols qui calcule le dépôt par impaction des particules sur l'obstacle. Ce phénomène est dû à l'inertie des particules qui dévient des lignes de courant de l'air au voisinage des collecteurs pour s'impacter sur la surface des sphères. Il s'agit d'une approche eulérienne qui permet de calculer l'écoulement du mélange air/particules au voisinage de trois sphères alignées, ainsi que le dépôt sur chacun des collecteurs.

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 Collecte par impaction et interception

2.1 Hypothèses sur l'écoulement d'air autour des obstacles

Dans la suite du problème, nous utiliserons un repère cartésien lié au premier 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. Les trois sphères sont alignées dans le sens de l'écoulement et la distance entre le centre de deux sphères consécutives est fixe.

Quelques hypothèses sont faites de manière à simplifier les équations et à réduire les temps de calcul : l'écoulement autour de chaque obstacle est laminaire, incompressible, stationnaire et axisymétrique. D'après Tomboulides [9], 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, P la pression et ρ_f la masse volumique de l'air.

2.2 Modèle eulérien du comportement des aérosols

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

3. CARAIDAS: CAractérisation du Rabattement des Aérosols et de l'Iode par un Dispositif d'ASpersion [6, 7, 8].

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.

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 [10].

2.2.1 Hypothèses du modèle bifluide

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.

2.2.2 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 -ème 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 :

$$\frac{\partial \alpha}{\partial t} + \frac{\partial (\alpha \cdot V_i)}{\partial x_i} = 0, \quad (3)$$

$$\frac{\partial V_i}{\partial t} + V_j \cdot \frac{\partial V_i}{\partial x_j} = -\frac{1}{\rho_p} \cdot \frac{\partial P}{\partial x_i} - K_p \cdot (V_i - U_i) + \left(1 - \frac{\rho_f}{\rho_p}\right) \cdot g_i, \quad (4)$$

$$\text{avec } K_p = \frac{3}{4} \cdot \frac{\rho_f}{\rho_p} \cdot \frac{C_D}{D_p} \cdot \|\vec{V}_r\|. \quad (5)$$

2.2.3 Calcul de l'efficacité élémentaire de collecte par impaction de chaque collecteur

La résolution des équations précédentes permet de calculer le flux de particules pénétrant dans chaque obstacle par impaction. Pour la suite, l'indice i est utilisé pour désigner une grandeur concernant une sphère et prend donc les valeurs 1, 2 et 3.

Il faut donc calculer le flux de particules entrant sur toute la surface de l'obstacle (S_i) :

$$\Phi_{imp,i} = \int_{S_i} \alpha_s \vec{V} \cdot \vec{n} \, ds, \quad (6)$$

où α_s représente la fraction volumique des particules à la surface de l'obstacle i .

L'efficacité élémentaire de collecte par impaction de la première sphère s'écrit :

$$E_{imp,1} = \frac{\int_{S_1} \alpha_s \vec{V} \cdot \vec{n} ds}{\alpha_e \pi R_s^2 V_0}, \quad (7)$$

où α_e représente la fraction volumique des particules à l'entrée du domaine et V_0 leur vitesse sous le premier obstacle.

Pour les deux sphères suivantes, la concentration et la vitesse des particules en amont ne sont plus homogènes, il faut donc calculer les flux en intégrant les champs sur la surface d'un disque de rayon R_s . Ce disque de surface S_D , correspond à la surface projetée d'une sphère sur un plan perpendiculaire à l'écoulement en amont de l'obstacle. On a donc :

$$E_{imp,i} = \frac{\int_{S_i} \alpha_s \vec{V} \cdot \vec{n} ds}{\int_{S_{D,i}} \alpha \vec{V} \cdot \vec{n} ds}, \quad (8)$$

pour $i = 1$ et 2 .

Par exemple, on peut définir la vitesse moyenne des particules sur ce disque :

$$\bar{V}_i = \frac{\int_{S_{D,i}} \vec{V} \cdot \vec{n} ds}{\pi R_s^2}. \quad (9)$$

De la même manière, on définit la vitesse moyenne d'air et la concentration moyenne sous les obstacles, ainsi que la vitesse moyenne des particules et la concentration moyenne des particules à la surface des sphères.

3 Résultats des calculs

3.1 Proposition d'une corrélation pour l'impaction de particules sur une sphère

Nous avons effectué des calculs avec ce modèle pour différentes valeurs des paramètres. Les deux nombres caractéristiques du problème sont le nombre de Stokes Stk et le nombre de Reynolds de l'écoulement Re .

$$Stk = \frac{\rho_p D_p^2 V_\infty}{9 \mu_f D_s} \text{ et } Re = \frac{U_\infty D_s}{\nu_f}, \quad (10)$$

où U_∞ est la vitesse de l'air, et V_∞ celle des particules, en aval du collecteur.

Ces différents calculs nous ont permis de faire varier le nombre de Stokes entre 10^{-2} et 10 et le nombre de Reynolds entre 10 et 200 . De manière à regrouper tous les résultats, nous avons tenté d'exprimer l'efficacité d'impaction sous la forme d'une nouvelle corrélation qui est la suivante :

$$E_{imp} = \frac{Stk^{1,8} Re^{0,5}}{9,2 + Stk^{1,8} Re^{0,5}} \text{ si } Stk^{1,8} Re^{0,5} < 1, \quad (11)$$

$$E_{imp} = \frac{Stk^{1,5} Re^{0,3}}{4,1 + Stk^{1,5} Re^{0,3}} \text{ si } Stk^{1,8} Re^{0,5} \geq 1. \quad (12)$$

Globalement nous pouvons constater que E_{imp} augmente avec Stk à Re fixé et que E_{imp} augmente avec Re à Stk fixé.

Sur la figure 1 nous avons tracé l'évolution de E_{imp} en fonction de Stk pour une sphère de $700 \mu m$ de diamètre. On remarque que pour $Stk > 0,1$ les résultats de nos calculs, la corrélation proposée, les résultats de CARAIDAS et la corrélation de Langmuir sont en bon accord. Pour $Stk < 0,1$ la corrélation de Langmuir sous estime un peu l'efficacité alors que tous les autres résultats sont en bon accord entre eux.

3.2 Impaction de particules sur trois sphères alignées

Nous présentons un cas pour lequel nous avons fait varier la distance entre les sphères de 5 à 25 fois D_s . Pour ce calcul on a fixé les conditions ambiantes ($T_g = 20^\circ C$, $S = 1$, $P = 1 \text{ bar}$), le diamètre du collecteur ($D_s = 700 \mu m$) et celui des particules ($D_p = 2,8 \mu m$). Dans ce cas, on remarque sur la figure 3 que la vitesse moyenne devant et à la surface des sphères est pratiquement la même quand les sphères sont les plus éloignées. Par contre si les sphères sont espacées de 5 diamètres, on remarque une forte diminution de ces vitesses.

En ce qui concerne la concentration des particules, on observe une forte influence des premières gouttes. En effet, même à 25 diamètres, on ne retrouve pas la valeur moyenne que l'on peut avoir dans le gaz. Cette influence est encore plus marquée sur la surface des sphères car les particules qui arrivent jusqu'à la surface sont celles qui se situaient à proximité de l'axe de symétrie. Or, au voisinage de cet axe la concentration est quasiment nulle du fait de l'absence de diffusion des particules. Dans ces conditions on constate sur la figure 2 que les efficacités correspondant aux dernières sphères sont très réduites. Ceci est dû à l'absence de turbulence dans le milieu qui aurait tendance à rendre cette concentration plus homogène.

C'est pourquoi, nous avons simulé une homogénéisation des particules en aval de la première sphère en réinjectant des particules devant chaque collecteur. Dans ce cas, on constate que l'efficacité de collecte des sphères suivantes remonte quand les sphères sont distantes de 25 diamètres et que l'on retrouve quasiment la valeur obtenue sur la première sphère. De plus, les efficacités obtenues dans ce cas sont en remarquable accord avec celles obtenues par notre corrélation utilisée avec la vitesse moyenne calculée devant chaque sphère.

On en déduit donc que l'appauvrissement de la concentration en aval d'une sphère est très pénalisant pour les sphères suivantes. En revanche, même si la vitesse ne l'est pas, on retrouve les résultats d'efficacité donnés par une corrélation établie pour une vitesse homogène en aval de l'obstacle.

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). Un bon accord est trouvé entre les efficacités données par ce modèle eulérien et celles provenant de l'expérience CARAIDAS. On a également montré que cette approche permet d'étudier l'influence entre des sphères sur l'efficacité élémentaire de collecte par impaction de particules. On constate donc que dans les situations où les collecteurs sont relativement proches les uns des autres, il y a une modification de l'efficacité de chaque collecteur. Ces approches numériques sont maintenant validées pour être appliquées dans divers domaines tels que le lavage de l'atmosphère par des gouttes de pluie ou l'optimisation de systèmes d'épuration.

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] D. Ducret, J. Vendel et D. Vigla. – *Etude préliminaire de l'aspersion*. – Rapport CEA n° SERAC/LECEV/93-22, IPSN/DPEI/SERAC, juin 1993.
- [7] 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.
- [8] 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.
- [9] 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.
- [10] 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.

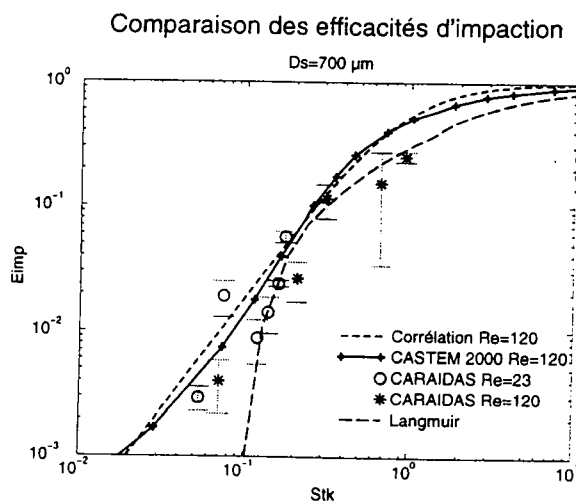


FIG. 1 – Comparaison des efficacités d'impaction pour $D_s = 700 \mu m$, $T_g = 20^\circ C$, $S = 1$, $P = 1 bar$

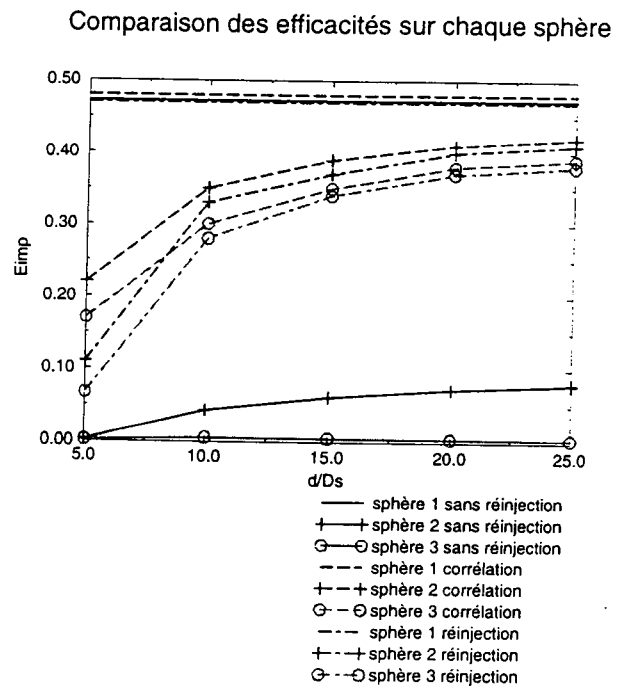


FIG. 2 – Evolution des efficacités avec la distance entre les obstacles pour $D_s = 700 \mu m$, $D_p = 2,8 \mu m$, $T_g = 20^\circ C$, $S = 1$, $P = 1 bar$

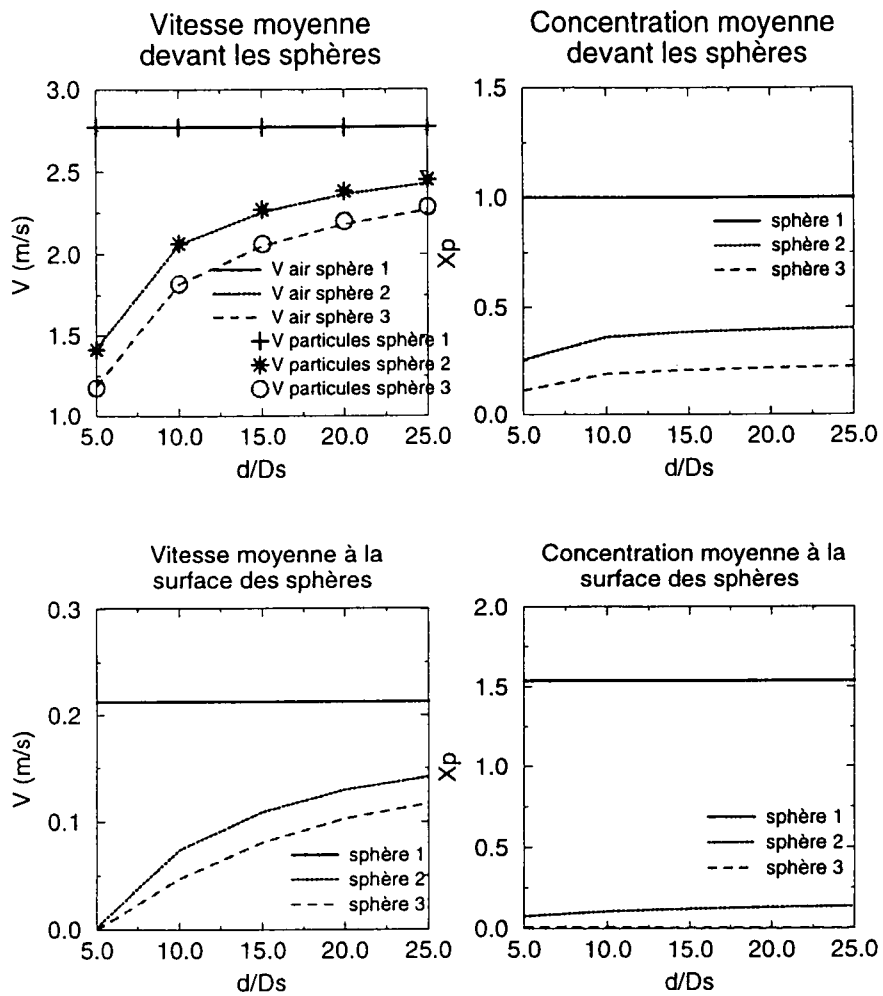


FIG. 3 - Vitesses et concentrations moyennes pour $D_s = 700 \mu m$, $D_p = 2,8 \mu m$, $T_g = 20^\circ C$, $S = 1$, $P = 1 \text{ bar}$

NOUVELLE LIGNE DE PRELEVEMENT FRACTIONNELLE DE POUSSIERES ATMOSPHERIQUES POUR LA SPECTROMETRIE A FLUORESCENCE DE RAYONS X EN REFLEXION TOTALE

A.C. JOHN, T.A.J. KUHNBUSCH, H. FISSAN, K.-G. SCHMIDT[†], F. SCHMIDT[†],
H.-U. PFEFFER[‡], D. GLADTKE[‡]

Process and Aerosol Measurement Technology, University of Duisburg, Bismarckstr. 81, 47057 Duisburg,
Germany; email: johnas@uni-duisburg.de

[†] Chemical Engineering, University of Duisburg, Germany

[‡] Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen, Essen, Germany

Jusqu'à récemment encore, on mesurait surtout la masse totale de la poussière atmosphérique pour surveiller la qualité de l'air par rapport aux particules. Des études épidémiologiques et des mesures de la pénétration des aérosols dans le poumon ont mis en évidence que ce sont surtout des particules fines qui sont responsable des effets sur la santé. Les catégories les plus importantes sont des "particules respirables" d'un diamètre aérodynamique inférieur à 10 µm ("particulate matter 10"; PM 10) et les "particules alvéolaires" inférieur à 2.5 µm (PM 2.5). Ces études récentes ont ouvert le débat sur une révision des normes sur les particules (Kommission ..., 1997), pour proposer le monitoring des PM 10 et PM 2.5, qui remplacera les mesures des particules en suspension totales (PST).

En ce qui concerne ces nouvelles normes, il y a peu de connaissances et de données en Europe. Ce fait nous a conduit à initier le projet "Etudes sur des aérosols atmosphériques et leur composition chimique". Les objectifs de ce projet sont entre autres de donner une description détaillée des aérosols ambiants du bassin de la Ruhr en Allemagne, leur variabilité saisonnière et des informations sur leurs sources et le transport.

Pour cela, la composition chimique en fonction de la taille des particules donne des informations très importantes. Comme en fractionnant les aérosols, ce ne sont que des concentrations faibles des éléments qui sont disponibles pour l'analyse chimique, on a besoin d'une méthode analytique sensitive. Pour avoir la possibilité d'analyser beaucoup d'éléments en peu de temps, une méthode multi-éléments est très utile. Pour ces raisons, on a choisi la spectrométrie à fluorescence de rayons X en réflexion totale (TXRF) pour les analyses chimiques. Normalement, la collection de la poussière se fait sur des filtres qu'il faut

décomposer avant de les analyser. Pour éviter cette étape qui prend beaucoup de temps et qui comporte le risque de la contamination de l'échantillon ou de la perte des éléments, on a construit une ligne de prélèvement particulière et dessinée pour l'analyse par la TXRF.

