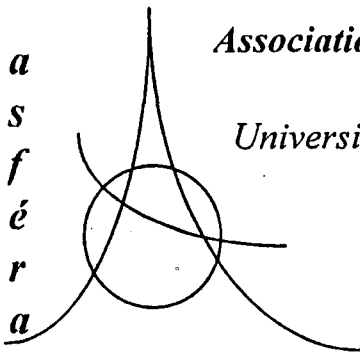


a  
s  
f  
é  
r  
a



*Association Française d'Etudes et de Recherches sur les Aérosols*  
*LPATC - Faculté des Sciences et Technologie.*  
*Université Paris XII, 61, avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil.*  
*Tel : 01 45 17 13 62 Fax : 01 45 17 13 61.*

***A C T E S***  
***du***  
***15<sup>e</sup> CONGRES FRANÇAIS***  
***sur les AEROSOLS CFA 99***  
***Paris, 8 - 9 décembre 1999***

***En Hommage au Professeur K.R. SPURNY***  
***(1924 - 1999)***

# 15<sup>e</sup> CONGRES FRANÇAIS SUR LES AEROSOLS

## C F A 99

### 8 et 9 décembre 1999

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

	<i>Page :</i>
Editorial du Pr. André RENOUX, Président de l'ASFERA.	5
En Hommage au Professeur K.R. SPURNY (1924 - 1999).	9
Prague par C. HUET. (Bourse ASFERA 1999).	11
<u>Conférence plénière</u> par Mme Dr. D. DERANGERE. Risques sanitaires liés à la présence de biocontaminants dans l'habitat.	15

#### BIOAEROSOLS ET FILTRATION

Mise au point d'un impacteur destiné à l'aérobiocontamination des produits de construction. A.L. DUFOUR <sup>(1)(2)</sup> , E. ROBINE <sup>(1)</sup> , D. DERANGERE <sup>(1)</sup> , D. ROBIN <sup>(1)</sup> . (1) CSTB Marne la Vallée; (2) L.P.A.T.C Université Paris XII.	17
Performances de médiats filtrants décolmatés utilisés en dépoussiérage industriel. S. CALLE <sup>(1)</sup> , D. BEMER <sup>(2)</sup> , D. THOMAS <sup>(1)</sup> , P. CONTAL <sup>(1)</sup> , D. LECLERC <sup>(1)</sup> . (1) LSGC Nancy; (2) INRS Vandoeuvre.	23
Modélisation des écoulements d'air dans différents filtres industriels plissés. L. DEL FABBRO <sup>(1)</sup> , P. BRUN <sup>(1