Cette ligne consiste en une tête d'impaction PM 10 dessinée par l'EPA américaine comme pré séparateur où les particules d'un diamètre $> 10 \mu\text{m}$ sont déposées. Avec un impacteur en cascade à 2 étages, les particules de diamètre $10 - 2.5 \mu\text{m}$ et $2.5 - 1.0 \mu\text{m}$, respectivement, sont impactées directement sur des supports d'échantillon de la TXRF. Pour éviter la contamination des échantillons dans les impacteurs en acier spécial (Injuk and Van Grieken, 1995; Schmeling et al, 1997), on a choisit l'aluminium comme matériau et on a appliqué le traitement "Ematal" pour les surfaces de l'impacteur. Pour avoir la possibilité de faire varier le flux de façon à avoir des durées d'échantillonnage variables, l'impacteur est équipé des jets adaptés inter changeables. La calibration des deux étages PM 2.5 et PM 1 a été réalisé par des particules monodispersées de polystyrène latex. La figure 1 montre les courbes d'efficacité de la séparation des étages PM 1 et PM 2.5. La courbe d'efficacité de l'étage PM 2.5 de l'impacteur en cascade est en bonne conformité avec celle de l'impacteur WINS américain (voir figure 1).

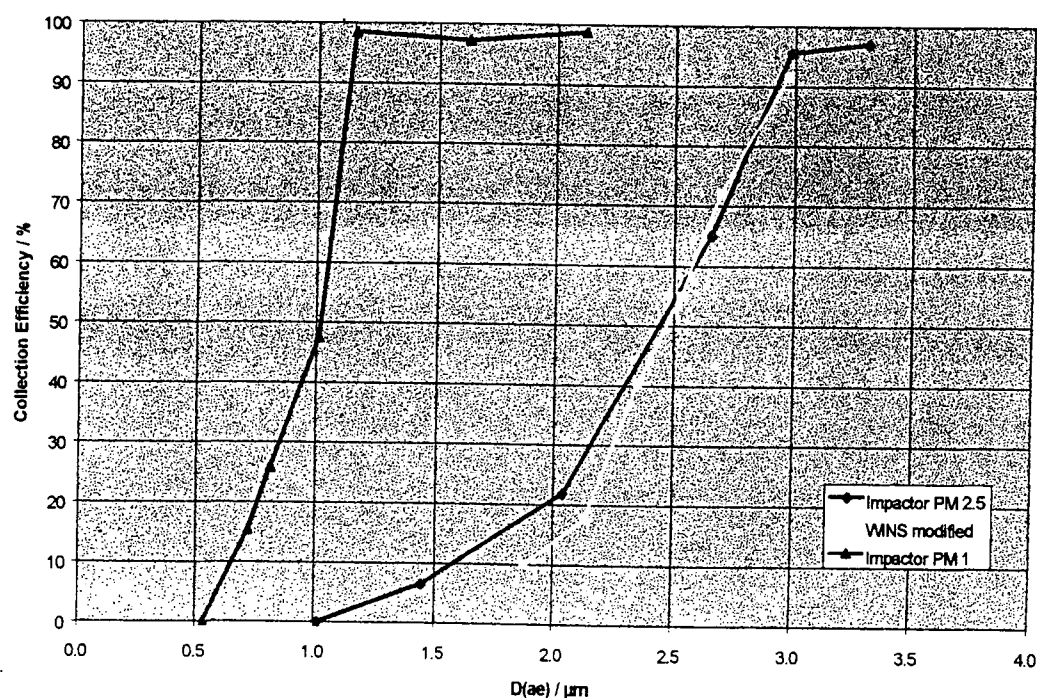


Figure 1: courbes de l'efficacité de la séparation PM 1 et PM 2.5

Pour récupérer les petites particules sortant du dernier étage de l'impacteur, il faut un "filtre back up". Nous utilisons un chargeur électrique unipolaire et un précipitateur électrostatique (ESP) (Dixkens et al., 1993) pour que les particules $< 1 \mu\text{m}$ sortant de l'impacteur soient précipitées ainsi directement sur les supports d'échantillonnage de façon à éviter l'utilisation d'un filtre et les problèmes qui y sont liés. En calibrant l'impacteur, des effets indésirables ont été découverts. C'est connu qu'il faut couvrir la surface des plaques d'impaction de graisse pour éviter le phénomène de rebond des particules. Nous avons choisi la vaseline médicale qui n'entraîne pas des difficultés pour l'analyse chimique. Comme l'analyse par TXRF exige des surfaces unies, la vaseline doit être chauffée avant l'analyse pour obtenir une surface lisse. Cependant, le chauffage avant l'échantillonnage réduit l'adhésion des particules, probablement à cause d'une dessiccation de la surface de la vaseline (voir tableau 1). C'est-à-dire qu'il faut égaliser la graisse après le prélèvement d'échantillon.

Tableau 1: Efficacités d'échantillonnage pour des particules en polystyrène latex sur des plaques d'impaction recouvertes de vaseline, chauffées avant et après l'échantillonnage, respectivement.

Diamètre aérodynamique [μm]	Etage PM 1		Etage PM 2.5	
	Efficacité [%] d'échantillonnage; l'égalisation de la vaseline avant/après l'échantillonnage			
	avant	après	avant	après
1.44	81.2	98.5		
2.04	70.4	97.2		
2.65	78.0	98.8		
2.98			89.3	95.5
3.31			71.2	97.0

Normalement, des supports en quartz sont utilisés pour la TXRF. Dans le but de mesurer le silicium, des supports en verre acrylique sont souvent utilisés. Cependant des expériences ont mis en évidence des pertes de particules fines à cause des effets électrostatiques du verre acrylique (Fig. 2). C'est pourquoi des supports conducteurs en graphite ("glassy carbon") sont ensuite utilisés.

$d(ae) = 1.01 \mu\text{m}$	Efficacité d'échantillonnage [%]	
	Verre acrylique	Glassy carbon
Etage PM 2.5	53.3	0.0

Tableau 2: Plus que 50 % des particules d'un diamètre de $1 \mu\text{m}$ étaient perdues à l'étage PM 2.5 à cause des effets électrostatiques des supports en verre acrylique, par rapport aux supports conducteurs.

Après l'échantillonnage, les supports sont enlevés de l'impacteur et de l'ESP sans qu'ils aient besoin d'une préparation supplémentaire sauf l'application du standard interne. Pour la quantification des éléments légers à partir de silicium, le scandium est appliqué et on utilise l'yttrium pour les éléments plus lourds.

L'impacteur / ESP a été utilisé pendant quelques campagnes de mesures. Le tableau 3 liste quelques-uns des résultats obtenus à une station rurale.

Tableau 3: concentrations moyennes [ng/m^3] de la période 08/07/98-06/08/98 à Voerde (bassin de la Ruhr, Allemagne)

	S	Cl	Ca	Fe	Zn	As	Pb
PM 1	2843	0	338	1862	16	10	136
PM 2.5	2865	60	360	1885	18	10	136
PM 10	2952	341	630	2541	219	10	150

Avec ce méthode, on fait la collection des particules de toutes les fractions importantes pour apprécier la qualité de l'air ambiant (PM 10, PM 2.5 et PM 1) et pour une analyse chimique rapide et sensitive. Des expériences de calibration ont révélées que les supports d'échantillon recouverts de vaseline doivent être chauffés après l'échantillonnage pour réduire le rebond des particules (tableau 1) et que des supports conducteurs doivent être utilisés pour éviter des pertes électrostatiques des particules fines (tableau 2). La calibration a montré la conformité des courbes d'efficacité de l'étage PM 2.5 de l'impacteur et de l'US WINS impacteur (Fig. 1).

Des mesures ont montré que les concentrations et distributions en tailles des éléments sont du même ordre que celles rencontrées dans la littérature (tableau 4). Des comparaisons directes avec d'autres méthodes seront réalisées.

Remerciement

Ce travail a été subventionné par le ministère de l'environnement de la Rhénanie-du-Nord-Westphalie.

Références

Dixkens, J., H. Fissan and T. Dose, (1993) A new particle sampling technique for direct analysis using total-reflection X-ray fluorescence spectrometry, *Spectrochim. Acta Part B* 48 231-238.

Horvath, H., M. Kasahara, P. Pesava, (1996) The size distribution and composition of the atmospheric aerosol at a rural and nearby urban location, *J. Aerosol Sci.* 27, 417-435.

Injuk, J., R. Van Grieken, (1995) Optimisation of total-reflection X-ray fluorescence for aerosol analysis, *Spectrochim. Acta Part B* 50, 1787-1803.

Kommission der Europäischen Gemeinschaften, Vorschlag für eine Richtlinie des Rates über Grenzwerte für Schwefeldioxid, Stickoxide, Partikel und Blei in der Luft, Brüssel, 1997.

Ebert, M.; Hoffmann, P.; Ortner, H. M.; Weinbruch, S.: Chemische Charakterisierung atmosphärischer Partikel im Rahmen der Meßkampagne Nordex 96, Nordex 96 Workshop, 14.11.1997.

Schmeling, M., R. Klockenkämper, D. Klockow, (1997) Application of total-reflection X-ray fluorescence spectrometry to the analysis of airborne particulate matter, *Spectrochim. Acta Part B* 52, 985-994.

CARACTERISATION DES MODES DE PEHD ET PROPRIETES DES GOUTTES D'EAU EN MODE CONE-JET-GLOW

P. Ehouarn, J-P. Borra

Laboratoire de Physique des Gaz et Plasmas, UMR 8578

Equipe Décharges Electriques et Environnement,

Ecole Supérieure d'Electricité, Plateau du Moulon, 91192 Gif/Yvette Cedex, FRANCE

I. Introduction

Le but de cette étude est de développer un nouveau système de dépollution des effluents qui soit adapté à la grande variabilité des produits gazeux et particulaires. Le principe repose sur la coagulation électrostatique de particules polluantes sub-microniques chargées négativement (par décharge électrique), avec des gouttelettes collectrices microniques chargées positivement. Ce procédé a pour but de collecter l'aérosol polluant sur des gouttelettes dont la taille permet la séparation inertielle. L'efficacité de coagulation électrique dépend de différents paramètres, tels par exemple la vitesse, la mobilité électrique, la concentration des particules et donc plus spécifiquement de la surface efficace de collection par unité de volume de gaz. D'une part, les propriétés des polluants négatifs dépendent de la nature du procédé dont ils émanent ; d'autre part, les propriétés des gouttelettes collectrices, produites par Pulvérisation Electro-HydroDynamique (PEHD), dépendent des modes de pulvérisation (stables ou instables) et varient selon les paramètres expérimentaux (tension V , débit de liquide Q_{liq}) et selon les paramètres propres du liquide (conductivité λ , tension de surface γ , viscosité η , masse volumique ρ et permittivité relative ϵ_r).

Afin d'obtenir les conditions optimales de coagulation électrique, il est nécessaire de pouvoir contrôler et de pouvoir faire varier les propriétés des gouttelettes (diamètre, quantité de charge) selon les modes de PEHD. La pulvérisation de liquide à faible tension de surface (mode cône-jet), sans décharge électrique, est déjà connue et différents modèles déterminent les propriétés des gouttelettes en fonction des paramètres de régulation [GAN 97, HAR 98]. Cependant, En présence de décharges électriques, aucune loi définissant les propriétés de celles-ci n'a encore été établie. Différentes études ont été effectuées sur la PEHD de liquides à forte tension de surface, et jusqu'à présent, la présence de phénomènes ionisants impulsifs empêchent la stabilisation du nébulisât, dans l'air, à pression atmosphérique [HAY 86 & CLO 89 & JAW 96]. Le mode instable induisant une distorsion granulométrique, il est impossible de contrôler les propriétés des gouttelettes émises [BOR 96].

L'objectif de cet article est donc d'étudier la PEHD de liquides en présence de décharges électriques et de définir les domaines d'existence d'un mode stable permettant de contrôler les propriétés des gouttelettes selon les différents paramètres de régulation (débit de liquide, tension, conductivité, diamètre de la buse). Le but est de déterminer les propriétés des gouttelettes produites par PEHD (diamètre, charge électrique, vitesse, mobilité électrique), afin d'établir les lois d'échelle en fonction des paramètres de régulation.

II. Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est placé dans l'air, à pression atmosphérique (cf. figure 1).

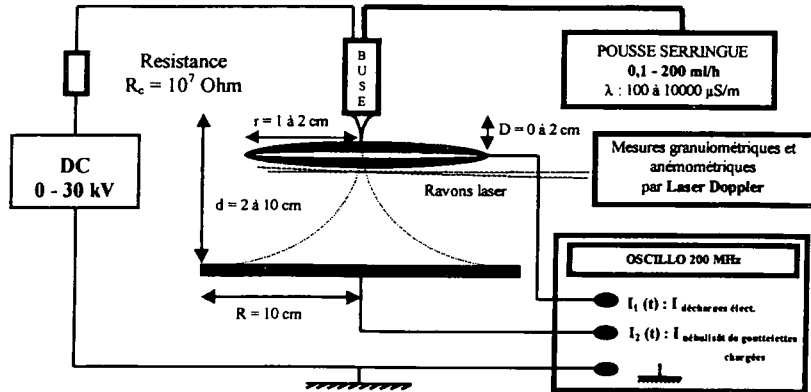


Figure 1 : dispositif expérimental

Une buse alimentée en liquide (0.1 à 200 ml/h) est polarisée par une alimentation haute tension positive et continue (0 à 30 kV). Une plaque et un anneau métallique reliés à la masse sont positionnés perpendiculairement à la buse, à quelques centimètres de celle-ci.

Deux techniques de mesures sont utilisées :

1. Mesures électriques de courant instantané (oscilloscope de 200 MHz)
2. Mesures granulométriques (anémométrie laser à effet Doppler : Hélium-Néon DANTEC).

III. Influence du régime de décharges électriques sur les modes de PEHD

La figure 2 représente la caractéristique courant-tension pour deux liquides de tension de surface différente : l'éthanol ($\gamma = 0.022 \text{ N/m}$) et l'eau ($\gamma = 0.072 \text{ N/m}$).

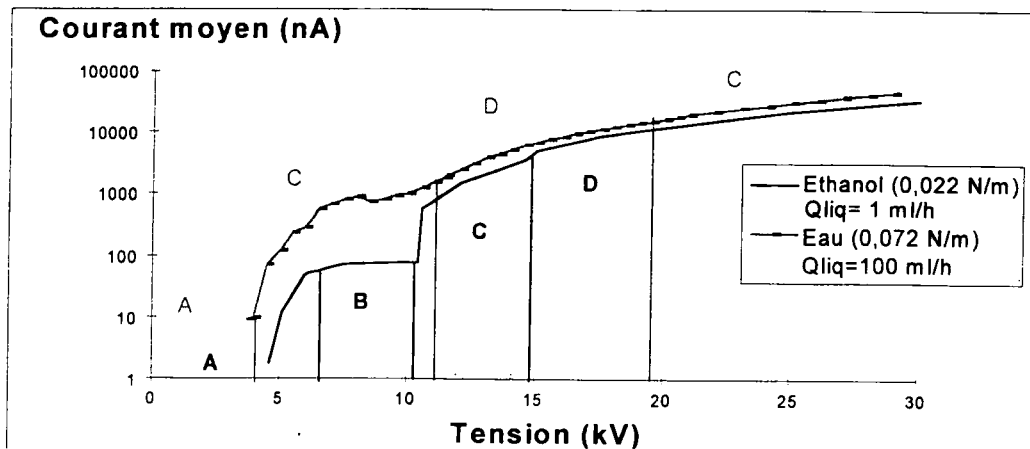


Figure 2 : Caractéristiques I-V pour l'éthanol et l'eau ($\lambda = 100 \mu\text{S/m}$, $d = 4 \text{ cm}$)

Sans décharge : A : goutte-à-goutte ; B : (multi-)cône-jet

Avec décharges : C : goutte-à-goutte-électrique (streamer) ; D : (multi-)cône-jet-glow (glow)

Quelque soit la tension de surface du liquide, nous constatons que le régime de décharges électriques (glow continu / streamer impulsif) induit les modes de PEHD ((multi-)cône-jet-glow stable / goutte-à-goutte-électrique instable). Pour des liquides à forte tension de surface, tels l'eau, pour lesquels la PEHD coexiste toujours en présence de décharges électriques, la variation du divergent du champ électrique permet de contrôler le régime de décharges [HAR 63] et d'induire une décharge glow continue stabilisant le nébulisat dans un mode que nous avons décidé de dénommer le mode « cône-jet-glow ».

IV. Domaines de stabilité de PEHD dans l'espace (λ , Q_{liq} , V)

La figure 3 représente les domaines de stabilité du mode cône-jet-glow en fonction de la tension, de la conductivité et du débit de liquide, pour un liquide à forte tension de surface l'eau. Deux configurations sont étudiées : configuration buse-plaque (utilisée afin de définir les conditions expérimentales pour une simulation numérique) et la configuration buse-anneau-plaque (utilisée pour l'application : séparation de la zone de production de la zone de coagulation et collection des ions gazeux produits par décharge).

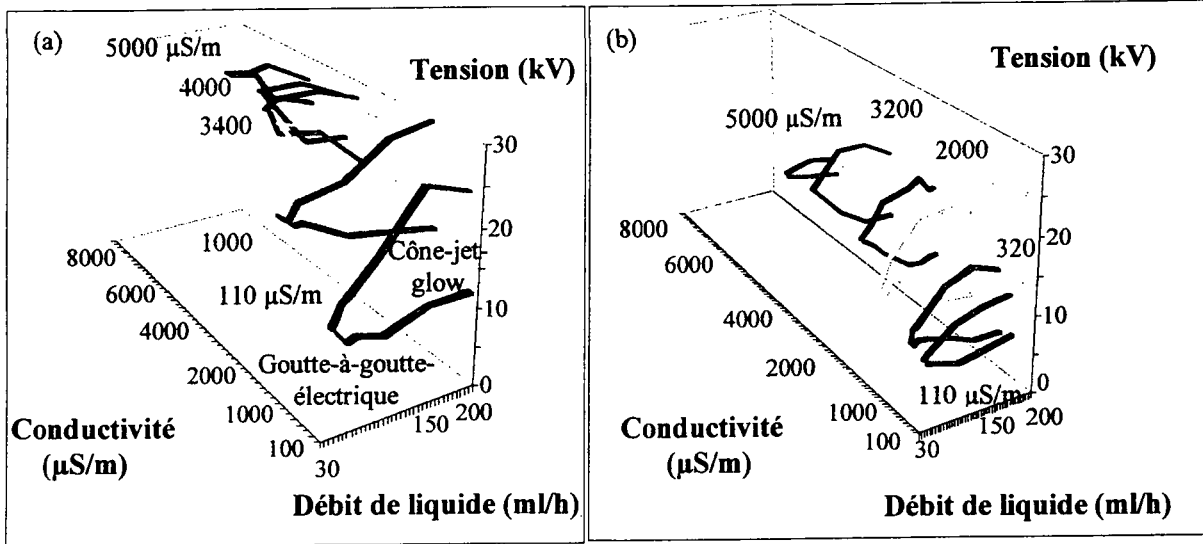


Figure 3 : Domaines de stabilité de PEHD dans l'espace (λ , Q_{liq} , V)
(a) buse-plaque (b) buse-anneau-plaque

Pour les deux configurations étudiées, nous retrouvons la même corrélation entre le régime de décharges électriques et les modes de PEHD : une décharge impulsionnelle (streamer) induit un mode instable goutte-à-goutte-électrique, une décharge continue (glow) induit un mode stable cône-jet-glow. En configuration buse-anneau-plaque, nous observons une translation du domaine du mode cône-jet-glow vers des tensions plus faibles, qui s'explique par la diminution de la distance inter-électrodes.

V. Distributions granulométriques en mode cône-jet-glow

En régime de décharges électriques impulsionnelles, la PEHD est instable et induit des distributions granulométriques polymodales (cf. figure 4.a). En régime de décharge électrique continue, la PEHD est stable et induit des distributions granulométriques unimodales (cf. figure 4.b).

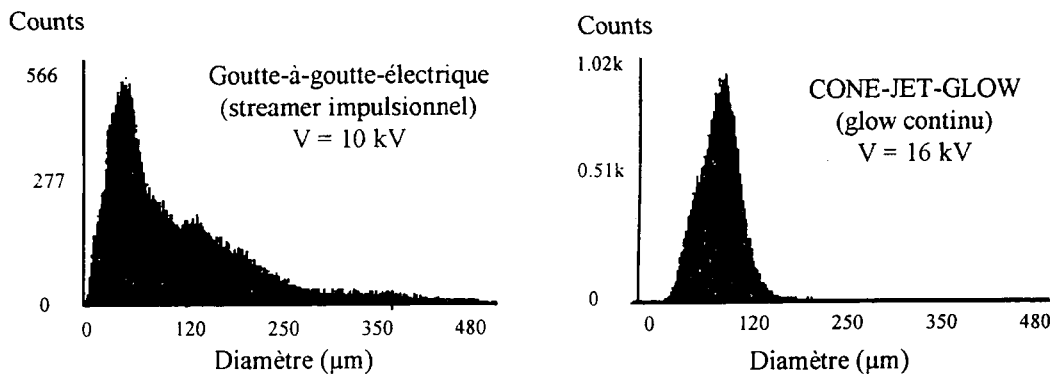


Figure 4 : Distributions granulométriques en taille ($\lambda_{eau}=100 \mu S/m$; $Q_{liq}=100 ml/h$)

En configuration buse-plaque et en configuration buse-anneau-plaque, le passage du mode cône-jet-glow au mode goutte-à-goutte-électrique induit une distorsion granulométrique. Par contre, en cône-jet-glow, bien que les distributions soient bi-modales (gouttes primaires et secondaires) dans les deux configurations, il existe, en configuration buse-plan, un effet de ségrégation spatiale (gouttes primaires au centre et gouttes secondaires sur les bords du nébulisât), qui n'existe pas en buse-anneau-plan où les gouttes primaires et secondaires sont mélangées dans tout le volume du nébulisât.

Comme en cône-jet sans décharge, le cône-jet-glow produit des distributions bi-modales ; néanmoins, l'écart type relatif augmente de 20 à 30%, et le rapport des tailles de gouttes secondaires (« satellites ») et de gouttes primaires varie de 2 à 7 en cône-jet sans décharge alors qu'il est systématiquement inférieur à 2 en cône-jet-glow.

VI. Propriétés des gouttelettes et lois d'échelle

A partir de mesures expérimentales, nous avons établi les lois d'échelle permettant de définir les propriétés des gouttelettes en mode cône-jet-glow selon les paramètres de régulation, dans l'air, à pression atmosphérique. Le liquide pulvérisé est l'eau à une conductivité fixe de 100 $\mu\text{S/m}$.

1) En configuration buse-anneau-plan, la composante du courant de glow est de l'ordre de plusieurs microampères et celle du courant de gouttelettes de quelques centaines de nanoampères (cf. figure 5).

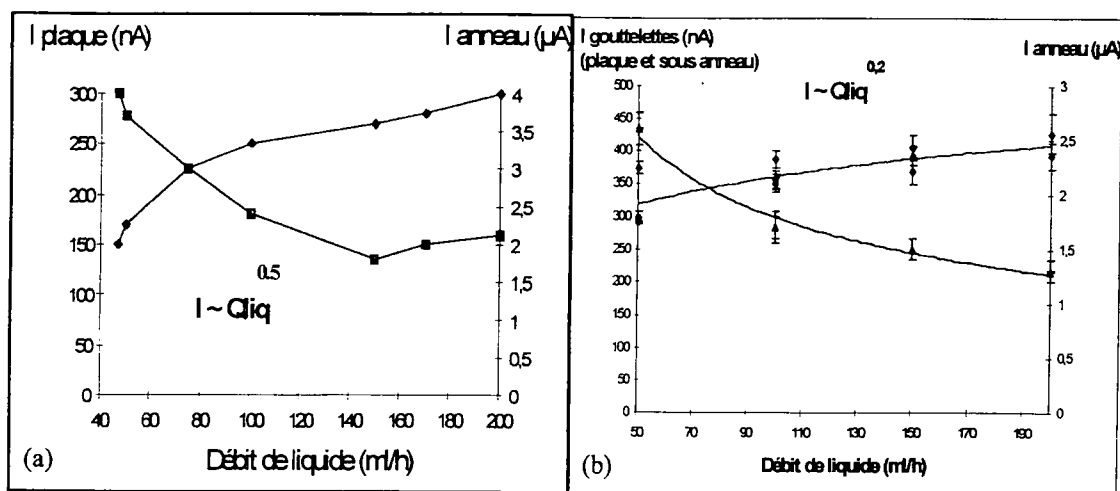


Figure 5 : Influence du débit de liquide sur les courants en mode cône-jet-glow ($V=8\text{ kV}$)

Le courant de glow diminue en fonction du débit de liquide et le courant du nébulisât augmente en fonction du débit de liquide. D'après la figure 5.a, le courant collecté sur la plaque est proportionnel au débit de liquide en puissance 0,5. Or, une partie des gouttelettes est collectée par l'anneau, si bien que le courant collecté sur la plaque correspond à une sous-estimation du courant de nébulisât. Un deuxième anneau a été positionné sous le premier permettant d'évaluer le courant de gouttelettes collecté par l'anneau. Le courant de nébulisât collecté sur la plaque et sur l'anneau inférieur varie alors en $Q_{\text{liq}}^{0.2}$.

$$I_{\text{plaque}} \sim Q_{\text{liq}}^{0.5}$$

$$I_{\text{plaque} + \text{sous anneau}} \sim I_{\text{nébulisât}} \sim Q_{\text{liq}}^{0.2}$$

2) En mode cône-jet-glow, le diamètre des gouttelettes varie en fonction de la racine carré du débit de liquide (cf. Figure 6.a). D'autre part, l'augmentation du courant de décharge glow, i.e. l'augmentation du champ électrique à la surface du liquide, induit une diminution du diamètre des gouttelettes (cf. Figure 6.b).

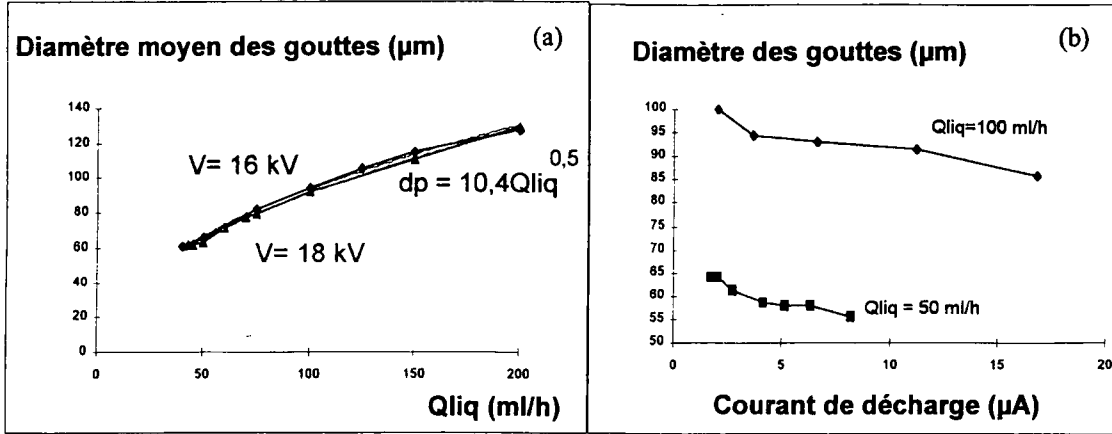


Figure 6 : Influence du débit de liquide (a) et du courant de glow (b) sur le diamètre des gouttelettes en mode cône-jet-glow

Nous obtenons donc : $d_{gouttelette} \sim Q_{liq}^{1/2} - A I_{glow}$ (avec $A > 0$)

3) En première approximation, avant de mesurer ultérieurement la mobilité électrique des gouttelettes, nous avons déterminé la charge électrique par gouttelette en divisant le courant du nébulisât par la fréquence d'émission des gouttelettes ($Q_{liq} / \text{Volume d'une goutte}$).

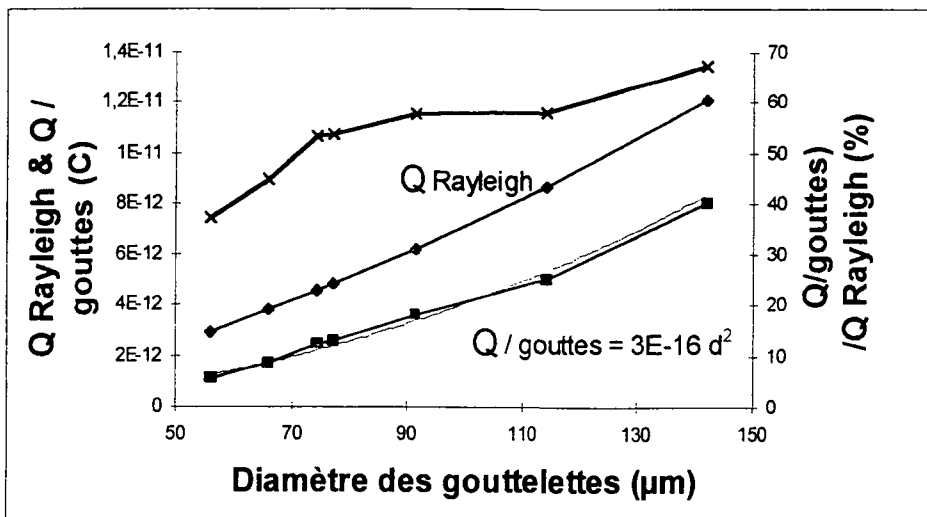


Figure 7 : q_{goutte} en fonction du diamètre des gouttelettes en mode cône-jet-glow

La charge électrique par goutte varie selon :

$$q_{goutte} \sim d_{gouttelette}^2$$

Nous constatons que la charge électrique augmente en fonction du diamètre de goutte et tend vers la charge limite de Rayleigh, définie comme la charge maximale d'une goutte avant son explosion par répulsions électrostatiques ($q_{Rayleigh} = 8 \pi (\epsilon_0 \gamma r^3)^{1/2}$).

Dans le cadre de l'application, le diamètre de goutte optimal c'est-à-dire le débit de liquide optimal sera recherché afin d'obtenir un volume d'eaux usées minimal (i.e. faible débit de liquide) et une charge électrique par goutte maximale (i.e. fort débit de liquide).

VII. Conclusions & perspectives

Dans cette étude, nous avons observé que, quelle que soit la tension de surface des liquides, le régime de décharges électriques (glow continu / streamer impulsif) induit les modes de PEHD (cône-jet-glow stable / goutte-à-goutte-électrique instable). Les domaines de stabilité du mode cône-jet-glow ont été définis selon les paramètres expérimentaux (conductivité, débit de liquide, tension).

Les propriétés des gouttelettes collectrices produites par PEHD dans l'air, à pression atmosphérique, en mode cône-jet-glow (diamètre et quantité de charge électrique des gouttelettes, courant du nébulisât) ont été définies afin d'établir les lois d'échelle selon les paramètres de régulation :

$$\begin{aligned}d_{\text{gouttelette}} &\sim Q_{\text{liq}}^{1/2} - A I_{\text{glow}} \\ I_{\text{plaque}} = I_{\text{nébulisât}} &\sim Q_{\text{liq}}^{0.2} \\ q_{\text{gouttelette}} &\sim d_{\text{gouttelette}}^2\end{aligned}$$

Le procédé présente des avantages, par rapport aux procédés de coagulation électrique déjà expérimentés, qui seront probablement des facteurs d'amélioration de l'efficacité de filtration des particules : d'une part, le niveau de charge électrique par goutte tendant vers la charge limite de Rayleigh, devrait assurer de fortes forces électrostatiques avec les particules polluantes de polarité opposée. D'autre part, le faible diamètre des gouttes permet une réduction du volume d'eau à traiter. Enfin, le fait de pouvoir contrôler et faire varier les propriétés des gouttes va permettre d'optimiser les conditions de coagulation électrostatique.

Après avoir caractérisé les gouttes collectrices, il est maintenant envisageable de mettre en place des systèmes de production d'aérosols de référence, dont les caractéristiques (taille, concentration et charge électrique) seront calibrés et variables, afin de tester l'efficacité de coagulation électrostatique des polluants particuliers avec les gouttelettes collectrices.

Remerciements

Nous tenons à remercier M. Poidatz et M. Tanguy de la société DANTEC, pour le prêt et les conseils d'utilisation de l'appareillage pour les mesures granulométriques, ainsi que l'ARC du CNRS (programme ECODEV) pour le support financier de cette étude (CNRS-EDF-ADEME).

Références

- [BOR 96] Borra J-P., Hartmann R., Marijnissen J., Scarlett B. (1996) « Destabilisation of sprays in the cone-jet mode by electrical discharges on the jet » *J. Aerosol Sci.*, **Vol.27**, pp.203-204.
- [CLO 89] Cloupeau M. and Prunet-Foch (1989) « Electrostatic spraying of liquids in cone-jet mode » *Journal of Electrostatic*, **Vol. 22**, pp.135-159.
- [GAN 97] Ganán-Calvo A.M., Davila J. and Barrero (1997) « Current and droplet size in the Electro spraying of liquids. Scaling Laws » *J. Aerosol Sci.*, **Vol. 28, No 2**, pp.249-275.
- [HAR 63] Hartmann G, Goldman A., Buchet G. (1963) « Contribution à l'étude de la décharge pré-disruptive entre pointe et plan » *Conf. Int. sur les Phénomènes d'ionisation dans les Gaz*, Paris, **Vol.2**, pp.301-303.
- [HAR 98] Hartman R.P.A. (1998) « Electrohydrodynamic atomization in the cone-jet mode » thèse de l'Université de Delft, Pays-Bas, le 3 novembre.
- [HAY 86] Hayati I., Bailey A. I., Tadros TH. F. (1986) « Investigations into the Mechanisms of Electrohydrodynamic Spraying of Liquids » *Journal of Colloid and Interface Science*, **Vol. 117, No1**, pp.205-221.
- [JAW 96] Jaworek A. and Krupa A. (1996) « Generation and characteristics of the precession mode of EHD Spraying » *J. Aerosol Sci.*, **Vol. 27, No 1**, pp.75-82.

INTERCOMPARAISON DES REPONSES EN CONCENTRATIONS MASSIQUES DU GRIMM, DU TEOM ET DU DUST TRAK DANS LE METROPOLITAIN PARISIEN

B. COUTY *, M.B. ATTOUI **, C. PARFAIT *, A. RENOUX **

*RATP, Département Environnement et Sécurité, Domaine d'Expertises de l'Environnement
13, rue Jules Vallès, 75011 Paris.

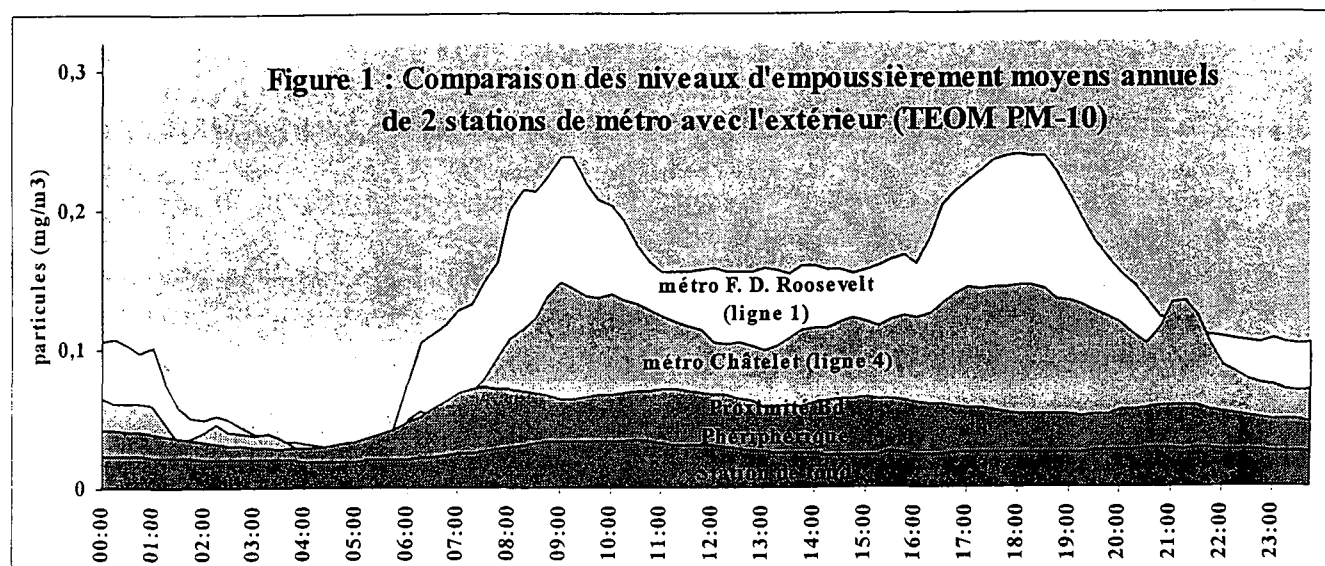
**LPATC, Faculté des Sciences, Université Paris XII
61 avenue du Gal de Gaulle, 94010 Créteil.

Les transports en commun sont le mode de déplacement le plus utilisé à Paris et en proche banlieue et, chaque jour, quatre millions et demi de personnes utilisent le métropolitain le plus dense du monde, pour des durées variant d'une demi-heure à deux heures par jour. C'est pour cela que la RATP a effectué de tout temps une surveillance sanitaire de l'ambiance du métro. Depuis quelques années, elle affine ses connaissances dans les secteurs sensibles de son réseau métropolitain, en particulier dans les parties souterraines, où les sources de contamination intérieures se superposent à celles générées par la circulation automobile en surface.

Plusieurs études du département Environnement et Sécurité ont établi que dans l'air du métro parisien, la moitié de la masse totale des particules inférieures à $10 \mu\text{m}$ se situe dans la plage granulométrique 2 à $5 \mu\text{m}$. Or, la probabilité maximale de fixation des aérosols dans les poumons se situe entre 2 et $3 \mu\text{m}$, c'est-à-dire là où le pourcentage en masse est le plus important.

Le métro : un environnement spécifique

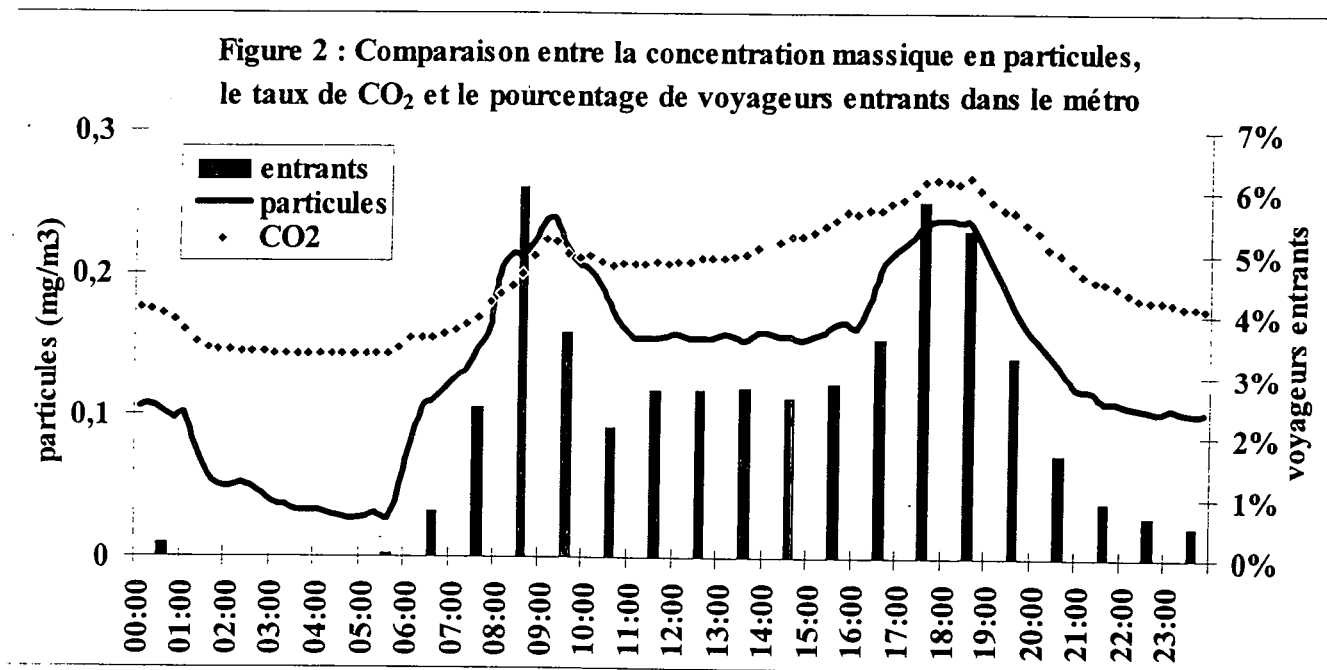
Les niveaux de particules dans le métro sont généralement supérieurs à ceux rencontrés à l'extérieur. La figure 1 (profil moyen annuel des concentrations) situe les niveaux des stations de métro Châtelet (ligne 4) et Franklin D.Roosevelt (ligne 1) du réseau SQUALES (Surveillance de la Qualité de l'Air et de l'Environnement Souterrain), par rapport aux niveaux de la Porte d'Auteuil (Boulevard périphérique) et d'une station de mesure de niveau de fond du réseau AIRPARIF. Ces mesures sont effectuées à l'aide de TEOM équipés d'une tête PM-10.



La qualité de l'air dans le métro dépend d'une part des apports d'air extérieur par la ventilation et d'autre part des sources internes liées :

- à la présence des voyageurs
- à la circulation des trains (remise en suspension des poussières par effet piston, freinage, frottements roue-rail, ...)
- aux travaux d'entretien et d'aménagement
- aux équipements
- aux infrastructures

Les résultats montrent que le niveau d'empoussièrément suit le niveau de trafic des rames et des voyageurs (figure 2). En effet, ce niveau baisse dès l'arrêt du trafic (1 heure du matin) et continue de baisser jusqu'à la reprise. Les niveaux sont relativement élevés aux heures de pointe (9 h, 18 h).



Présentation de l'étude

Une première campagne de mesure s'est déroulée en période hivernale, pendant deux mois (du 31 janvier au 2 mars 1997) sur les lignes 3, 4, 5, 8 et 9 : une cartographie des niveaux d'empoussièrément réalisée à heure fixe à l'aide d'un Dust Trak a permis d'établir des niveaux nettement plus élevés sur la ligne 5 que sur les quatre autres. Les rames transitant sur cette ligne fer utilisent comme freinage mécanique des garnitures composites (frein à disque). Pendant la période de mesure, la ventilation des stations fonctionnait théoriquement en mode insufflation (l'air neuf arrivant de l'extérieur vers les stations via les tunnels interstation où sont installés les ventilateurs).

Suite à ces résultats, la station Bréguet-Sabin de la ligne 5 (Place d'Italie-Bobigny) a été choisie pour notre deuxième campagne de mesures intitulée « Effet sur la concentration particulaire ambiante du nettoyage des voûtes d'un tunnel interstation par un train pulvérisateur ». Cette étude s'est déroulée du 26 mars au 19 juin 1997 et avait également comme objectif de comparer différents appareils de mesure de concentration massique d'aérosols, afin de justifier l'emploi de certains d'entre eux pour la détermination de la répartition spatiale des concentrations particulières sur l'ensemble du réseau métropolitain.

Description des appareils

L'entité "Expertise de la Qualité de l'Air" du département "Environnement et Sécurité" disposait pour cette étude de plusieurs types d'analyseurs en temps réel :

- 1 TEOM,
- 2 DustTrak,
- 2 Grimm.

1) le compteur de poussières Grimm

Cet appareil fournit en réponse une répartition granulométrique en nombre de particules par unité de volume, par principe optique. Une diode laser illumine une cavité optique où passent les particules échantillonnées. La lumière diffusée est collectée dans un angle de 60 à 120° à l'aide d'une photodiode qui la transforme en impulsions électriques. Un analyseur de pics classe ces impulsions suivant leur hauteur dans différents canaux correspondant à 7 plages granulométriques : 0.8-1 ; 1-2 ; 2-3.5 ; 3.5-5 ; 5-7.5 ; 7.5-10 ; et 10-15 µm. L'échantillonnage est effectué à l'aide d'une tête de prélèvement isocinétique, avec un débit de 1,2 l/mn. Il est possible de calculer la concentration massique à l'aide d'un facteur de correction C, donné par la relation suivante :

$$C = \frac{\text{masse différentielle du filtre interne}}{\text{valeur moyenne de la mesure optique}}$$

2) le Dust Trak

Cet appareil portable permet d'apprécier en temps réel la concentration massique des aérosols. Son principe de fonctionnement est la mesure de la lumière diffusée par les particules à l'aide d'un photodétecteur à 90°, lors de l'émission d'une lumière laser. Ce type d'appareil donne une masse équivalente optique d'un nuage de particules, dépendant des propriétés optiques de l'aérosol de calibration (poussière d'Arizona, caractérisée par une large répartition granulométrique). Il est muni d'un cyclone dont l'efficacité de coupure est de 50% à 4 µm (débit 1,7 l/mn). Sa plage de mesure s'étend de 1 µg/m³ à 100 mg/m³, pour des diamètres allant de 0,1 à 10 µm. Notons que le Dust Trak est très sensible aux variations instantanées engendrées par l'aérosol tabagique, encore trop souvent rencontré dans le métro.

3) l'analyseur de poussières temps réel TEOM 1400A

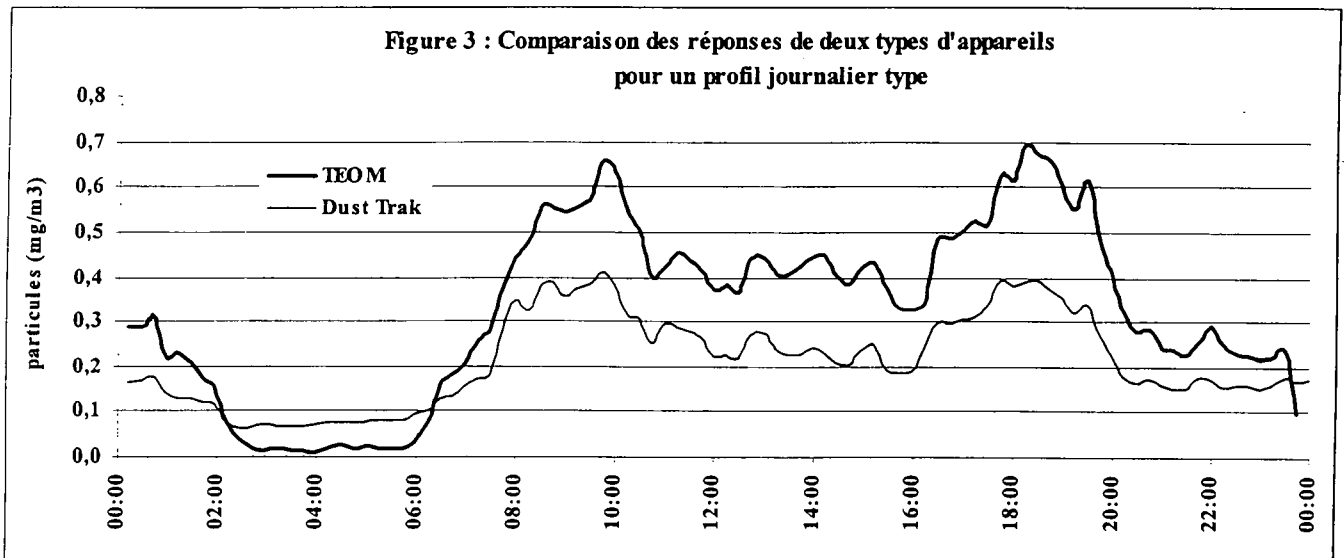
Le TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) est composé d'une microbalance et d'une unité de contrôle. Il est associé à une tête de prélèvement PM-10 dans le cadre de cette étude (coupure à 10 µm). La microbalance permet la mesure de la masse des aérosols déposés sur un filtre. Elle utilise un élément conique oscillant sur lequel est posé un filtre absolu. La vibration à la fréquence propre de l'élément oscillant, entretenue pour maintenir une amplitude constante, est mesurée en temps réel. La masse d'aérosols prélevée dans l'atmosphère déposée sur le filtre est proportionnelle à une différence de fréquence d'oscillation du tube. L'ensemble est chauffé à une température régulée de 50°C pour éviter des condensations intempestives des vapeurs contenues dans l'air échantillonné. Le débit d'aspiration est de 1 m³/h (16,67 l/mn), et le débit d'échantillonnage de l'air sur le filtre est de 3 l/mn. Les intérêts de cette méthode sont la collection des poussières à température fixe et la pesée simultanée à la collection, la standardisation de la méthode de collection et de mesure, et la désignation d'"équivalence" par l'USEPA pour la mesure en continu de la fraction PM-10.

Méthodologie

Le TEOM, un des Grimm et un des Dust Trak ont été placés dans une cage sur le quai de la station Bréguet-Sabin, à environ 2 m du sol et à 0,5 m du mur. Pour des raisons pratiques, le point de prélèvement sur l'axe vertical n'a pas pu être le même pour ces 3 appareils. De plus, le Dust Trak a dû être raccordé à une ligne de prélèvement en Téflon d'une cinquantaine de cm, et la tête de prélèvement du TEOM a été reliée à un coude. Une petite cage contenant un Dust Trak et un Grimm a également été placée dans un renforcement du tunnel interstation, entre les stations Bréguet-Sabin et Bastille. L'emplacement en tunnel a empêché toute implantation d'un deuxième TEOM. Les temps d'échantillonnage étaient de 15 mn. L'hygrométrie, pouvant influencer les résultats, se situait entre 30 et 40%.

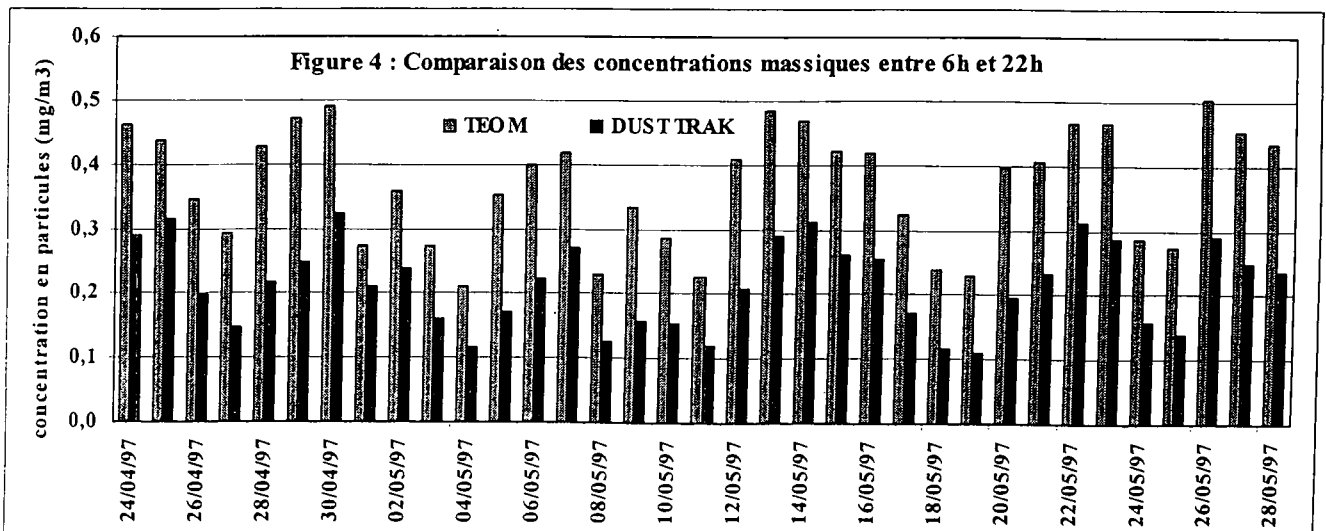
Résultats des mesures de comparaisons

Les profils de concentration relevés par les appareils TEOM et Dust Trak situés sur le quai de la station fluctuent le plus souvent de la même manière, comme le montre la figure 3 :

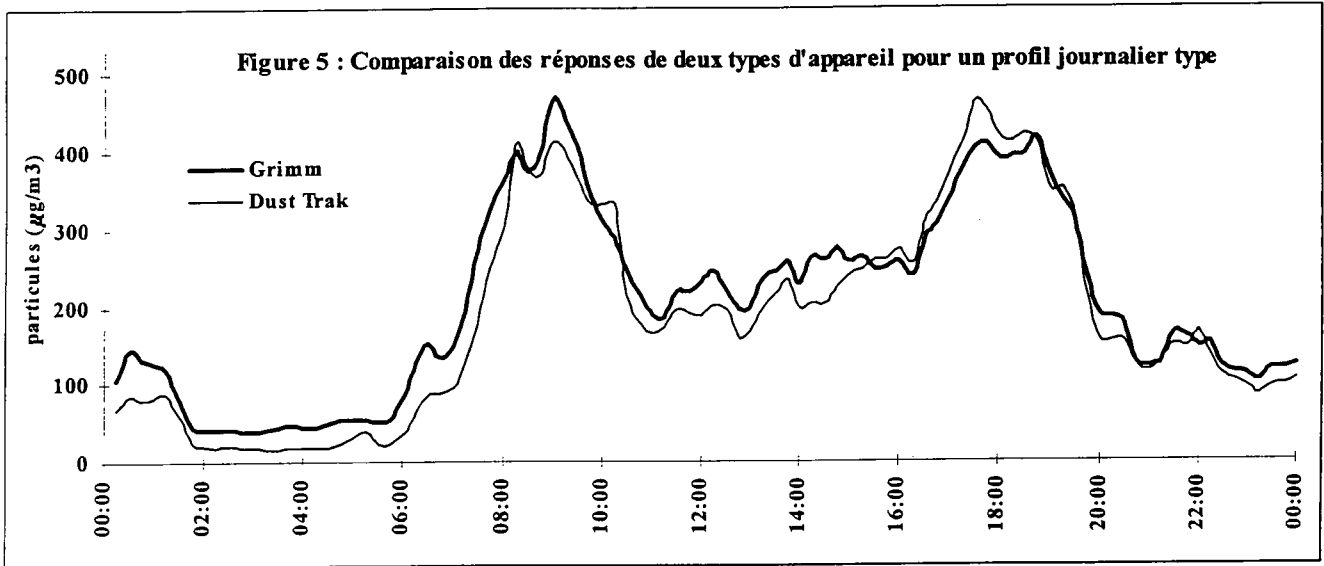


Cependant :

- hors période d'exploitation du réseau (2h - 6h), les niveaux mesurés par le Dust Trak sont supérieurs à ceux du TEOM,
- les concentrations relevées entre 6h et 22h par le DustTrak sont nettement inférieures à celles relevées par le TEOM (figure 4), de l'ordre de 40%.



La comparaison des concentrations massiques obtenues par les deux appareils à principe optique ont donné des résultats assez similaires (figure 5). Le Dust Trak est toujours utilisé avec son cyclone à 4 μm , et la plage concernée du Grimm est celle allant de 0,8 à 5 μm , en appliquant un facteur de correction théorique de 4 (notre pesée ayant donné des résultats aberrants).



Discussion

Le TEOM a été considéré ici comme la méthode de référence, car il donne des résultats identiques à des prélèvements sur filtre [1]. Les résultats donnés par le Grimm sur le quai de la station Bréguet-Sabin ont montré que 75 % de la masse des aérosols compris dans la plage 0,8-10 μm se situait entre 0,8 et 5 μm , alors que 90 % du nombre de particules restait dans les plages inférieures à 2 μm . Par comparaison avec le TEOM (dont l'efficacité de coupure à 4 μm est d'environ 95 % [2]), le Dust Trak équipé du cyclone 4 μm a eu tendance à sous-estimer les concentrations observées habituellement en période d'ouverture du métro. Comme l'a montré ATTOUI [3], cet appareil donne une réponse massique satisfaisante pour les particules supérieures à 1 μm mais a tendance à sous-estimer les concentrations en particules submicroniques. Il a été observé à plusieurs reprises que la réponse d'un Dust Trak était sensiblement identique pour une coupure à 10 ou à 4 μm , dans l'atmosphère qui nous concerne [4]. En période de nuit, lorsque le trafic ferroviaire était interrompu et qu'il n'y avait plus de production de particules en souterrain, les concentrations observées par la microbalance étaient presque nulles.

Des écarts dus :

- à la longueur et à la forme des lignes de prélèvement (à cause des pertes sur les parois)
- à la différence du débit d'échantillonnage
- aux différents pouvoirs de coupure

sont envisagés mais n'ont pas été étudiés précisément.

Le Grimm a une bonne précision au niveau du comptage optique (d'après une étude réalisée au Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations [5]), mais le passage aux concentrations massiques à l'aide du facteur de correction qui se veut représentatif de l'atmosphère étudiée peut être entaché de plusieurs erreurs, dont la manipulation et la pesée du filtre interne. Il a également été observé en 1994 que le Grimm et le TEOM avaient des réponses voisines en période d'activité, mais des réponses très différentes en atmosphère polluée (le Grimm sous-estimant les fortes concentrations). Notre comparaison avec le Dust Trak nous a amené ainsi à la seule conclusion que les réponses des deux appareils fluctuaient de la même manière.

Conclusions

Pendant notre deuxième campagne de mesures de 3 mois, nous avons pu obtenir suffisamment de résultats pour réaliser une intercomparaison de trois appareils à principe physique différent, régulièrement utilisés dans notre service. Le Grimm et le Dust Trak dépendent des propriétés optiques des aérosols, du facteur de forme, de la rugosité de surface des particules, et sont étalonnés avec un aérosol qui n'est pas forcément le même que l'« aérosol-type » observé dans le métro. Le TEOM, quant à lui, dépend uniquement de la masse des aérosols déposés sur le filtre. Nos résultats, qui ont montré des concentrations plus faible pour le Dust Trak que pour le TEOM, ne peuvent pas être généralisés à toute les lignes du réseau, chacune ayant sa spécificité (matériel roulant sur pneu ou sur roue fer, présence ou non de ballast,...). Il est tout de même important de préciser que chaque appareil a une fonction précise : les TEOM, automatiques et présentant un certain nombre d'avantages par rapport au prélèvements manuels, sont utilisés dans le cadre de notre réseau de surveillance de la qualité de l'air « SQUALES », alors que les Dust Trak, portatifs et rapide d'utilisation, nous servent plutôt à des études de cartographie d'empoussièrement du réseau. Les Grimm, quant à eux, sont utilisés à des fins plus spécifiques. Suite aux résultats obtenus, un projet d'intercomparaison des appareils TEOM - Dust Trak - Grimm avec d'autres techniques de mesures (prélèvements sur filtres, impacteur en cascade) est en préparation.

Références

- [1] ATTOUI et al., « Comparaison entre un prélèvement sur filtre et un préleveur automatique (TEOM) », octobre 1998
- [2] Efficacité d'échantillonnage de la tête de prélèvement PM10 d'après Wind Tunnel Test, Report N°29 A, Res tri Inst, 1991, p.13
- [3] ATTOUI, « Etalonnage en débit et en concentration massique d'un Dust Trak 8520 », 1996
- [4] COUTY, « Rapport de stage de DESS S.A.G.A. Paris XII », 1997
- [5] LE GUERN, « Rapport de stage de DESS S.A.G.A. Paris XII », 1994

ECOMESURE

Etudes Contrôle Mesure

Expéditeur

- Nom
- Fonction
- 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 marques au verso.
 - N'oubliez pas d'inscrire votre nom et votre adresse complète.
- Nous vous en remercions par avance.

Environnement

- Analyseurs de poussières en continu
- Séquenceurs de filtres
- Préleveurs de poussières
- Granulomètres par impaction en cascade
- Analyseurs de gaz
- Calibrateurs
- Échantillonneurs de C.O.V.

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
- Analyseur de C.O.T.
- Générateurs DOP pour test filtres HEPA

Émission

- Analyseur massique de poussières en temps réel
- Préleveurs isocinétiques pour cheminées
- Analyseur d'imbrûlés dans les cendres
- Analyseurs de gaz
- Analyseur de C.O.V., H.A.P.

Hygiène industrielle-sécurité

- Analyseurs et détecteurs de poussières portatifs
- Analyseur combiné gaz/poussières portatif
- Granulomètres par impaction en cascade
- Biocollecteurs
- Mesureurs de champs électromagnétiques

Aérosols

- Générateurs d'aérosols monodispersés
- Générateurs de poussières à grande capacité
- Bancs de test automatiques pour filtres
- Granulomètres laser
- Étalonnage de compteurs de particules air et liquides et analyseurs de poussières

ECOMESURE

B.P. 13 - F-91640 Briis-sous-Forges

Tél. : (+33) 01 64 90 55 55 - Fax : (+33) 01 64 90 55 66 - e-mail : ecomesur@aol.com

RION/ARTI (Air et Gaz)

Compteurs de particules pour salles blanches et gaz sous pression

- 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

Accessoires

- Diffuseur pour gaz haute pression
- Générateurs d'aérosols
- Billes de latex calibrées
- Étalon de débit portatif
- Diluteur

RION/ARTI (Liquides)

- Applications : Microélectronique
- Pharmacie
- Eau potable
- Hydraulique
- Autres
- Sensibilité : 0,05 μ
- 0,1 à 0,5 μ
- 1 μ et plus
- Produits : Eau potable
- Eau DI
- Solvant, acides (sauf HF), Bases
- HF
- Photoresist
- Huiles
- Autres

DEKATI OY

- Impacteurs en cascade basse pression (0,035 à 10 μ)
- Version manuelle
- Version en temps réel
- Impacteurs PM-10, PM-2,5, PM1,0

A.P.I.

Analyseurs de Gaz SO₂, NO-NO_x-NO₂, CO, O₃, NH₃, H₂S, HC

- Environnement
- Emission

Calibrateurs

- Pour analyseurs d'ozone
- Multigaz : Ozone, NO, NO₂, CO, HC, SO₂, TPG

TOPAS

- Générateurs d'aérosols monodispersés
- Générateurs de DOP, DEHS, latex, ...
- Générateurs de poussières
- Granulomètres laser
- Analyseur d'aérosols
- Bancs de test automatisé pour filtres à air et gaz
- Appareils de tamisage

ENVIROMENTOR

- Mesureurs de champs électriques
- Mesureurs de champs magnétiques

RUPPRECHT & PATASHNIK

Environnement

- Analyseurs gravimétriques de poussières en suspension TEOM 1400 A
- Préleveurs et séquenceurs de filtres PARTISOL PLUS
- Analyseurs de carbone dans les poussières en suspension RP 5400
- Denudeurs annulaires CHEMSPEC
- Analyseurs des sulfates et nitrates particuliers

Emission

- Analyseurs en continu de poussières en gaine et cheminée
- Analyseurs en continu du carbone imbrûlé dans les cendres volantes

Hygiène

- Analyseurs et détecteurs de poussières portatifs
- Analyseurs combinés gaz/poussières portatifs

ECOMESURE

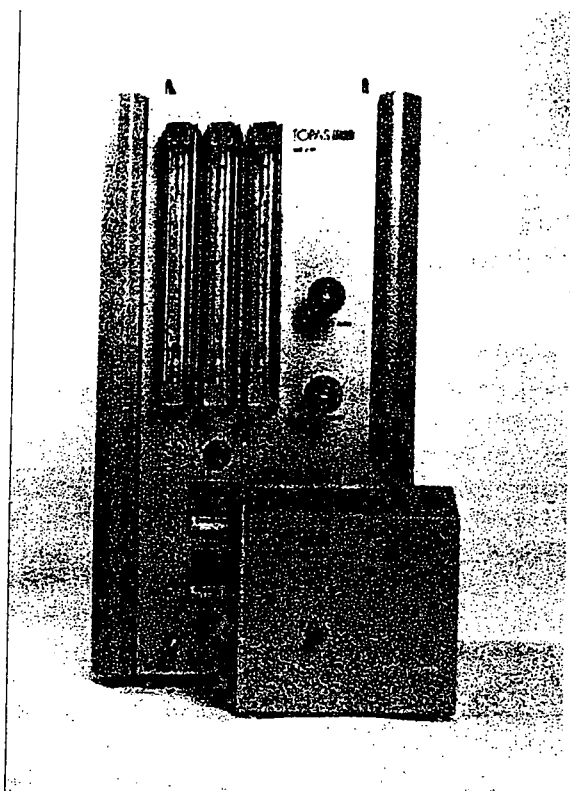
B.P. 13 - F-91640 Briis-sous-Forges

Tel (+33) 01 64 90 55 55 - Fax (+33) 01 64 90 55 66 - e-mail ecomesur@aol.com

ECOMESURE

Etudes Contrôle Mesure

TOPAS



Produits



Générateurs d'aérosol

Diluteurs pour compteurs de particules

Granulomètres

Analyseurs d'aérosols

Générateurs de poudres

Applications :

⇒ Physique des aérosols

⇒ Tests de filtres

⇒ Toxicologie, inhalation

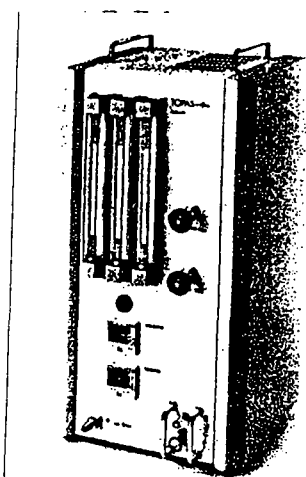
⇒ Optimisation de procédés :
combustion, céramiques, etc.

ECOMESURE

B.P. 13 - 91640 Briis Sous Forges

Tél. : (+33) 01 64 90 55 55 - Fax. : (+33) 01 64 90 55 66 - e-mail : ecomasure@aol.com

Générateurs d'Aérosols monodispersés série SLG



Basés sur le principe de Sinclair-La Mer, ces générateurs produisent un aérosol monodispersé liquide ou solide hautement concentré.

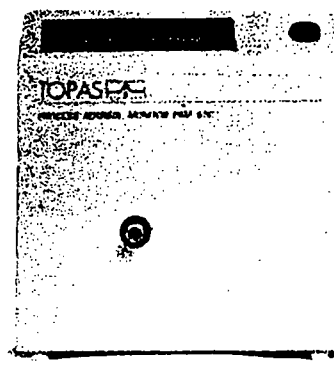
Le principe de Sinclair-La Mer repose sur la condensation hétérogène contrôlée d'un produit en phase vapeur sur des noyaux de condensation produits séparément. Les noyaux de condensation sont produits par atomisation puis séchage d'une solution de NaCl. La phase vapeur est généralement produite à partir de liquides (DEHS, DOP,...) ou solides (paraffine, cires...)

En faisant varier les conditions opératoires du Générateur (concentration en noyaux de condensation, température de saturation...), on change facilement la taille de l'aérosol monodispersé obtenu dans la gamme 0.1 à 8 μ m.

Caractéristiques typiques pour le DiethylhexylSebacate (DEHS) :

- . Gamme ajustable de 0,1 à 8 μ m.
- . Ecart type géométrique : < 1,15
- . Concentration : 10⁶ particules /cm³

Analyseur d'Aérosols PAM



. Mesure continue et simultanée de la concentration en nombre et de la taille moyenne des particules.

. Spécialement recommandé pour le contrôle de générateurs d'aérosol, d'inhalateurs, de chambres d'exposition etc...

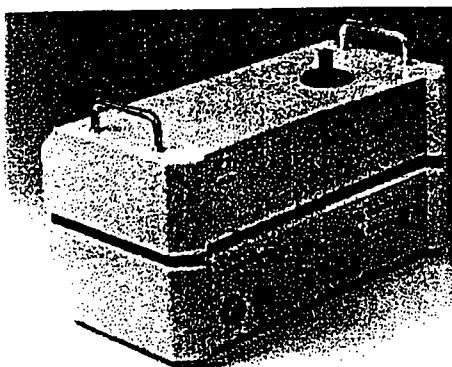
Le PAM mesure la transmission d'un faisceau laser à travers une cellule traversée par l'aérosol à contrôler. A partir de cette mesure le PAM calcule la concentration en nombre de particules et si l'indice de réfraction est connu, la taille moyenne de l'aérosol.

Le PAM peut-être connecté directement sur la sortie des générateurs d'aérosol TOPAS du type SLG.

Un rideau d'air filtré protégeant les optiques permet d'utiliser le PAM en continu à très haute concentration sans dégradation des performances.

Caractéristiques :

- . Gamme de taille : 0,5 à 10 μ m
- . Gamme de concentration : 10⁴ à 10⁷ particules/cm³
- . Débit échantillonné : 10 à 500 l/h



- . Mesure de la répartition granulométrique d'un aérosol. (Spray, poussières, poudres...)
- . Caractérisation d'aérosols pharmaceutiques.
- . Tests de filtres.

Le principe est basé sur la mesure individuelle de la taille de chaque particule par mesure de la lumière diffusée à 180°.

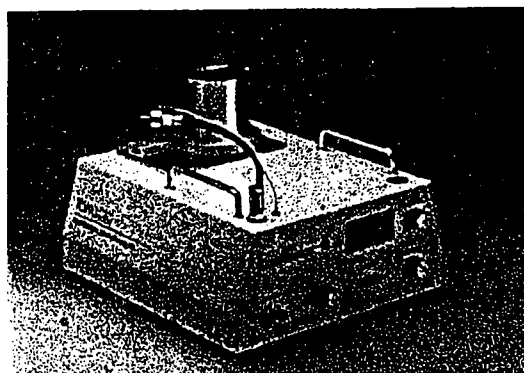
La zone illuminée par le laser Helum Neon est suffisamment étroite pour permettre de mesurer les particules une à une même à très forte concentration.

La répartition granulométrique des particules est obtenue par l'intermédiaire d'un analyseur de hauteur de pic (PHA) à 64 canaux (128 en option).

La gamme couverte s'étend de 0,3 μm à 20 μm à des concentrations pouvant atteindre 10⁵ particules/cm³. L'exploitation et la sauvegarde des

Caractéristiques :

- . Gamme : 0,3 à 20 μm
- . Concentration max. : 10⁵ particules/cm³
- . Canaux : 64 (128 en option)
- . Débit : 3 l/mn



- . Analyse de poussières collectées par filtration, impaction, centrifugation, précipitation etc...
- . Analyse de la granulométrie de combustibles solides.
- . Développement de procédés impliquant l'usage de poudres (céramique, etc...)

Le développement de nombreux procédés nécessite la mise en suspension continue et stable de quantités dosées de particules solides. Une solution éprouvée consiste à utiliser une bande déroulante contenant un certain nombre de segments équidistants pouvant contenir un volume prédéfini de particules. Il suffit de contrôler la vitesse de déroulement de cette bande pour obtenir un approvisionnement stable en particules sur une large gamme de concentration.

L'extraction des particules hors de la bande est assurée par un injecteur selon la norme ISO 5011.

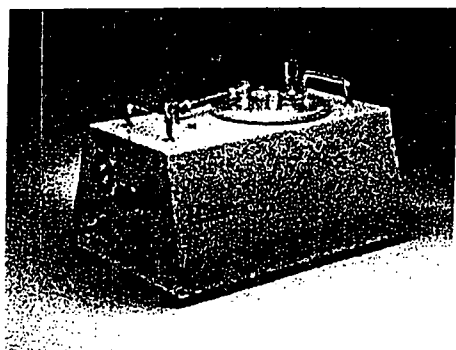
L'approvisionnement en poussières de la bande est effectuée par une trémie.

La qualité de construction de ce générateur autorise une stabilité de génération en masse excellente sur une longue période.

Caractéristiques :

- . Poids d'échantillon : Environ 220 g
- . Génération : 3 à 640 g/h
- . Débit d'entraînement : 0,5 à 2,5 m³/h
- . Concentration : 1,2 à 2300 g/m³
- . Poids : 9,5 kilos

Générateurs d'aérosols ATM pour test de filtres HEPA



Les Générateurs ATM ont été spécialement conçus pour le test des filtres HEPA et ULPA utilisés couramment en salles blanches et sur hottes à flux laminaires.

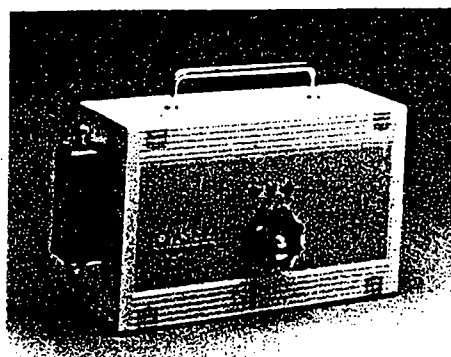
Ces générateurs sont très légers et fonctionnent sur 12 volts continu par l'intermédiaire d'un adaptateur secteur.

Certains modèles sans pompe peuvent être branchés directement sur une prise d'air comprimé. La quantité d'aérosol généré est suffisante pour les test de filtres de surface atteignant jusqu'à 10 m² (14500 m³/h à 0,4 m/s)

Caractéristiques :

- . Alimentation : 12 Volts continu par adaptateur secteur ou air comprimé
- . Débit : 50 à 250 l/h. (Débit ajustable sur certains modèles)
- . Produits : DOP, DEHS, paraffine, sphères de latex solutions salines etc...
- . Concentration totale en particules : >10⁴ particules par cm³
- . Autonomie : 25 h (80 ml de liquide)
- . Poids : 4,5 kilos

Diluteurs TOPAS DIL



Associés aux générateurs d'aérosol TOPAS ATM, les diluteurs DIL permettent de tester les filtres HEPA et ULPA selon la norme VDI 2083.

Le test selon VDI 2083 permet d'utiliser un compteur de particules standard au lieu d'un photomètre coûteux et d'utilisation épisodique pour mesurer les concentrations en particules amont et aval.

Afin de mesurer la concentration en aérosol en amont du filtre, le compteur de particules est branché sur un diluteur DIL qui divise la concentration par un facteur 100 (ou 10). Cette dilution permet d'utiliser le compteur de particules sans crainte d'erreur de coïncidence.

L'intérêt des diluteurs DIL est de fonctionner sans air comprimé. La division du débit par un facteur 100 (ou 10) est surveillée par une électronique interne qui indique à l'opérateur que le diluteur est parfaitement étalonné.

Caractéristiques :

- . Débit de sortie : 2,8 l/mn ou 28 l/mn
- . Alimentation : 12 Volts continu par adaptateur secteur
- . Facteur de dilution : 10 ou 100 (à préciser à la commande)

ECOMESURE

B.P. 13 - 91840 Briis Sous Forges

Tel. : (+33) 01 64 90 55 55 - Fax. : (+33) 01 64 90 55 66 - e-mail : ecomesur@aol.com

Contrôler

la qualité de l'air.

**HYGIÈNE
INDUSTRIELLE**

ENVIRONNEMENT

**ZONES
À CONTAMINATION
CONTRÔLÉE**

**INDOOR
AIR QUALITY**



Intertek Testing Services
I.C.S.

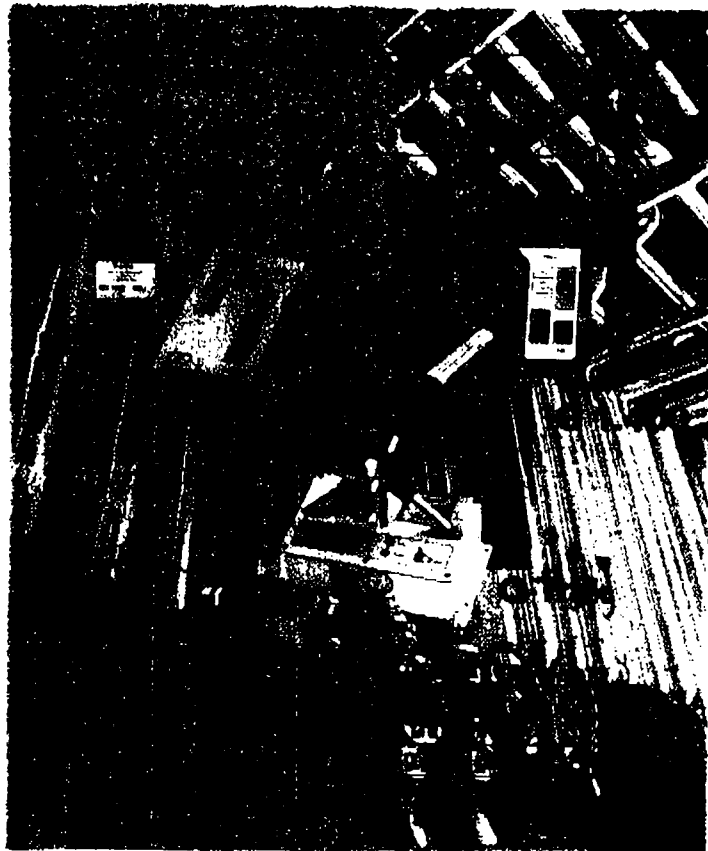
91, rue du Général de Gaulle • BP1 • 27109 Le Vaudreuil Cedex • France
Tél. +33 (0)2 32 09 36 26 • Fax +33 (0)2 32 09 36 28

DES INSTRUMENTS DE MESURES SELECTIONNES



**POUR LEUR
FIABILITE**

**ET LEUR
PERFORMANCE
OPTIMALE**





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.

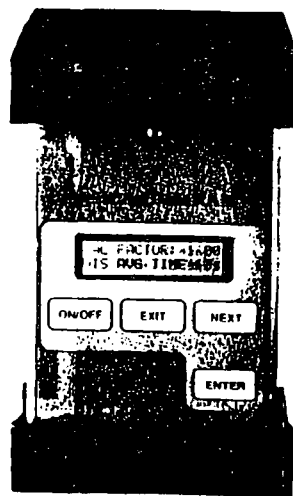
Les néphélomètres couvrent la gamme de 0.0001 à 400 mg/ m³ pour des particules dans la gamme de 0.1 à 10 micromètres. C'est pourquoi, pour la grande majorité des applications un néphélomètre est l'instrument le mieux adapté.

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

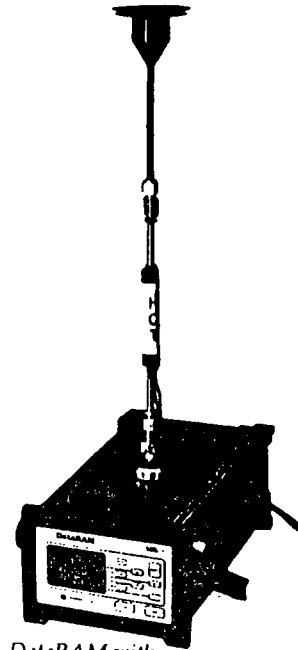


- Coefficient de diffusion : $1,5 \times 10^{-6}$ à $0,6$ m⁻¹ à une longueur d'onde de 880 nm
- Précision (2 -sigma) : ± 10 µg/m³ pour moyenne sélectionné sur 1 seconde
 $\pm 1,5$ µg/m³ pour moyenne sélectionné sur 60 secondes
- Résolution : 0,1 % de la valeur affichée ou 0,001 mg/m³ pour les concentrations < 1mg/m³
- 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

1 rue du Ruisseau Blanc, F-91620 Nozay

Tél.: 01.64.49.63.50 Fax: 01.69.01.12.05

Email: schaefertechniques@compuserve.com

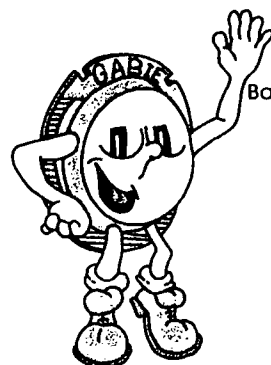
Badges de prélèvement

Badges G.A.B.I.E.*

de prélèvement sur charbon actif pour vapeurs organiques.

Badges à réaction colorimétrique pour :

- isocyanates (TDI/PPDI)
- phosgène
- hydrures
- hydrazine : M.M.H.



Badge G.A.B.I.E.

Capteur individuel de poussière CIP 10**

CIP 10 à mousse rotative pour le prélèvement de la fraction alvéolaire, thoracique ou inhalable des aérosols.

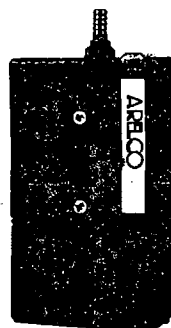


Préleveur CIP 10

Pompes de prélèvement

Pompes individuelles à débit constant réglé

- modèles PCEX 7 / 3 / R : 500 à 4000 cc/min. (5 à 4000 cc/min avec accessoire)
- modèle 224-52 : 750 à 3000 cc/min (5 à 500 cc/min avec accessoires)
- modèle POCKET PUMP : 5 à 250 cc/min avec liaison PC



Préleveurs Individuels

Pompes de prélèvement d'ambiance

- modèle BRAVO M2 : 0,1 à 25 l/min.
- modèle BRAVO H2 : 0,5 à 40 l/min.
- modèle BRAVO R : 0,1 à 12 l/min. pour amiante.
- stations de prélèvements multiples OCTOPUS et SENTINEL.
- modèle isocinétique ISOSTACK PLUS.



Accessoires de prélèvement

Gazeux

- tubes de prélèvement en charbon actif, florasil, gel de silice, tenax, XAD 2...
- supports de tubes de prélèvement monovoies ou multivoies, formats standards, larges, jumbo ou multiples.
- barboteurs individuels.
- sacs d'échantillonnage en Tedlar de 1 à 200 litres.

Poussières

- porte filtre diam. 37 mm pour fraction inhalable.
- cyclone 10 mm nylon pour fraction alvéolaire.
- Support de filtre avec sélecteur modèle C.A.Th.I.A.*
- support de filtre diam. 37 mm pour fraction totale maximale collectée des particules ambiantes.
- vaporiseur d'acétone pour transparence des filtres.

Matériels de contrôle des pompes

- débitmètre étalon à bulle de savon.

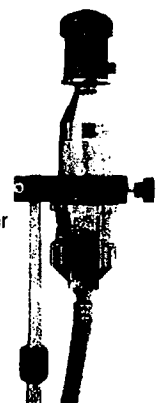
Logiciel

- logiciel A.L.T.R.E.X.*** d'analyse statistique de résultats de prélèvements.



Modèle BRAVO M2

Support filtre-sélecteur C.A.Th.I.A.



Détecteurs de gaz toxiques

- individuel monogaz PM 7700 avec mémorisation pour ressortir les historiques et rapports de données sur P.C. avec capteurs interchangeables pour : CO, H₂S, NO, NO₂, SO₂, Cl₂, HCN, NH₃, O₃, EtO, HCl, O₂, H₂.

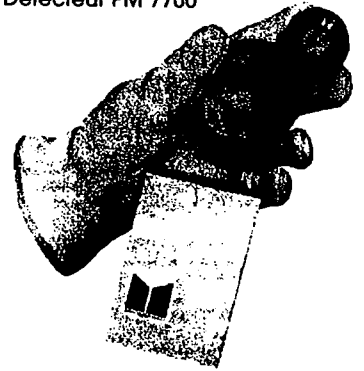


- individuel multigaz PM 7740 avec acquisition de données pour O₂, explosivité et deux gaz toxiques interchangeables.

- mural monovoie ou multivoies pour explosivité, O₂, CO, H₂S, NO, NO₂, SO₂, Cl₂, HCN, NH₃, HCl, H₂.

- individuel portable ou mural pour phosgène, TDI, MDI, HDI, IPDI, Cl₂, HYDRURES, GAZ ACIDES (HF, HCl)

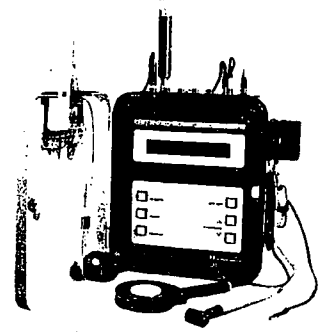
Détecteur PM 7700



Station de contrôle portable multiparamètres

avec mémorisation pour ressortir les historiques et rapports de données sur P.C. pour les mesures :

- d'hygrométrie relative, température, CO₂ et différents capteurs (6 gaz toxiques, O₂, poussière, température, vitesse, bruit, mV, Volts et autres...)



Station Multiparamètres

Détecteurs pour aérosols

- détecteur portable de vapeurs de mercure
- détecteur opto électronique de poussière

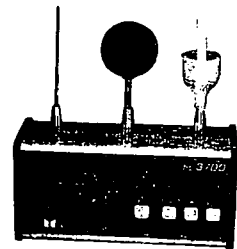


Confort thermique

- individuel pour les mesures de la température cutanée et le rythme cardiaque avec mémorisation pour ressortir les historiques et rapports de données sur P.C.

- portable pour les mesures de stress et confort thermique avec mémorisation pour ressortir les historiques et rapports de données sur P.C.

Station contraintes thermiques



Bruit

- sonomètre dosimètre intégrateur avec mémorisation pour ressortir les historiques et rapports de données sur P.C.
- logiciel A.L.T.R.E.X.*** d'analyse statistique de mesures de bruit.



Sonomètre dosimètre dB 3100

Acquisition de données individuelles

- monovoie ou multivoies de signaux mV ou Volts avec mémorisation pour ressortir les historiques et rapports de données sur P.C.

Acquisition dL 3200



*Développé par l'INRS
(Institut National de Recherche et de Sécurité)

**Développé par INERIS (anciennement CERCHAR)

INERIS : (Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques)

***Développé par l'INRS et Rhône-Poulenc-Industrialisation



Malvern Instruments S.A.

Parc Club De l'Université

30 rue Jean Rostand

91893 Orsay Cedex

Tél. : 01 69 35 18 09

Fax : 01 60 19 13 26

COMPARAISON DE DIFFERENTES TECHNIQUES POUR LA MESURE DE JETS D'INJECTEURS A ESSENCE

Jean-François LE COZ - Division Techniques d'applications énergétiques
IFP - Rueil Malmaison

Ce texte relate des travaux présentés au 9ème symposium international sur l'application des techniques laser à la mécanique des fluides qui s'est tenu au Portugal du 13 au 16 juillet 1998.

RESUME :

L'étude suivante compare l'utilisation de différentes techniques de mesure de la taille des gouttelettes générées par des injecteurs utilisés dans l'industrie automobile.

Un granulomètre à diffraction laser et deux systèmes à phase Doppler ont été comparés et leurs résultats vérifiés par un système d'analyse d'images.

L'un des deux systèmes à phase Doppler donne des résultats plus satisfaisants, mais les deux instruments sont biaisés par la haute concentration des gouttelettes et pratiquement aucune gouttelette ne peut être mesurée dans la partie principale du jet. Les mesures par diffraction laser sont par contre possibles lorsque le faisceau est atténué de plus de 90 % de sa puissance initiale et que ces résultats sont en accord avec les estimations faites à partir d'images de l'absorption lumineuse à travers le jet.

INTRODUCTION :

L'injection directe d'essence peut permettre de diminuer la consommation des moteurs, quand ils sont utilisés avec des mélanges pauvres et non homogènes. L'injecteur est un élément clé de ces moteurs. La qualité de l'aérosol généré par l'injecteur est essentielle pour réaliser une bonne préparation du carburant, c'est-à-dire des petites gouttelettes et une rapide évaporation de l'essence.

MONTAGE EXPERIMENTAL :

La cellule d'injection est constituée d'une chambre équipée de 4 fenêtres permettant l'accès des faisceaux lumineux et la mesure. Les injecteurs industriels testés sont constitués d'une chambre de rotation et d'un orifice qui s'ouvre et se ferme sous l'action d'une bobine électromagnétique. La pression d'injection de l'essence est comprise entre 20 bars et 80 bars. Le gaz dans la cellule d'injection est de l'azote à température ambiante sous des pressions de 1 à 5 bars pour reproduire les densités des chambres de combustion au moment de l'injection (figure 1). L'absorption de la lumière d'un stroboscope est enregistrée par une caméra CCD afin de visualiser la forme du jet.

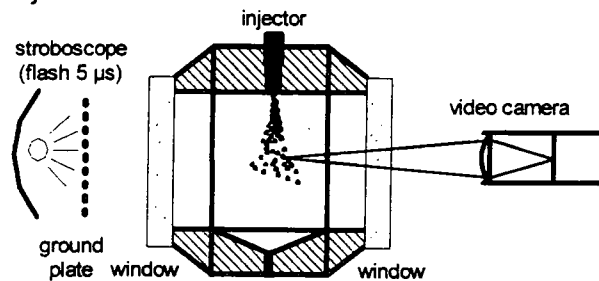


Figure 1 : Cellule d'injection avec analyse d'image

Le schéma de montage d'une phase Doppler est montré figure 2. La vitesse maximale mesurable par le système TSI IFA est de 50 mètres/seconde dans l'aérosol et la taille maximale des gouttelettes est de 100 microns. La zone de mesure a été réduite afin de diminuer la probabilité d'avoir plus d'une gouttelette en même temps présente dans la zone de croisement des deux faisceaux laser. Les sorties du module de réceptions sont constituées de deux fibres optiques qui sont connectées soit sur le module PM de TSI, soit sur celui d'Aérométrics. Les processeurs de signaux sont le IFA 750 de TSI ou le RSA 3000 d'Aérométrics. Le RSA est configuré avec deux détecteurs au lieu de 3 en standard.

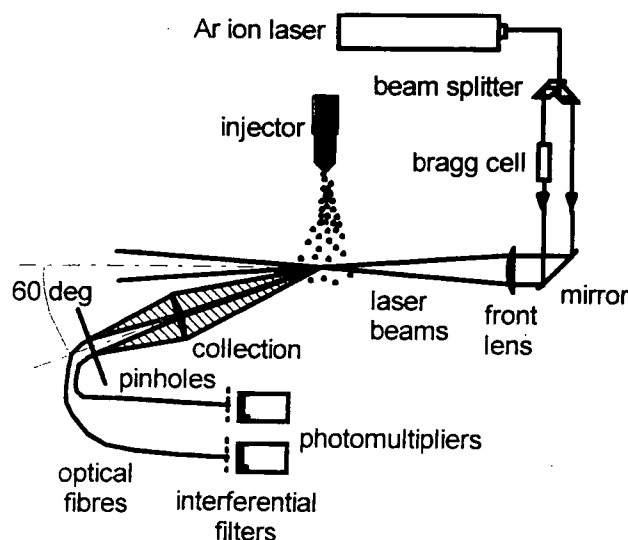


Figure 2 : Montage des phases-Doppler

Le système de mesure par diffraction laser est un Spraytec modèle RTS 5001 de chez MALVERN (figure 3). La lentille est de 200 mm et la gamme de taille s'étend de 1 à 400 microns .

Du fait que l'aérosol ne doit pas être trop près de la lentille, la lentille de 200 mm permet de travailler sur une distance de 300 mm. Le diamètre du faisceau laser est de 10 mm, ce qui signifie qu'une grande partie de l'aérosol va être intégrée dans la zone de mesure. La période d'acquisition fixée est de 0.4 ms, soit dix fois supérieure aux granulomètres laser les plus rapides.

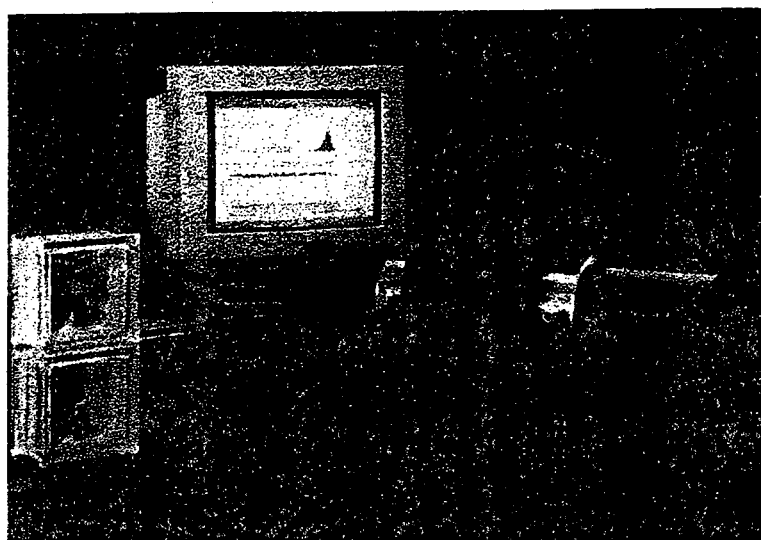


Figure 3 : Granulomètre laser Spraytec

COMPARAISON DES RESULTATS :

Les mesures ont été obtenues dans les mêmes conditions pour les trois instruments. Les résultats figurent dans le tableau 1 et mettent en évidence qu'à une pression d'injection de 2.5 MPa et pour des pressions d'azote de 0.12 et 0.5 Mpa, le système TSI révèle des déphasages négatifs conduisant à des diamètres juste inférieurs au maximum mesurable, c'est-à-dire 135 microns (figure 4). La majeure partie des gouttelettes a été mesurée dans la queue de l'aérosol quand la concentration a baissé, ce qui ne permet pas de suivre la partie la plus importante de l'injection.

Pression d'injection (Mpa)	Pression d'air (Mpa)	TSI – IFA		Aérométrie RSA		Spraytec Dv(0.5)
		D(1,0)	D(3,0)	D(1,0)	D(3,0)	
2,5	0,12	10	27	12	20	30
5	0,12	20	40	12	17	20
8	0,12	-	-	-	-	20

Tableau 1 : Comparaison des résultats

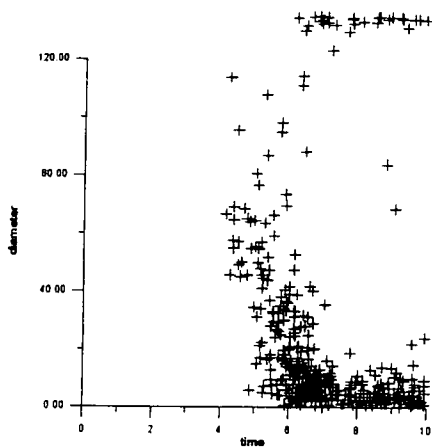


Figure 4 : Système TSI à 2,5Mpa de pression d'injection

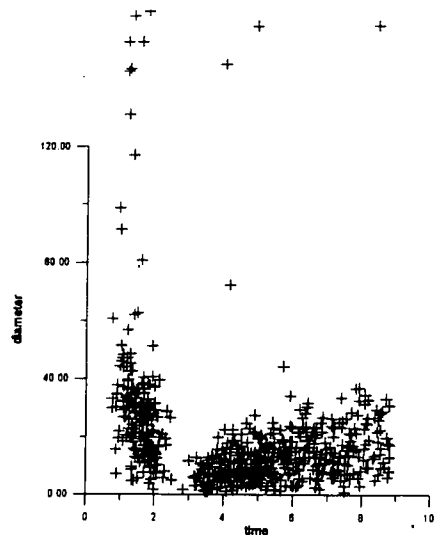


Figure 5 : Système Aérometrics à 2,5Mpa de pression d'injection

Les résultats du système Aérometrics sont présentés figure 5. Dans un cas à faible pression d'azote Les vitesses de 20 mètres par seconde sont en accord avec les images prises par la caméra. Mais à 0.5 MPa de pression d'azote, le système n'arrive plus à mesurer correctement et le taux d'acquisition des données est très faible dans la partie principale du spray.

Les deux appareils sont mis dans des situations difficiles. Les diamètres moyens arithmétiques et en volume/nombre sont présentés dans le tableau 1 et sont difficiles à interpréter. En effet, une augmentation de la pression d'injection ne devrait pas conduire à une augmentation du diamètre moyen. Un rapide calcul conduit à déterminer qu'il existe entre 0.57 et 37 gouttelettes dans la zone de mesure et l'on peut conclure que les aérosols générés par les injecteurs automobiles sont trop concentrés pour les phases Doppler. Les autres conséquences sont l'absorption et la distorsion des faisceaux laser incidents qui nuisent à la qualité de la zone de mesure. Même si l'évaporation élimine les gouttelettes les plus petites, la concentration demeure trop élevée pour une technique qui détecte les particules une par une.

En ce qui concerne les résultats obtenus par diffraction laser, les courbes de puissance laser transmises au travers du cône de l'aérosol et les diamètres médian en volume sont présentés figures 6 et 6 en fonction du temps.

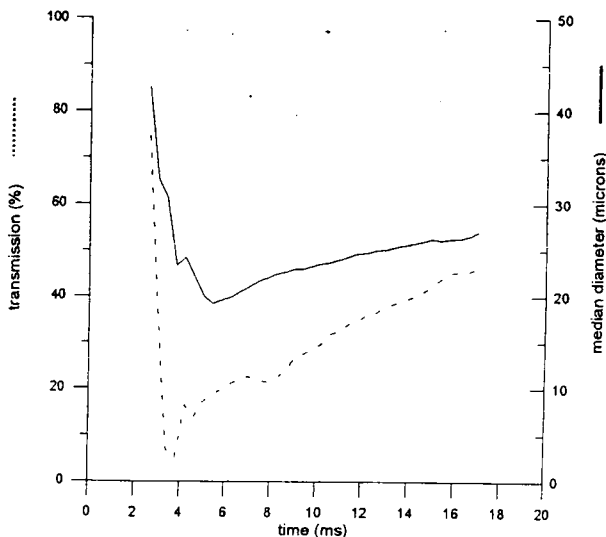


Figure 6 : Spraytec - pression d'injection 5Mpa et pression d'air 0,12MPa-

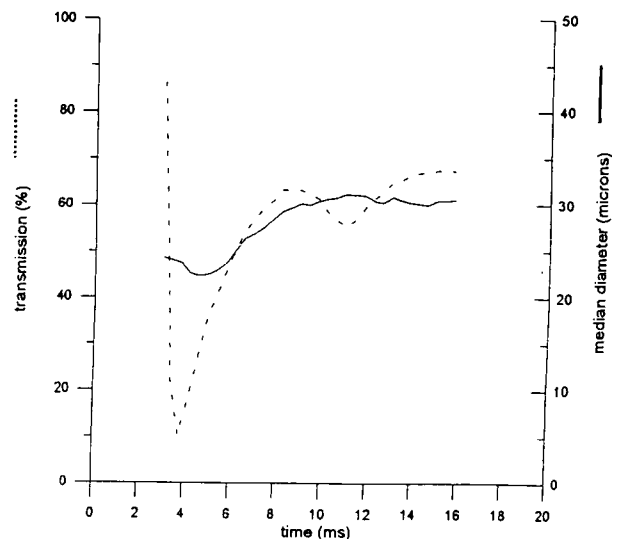


Figure 7 : Spraytec pression d'injection 5Mpa et pression d'air 0,3MPa

La première phase d'injection est formée par les gouttelettes les plus grosses. Il y a, en effet, une mauvaise atomisation quand le flux à l'intérieur de l'injecteur n'est pas établi durant l'ouverture. Puis, durant la phase d'injection principale, le diamètre moyen diminue notablement jusqu'à 20 microns, alors que la transmission chute rapidement. Après la fin de l'injection, le diamètre moyen augmente très lentement. Cet effet est encore plus prononcé à haute pression (cf figure 7).

Dans le même temps, la puissance laser transmise augmente régulièrement car le jet de gouttes est interrompu et se déplace en dehors du chemin du faisceau laser. Changer la pression du carburant de 5 MPa à 8 MPa ne diminue pas le diamètre moyen de façon significative et augmenter la pression d'azote l'augmente légèrement.

Cette dernière tendance était observée également avec l'appareil à phase Doppler d'Aérometrics bien qu'il soit difficile de relever une tendance dans le nuage de points obtenu par cet appareil.

Une validation est faite grâce à des images d'absorption faites au dodécane, carburant qui ne s'évapore pas. La quantité de liquide est alors parfaitement connue, et il est facile de remonter au diamètre de Sauter moyen en intégrant l'absorption sur tout le spray. Un accord de 5 à 10 % a été trouvé avec les mesures effectuées par diffraction, sur les tendances de variation de pressions d'injection et d'azote.

CONCLUSION :

Les deux systèmes à phase Doppler test ne conviennent pas aux mesures à haute concentration. Le taux d'acquisition chute de façon excessive au milieu de la phase d'injection et un biais des résultats vers les grands diamètres est constaté. Dans certaines conditions, des diamètres incorrects sont même mesurés.

Le système basé sur la diffraction (équipé d'un algorithme corrigeant la diffusion multiple) est plus facilement utilisable et fonctionne correctement, même dans les aérosols denses.

Les résultats décrivent des tendances en corrélation avec les images obtenues par absorption de lumière.

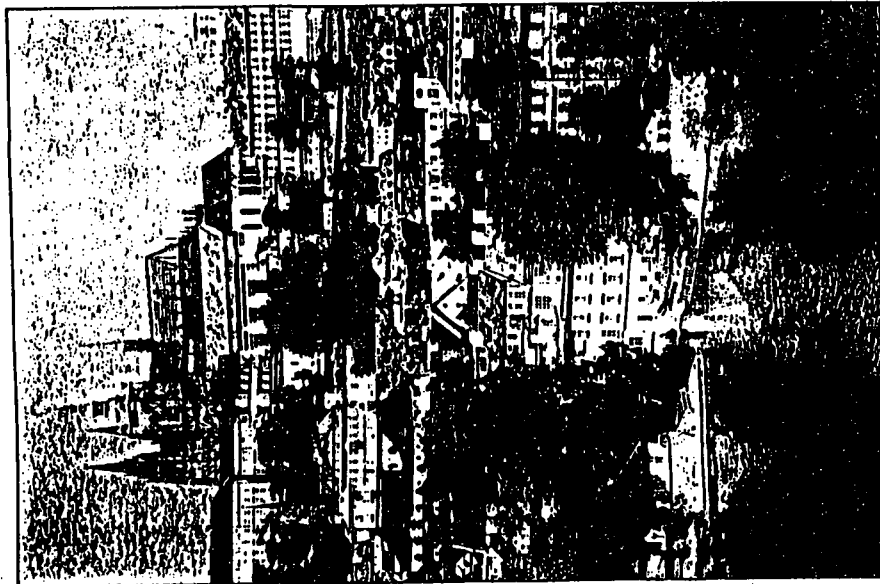
REFERENCES

- [1] Iwamoto Y. et al., "Development of Gasoline Direct Injection Engines", SAE 970541, 1997.
- [2] Preussner C. and Kampmann S., "Benzin-Direkteinspritzung, eine neue Herausforderung für künftige Motorsteuerungssysteme", MTZ Motortechnische Zeitung 58 (Oktober 1997), 10.
- [3] Dodge L.G., Rhodes D.J., and Reitz R.D., "Drop-size Measurement Techniques for Sprays : Comparison of Malvern Laser-diffraction and Aerometrics Phase/Doppler", Applied Optics, Vol. 26, 11, 1 June 1987
- [4] Croissant K. and Kendlbacher C., "Requirements for the Engine Management System of Gasoline Direct Injection Engines", Congress "Direkteinspritzung im Ottomotor", Essen, Germany, March 1997.
- [5] Ren W.M., Shen J., and Nally J.F., "Geometrical Effects Flow Characteristics of a Gasoline High Pressure Swirl Injector", SAE 971641, 1997.
- [6] Lefebvre A.H., Atomisation and Sprays, Taylor & Francis editors.

EAC '99

European Aerosol Conference
1999

6-10 September, Prague,
Czech Republic



Announcement, Call for Papers,
and Registration Form

Registration and Fees

Fee before July 1st 1999

E.A.A. members 400 DM
non-members 500 DM
students 200 DM

Fee after July 1st 1999

E.A.A. members 500 DM
non-members 600 DM
students 250 DM

Conference dinner

60 DM per person. 40 DM for students.

Payments

Payments can be made by creditcards, check or by remittance to the following account:

GAeF

Account: 040 00840

Bank: Bespa Graben-Neudorf, Germany

BLZ: 660 513 26

Accommodation

Accommodation will be organised by the local organiser Dr. Jan Novosad. See the accommodation booking form enclosed.

Lunches

Lunches will be served at the Conference site at a price approximately 12 DM.

Call for Papers

Prospective authors are invited to submit 2-page abstract related to one of the before mentioned topics. Indicate your preference for an oral or poster presentation in an accompanying letter. The abstracts will be reviewed according to scientific content, suitability for the conference proceedings and form. Please bring your camera ready abstract into an acceptable form for publication in the Journal of Aerosol Science conference proceedings right away. See the sample abstract included.

Submit your abstract to the Scientific Committee Chair:

Prof. Dr. Wladyslaw W. Szymanski
University of Vienna
Institute of Experimental Physics
Boltzmanngasse 5
A-1090 Vienna, Austria

£

Dates and Deadlines

2-page abstract final form	March 1st,	1999
Notification of authors	May 31st.	1999
Early registration ends	July 1st,	1999
Conference	6th - 10th Sept.	1999
Last minute posters at least one week before the conference	(contact Dr. Jiri Smolik)	

Conference Language

The conference language will be English.

LISTE ALPHABETIQUE DES AUTEURS

AIACHE J.M.	13
ALARY R.	49
AMBROISE D.	69
ATTOUI M.	37; 79; 91; 141; 175; 241
BEMER D.	85
BERTIN P.	253
BLONDEL D.	145
BOUCENNA A.	211
BORRA J.P.	235
BOULAUD D.	55; 153; 201; 211
BOULNOIS G.	145
BRIAND A.	97
BUCHLIN J.M.	131
CALLE S.	85
CHAMBRE	247
CHAMPION Ch.	259
CORIERI P.	131
COUTY B.	241
DERANGERE D.	79
DESPIAU S.	61
DUBUC J.P.	261
DUCRET D.	223
DUPOUX N.	105
EHOUARN P.	235
FABRIES J.F.	69; 153; 161
FARES KARAM A.	189
FEUILLEBOIS F.	217
FISK W.	183
FISSAN H.	229
GABAY D.	91
GADGIL A.J.	183
GALLO J.C.	43
GAUCHET N.	223
GEHIN E.	141; 195
GENSDARMES F.	201
GLADTKE D.	229
GOUESBET G.	145
GOURDEAU J.	61
GÖRNER P.	69; 161
GREFF-MIRGUET G.	69
GREHAN G.	141; 145
GROS d'AILLON L.	211
GUILLERMO R.	43
HARTEMANN P.	69
HUET C.	55
HUREL F.	97
ITS ICS	
JURSKI K.	195
JOHN A.C.	229
KUHLBUSCH T.A.J.	229
LABORDE J.C.	97; 105
LITVAK A.	183

MALET J.	131; 153
MATHE F.	43
MAZOUÉ S.	91
MEBENGA M.	195
MESBAH B.	37
MILLUY-ROLIN I.	27
MOCHO V.	97
MONTANELLI T.	205
MOREAU R.	79
PAGANO C.	211
PARFAIT C.	241
PFEFFER H.U.	229
PIGEONNEAU F.	217
PREVOST C.	105
RABU R.	211
REGNIER R.	85
RENOUX A.	7; 91; 161; 201; 223; 241
ROBACHE A.	43
ROBINE E.	79
ROGER F.	9; 153; 161
SAGET P.	115
SAIKALI Y.	189
SAINT-RAYMOND O.	205
SCHMIDT F.	229
SCHMIDT K.G.	229
SELLEGRI K.	61
SERRA D.	205
SIBILLE I.	69
SPURNY K.	169
STREMSDOERFER G.	189
THIELEKE R.	37
THOUVENIN P.	37
TIRET C.	137
TOURASSE M.	211
TYMEN G.	55
VENDEL J.	223
WITSCHGER O.	153
WROBEL R.	161
ZOULALIAN A.	205

LISTE DES PARTICIPANTS

AIACHE J.M.
LAB DE BIOPHARMACIE
Université Clermont I
28, place H. Durant B.P. 38
63001 CLERMONT FERRAND
tél.: 04 73 60 80 01
Fax : 04 73 27 66 65

ALARY R.
Laboratoire Central de
la Préfecture de Police
39 bis rue de Dantzig
75015 PARIS
tél : 01 55 76 20 00
fax : 03 21 01 57 26

ALFARO S.
UNIVERSITE Paris XII
LISA
61, ave du Gal de Gaulle
94010 CRETEIL cedex

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

AMMERICH M.
CEA
CE Saclay Bât. 395
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 93 89
fax : 01 69 08 57 53

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

BARBE LE BORGNE M.
Laboratoire Central de
la Préfecture de Police
39 bis rue de Dantzig
75015 PARIS
tél : 01 55 76 20 00
fax : 03 21 01 57 26

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

BLONDEL D.
LESP
INSA de Rouen URA
CNRS 230, CORIA BP 08
76130 MONT St AIGNAN
tél : 02 35 14 64 60

BODIN 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

BORRA J.P.
Lab. de Phys. des Gaz et des
Plasmas URA 073
ECOLE SUP. D'ELECTRICITE
Plateau du Moulon
91192 GIF SUR YVETTE

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
tél : 01 69 08 26 74
fax : 01 60 19 30 61

BOUSCAREN R.
CITEPA
10 rue du Fbg Poissonnière
75010 PARIS
tél.: 01 44 83 68 83
Fax : 01 40 22 04 83

BRIAND A.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex
tél : 01 69 08 60 00

BULTYNCK H.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 60 00

CALLE S.
LSGC/CNRS/ENSIC
1 rue Grandville B.P. 541
54001 NANCY Cedex
tél.: 03 83 17 51 90
fax : 03 83 32 29 75

CENAC N.
MÉTÉO France
7 rue Teisserenc de Bort
78195 TRAPPES CEDEX

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

CHAMPION Ch.
ARELCO A.R.C.
2, ave Ernest Renan
94120 FONTENAY SOUS BOIS
tél.: 01 48 75 82 82
Fax : 01 43 94 07 21

CHOUARD J.C.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 23 59

CIFFRE F.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

CLARET C.
DPRE/SERE/LRE
CE Cadarache
13108 Saint Paul lez Durance
tél.: 04 42 25 75 43
fax : 04 42 25 64 44

COLLIN F.
D.C.M.R.
Ecole Polytechnique
91128 PALAISEAU Cedex
tél.: 0169 33 34 08
Fax : 01 69 33 30 41

COUTY B.
RATP
13, rue Jules Vallès
75011 PARIS
tél.: 01 49 00 16 33

CREPAT G.
IUT Dijon
rue des Ducs de Bourgogne
21110 ROUVRES EN PLAINE
Tél.: 03 80 39 88 27
Fax : 03 80 39 65 60

DEL FABBRO L.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 60 00

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

DESPIAU S.
LEPI B.P. 132
Univ. Toulon Var
83957 LA GARDE
tél. : 04 94 14 23 63
Fax : 04 94 14 25 72

DONATI J.
Laboratoire Central de
la Préfecture de Police
39 bis rue de Dantzig
75015 PARIS
tél : 01 55 76 20 00
fax : 03 21 01 57 26

DRECOURT S.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 60 00

DUBUC
SCHAEFER TECHNIQUES
1, rue du Ruisseau Blanc
91620 NOZAY
tél.: 01 64 49 63 50
Fax : 01 69 01 12 05

DUCRET D.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 23 59

DUFOUR A.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

DUPUOX N.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 60 00

EHOUARN
Lab. de Phys. des Gaz et des
Plasmas URA 073
ECOLE SUP. D'ELECTRICITE
Plateau du Moulon
91192 GIF SUR YVETTE

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

FARES KARAM A.
ECOLE CENTRALE DE LYON
36 ave Guy Collongue
B.P. 163
69131 ECULLY CEDEX
tél. : 04 72 18 18 60 00

FEUILLEBOIS F.
URA CNRS 857
Laboratoire PMMH
10 rue Vauquelin
75231 PARIS CEDEX 05
tél : 02 40 79 45 53

FORSTER
LABORATOIRE INDUSTRIEL et
d'ENVIRONNEMENT
Parc d'Activité Forbach Ouest
57600 FORBACH

FRANÇOIS A.
AIR NORMAND
21 ave de la Porte de Champs
76000 ROUEN
tél.: 02 35 07 94 30
Fax : 02 35 07 94 40

GABAY D.
RATP LAC 67
54 Quai de la Rapée
75599 PARIS
tél : 01 44 68 31 67
Fax : 01 44 68 45 26

GARRY P.
Centre Technique de Salaison
7 ave du Général de Gaulle
94700 MAISONS ALFORT
Tél.: 01 43 68 57 85
Fax : 01 43 76 07 20

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
Université Paris XII
Av. du Gal de Gaulle
94010 CRETEIL Cedex
tél : 01 45 17 18 37

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

GIRAUD S.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

GOMES L.
UNIVERSITE Paris XII
LISA
61, ave du Gal de Gaulle
94010 CRETEIL cedex

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.
LPATC
Université Paris XII
tél : 01 45 17 13 62
fax : 01 45 17 13 61

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

GUEGAN H.
CENBG
Université de Bordeaux I
BP 120 Le Haut Vigneau
33175 GRADIGNAN CEDEX
tél. : 05 56 75 26 62
Fax : 05 56 75 11 80

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

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

JOUVENOT G.
RENAULT
1 allée Cornuel
91510 LARDY
tél.: 01 69 27 75 13
fax : 01 69 27 84 28

JURSKI K.
Lab. de Biorhéologie et
d'Hydrodynamique Physico-
chimique ESA 7057
Université Paris VII
2, place Jussieu 75005 PARIS

JOHN A.
PROCESS and AEROSOL
MEASUREMENT TECHNOLOGY
DIVISION
Bismarckstr. 81
47057 DUISBURG
tél.: 49 203 379 3907
Fax : 49 203 379 3268

KAFURT N.
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

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

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

LAPUENTE A.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

LE BIHAN O.
LPAS/DGR
Ecole Polyt. Féd. de Lausanne
1017 LAUSANNE
tél.: 00 41 21 693 5315

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 CORGUILLE Y.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

LE 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 SAINT T.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

LE TURDU M.
ECOMESURE
B.P. N°13
91640 BRIIS SOUS FORGES
tél : 01 64 90 55 55
fax : 01 64 90 55 66

LITVAK A.
CETE Lyon DVT/HTC
46, rue St. Théobald BP 128
38081 ISLE D'ABEAU Cedex
tél. : 04 74 27 51 67
Fax : 04 74 27 52 52

MALET J.
VON KARMAN INSTITUTE
Chaussée de Waterloo 72
B- 1640 RHODE St. GENESE
tél. : 00 32 2 359 96 22
Fax : 00 32 2 359 96 00

MAZOUÉ S.
RATP LAC 67
54 Quai de la Rapée
75599 PARIS
tél : 01 44 68 24 43
fax : 01 44 68 45 26

MESBAH B.
AIRFOBEP
Route de la Vierge
13500 MARTIGUES
tél : 04 42 13 01 20
fax : 04 42 13 01 29

MESS L
LESP INSA de Rouen
UMR CNRS 6614 B.P.08
76130 MONT St. AIGNAN
tél. : 02 35 52 83 95

MICHEL F.
O N E R A
8 rue des Vertugadins
92190 MEUDON
Tél.: 01 46 23 51 22
Fax : 01 46 23 51 51

MICHELSSEN N.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 62 37

MILLUY - ROLIN I.
Laboratoire Central de
la Préfecture de Police
39 bis rue de Dantzig
75015 PARIS
tél : 01 55 76 20 00

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

MOUTARD K.
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

NOIRTIN A.
DESS Aérosol
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 CRETEIL CEDEX
tél : 01 45 17 13 59
fax : 01 45 17 13 61

PAILLERE J.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex
tél : 01 69 08 60 00

PAIN C.
RENAULT
860 Quai de Stalingrad
92109 BOULOGNE
BILLANCOURT

PALACIN 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

PARFAIT C.
RATP/DZE/EQA/SEC
13 rue Jules Vallès
75011 PARIS
tél : 01 48 04 18 55

PELTRE G.
Institut Pasteur
28, rue du Dr. Roux
75015 PARIS
tél.: 01 45 68 82 44
Fax : 01 40 61 33 83

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

PEROTTO M.
O N E R A
8 rue des Vertugadins
92190 MEUDON
Tél.: 01 46 23 51 22
Fax : 01 46 23 51 51

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
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

POSTIC J.M.
RENAULT
860 Quai de Stalingrad
92 BOULOGNE BILLANCOURT

POURPRIX M.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 60 00

PREVOST C.
CEA/IPSN/DPEI/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
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

REAL J.
DPRE/SERE/LRE
CE Cadarache
13108 Saint Paul lez Durance
tél. : 04 42 25 75 43
fax : 04 42 25 64 44

REISCH F.
LEPI B.P. 132
Univ. Toulon Var
83957 LA GARDE
tél. : 04 94 14 23 63
Fax : 04 94 14 25 72

RENARD V.
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

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

ROBACHE A.
Ecole des Mines de DOUAI
941 rue Charles Bourseul
59508 DOUAI Cedex
tél. : 03 27 71 26 23
Fax : 03 27 71 25 25

ROBINE E.
CSTB
84 ave J. Jaurès B.P. 02
77421 MARNE LA VALLÉE
tél : 01 64 68 82 66
fax : 01 64 68 84 73

ROBLLOT D.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE
tél : 01 69 08 60 00

ROGER F.
INSTITUT NATIONAL DE
RECHERCHE ET DE
SECURITE B.P. 27
Av. de Bourgogne
54501 VANDOEUVRE
tél : 03 83 50 20 00
Fax : 01 83 50 20 97

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

SELLEGRI K.
LEPI B.P. 132
Univ. Toulon Var
83957 LA GARDE
tél. : 04 94 14 23 63
Fax : 04 94 14 25 72

SENECHAL H.
INSERM
28 rue du Dr. Roux
75724 PARIS Cedex 15
tél : 01 45 68 82 44
fax : 01 40 61 33 83

SIEJA B.
Association RESUPADI
5, rue Pasteur
21000 DIJON
tél. : 03 80 38 92 31
Fax : 03 80 36 22 17

SPURNY K.
Eichenweg, 6
D -57392 SCHMALLENBERG
Allemagne
tél. 49 2972 6503
fax : 49 2972 302 319

SUTEAU Ch.
ENVIRONNEMENT SA
11 bd. Robespierre
78300 POISSY
tél. : 01 39 22 38 00
Fax : 01 39 65 38 08

TARLAY V.
St. MAURICE AUBERT
8 rue Jean Leblond
95130 FRANCONVILLE
tél : 01 30 65 36 55
fax : 01 39 79 14 93

TERRAY M.
MALVERN INSTRUMENTS
30, rue Jean Rostand
91893 ORSAY
tél : 06 08 71 10 86
Fax : 01 60 19 13 26

TEXTE J.C.
LABORATOIRE NAT.
D'ESSAIS
1 rue G. Boissier
75724 PARIS CEDEX 15
tél : 01 40 43 37 00

THIRET E.
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

THOMAS D.
LSGC/CNRS/ENSIC
1 rue Grandville B.P. 541
54001 NANCY Cedex
tél. : 03 83 17 51 97
fax : 03 83 32 29 75

TIHAY O.
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

TIRET C.
CENTRE D'ETUDE DU
BOUCHET Sce PHD
B.P. N° 3
91710 VERT LE PETIT
tél : 01 69 90 83 45

THIELEKE R.
AIRFOBEP
Route de la Vierge
13500 MARTIGUES
tél : 04 42 13 01 20
fax : 04 42 13 01 29

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

UNGER
Lab. de Phys. des Gaz et des
Plasmas URA 073
ECOLE SUP. D'ELECTRICITE
Plateau du Moulon
91192 GIF SUR YVETTE

VECELLIO NONE 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

VENDEL J.
CEA Saclay Bât. 383
DPEA/SERAC/LPMC
91191 GIF sur Yvette
tél. 01 69 37 77
fax 01 69 08 36 80

VILLANOVA
RATP/DZE/EQA/SEC
13 rue Jules Vallès
75011 PARIS
tél : 01 48 04 18 55
fax : 01 48 04 16 26

WITSCHGER O.
CEA/IPSN/DPEA/SERAC
CE Saclay Bât. 389
91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex
tél : 01 69 08 60 00

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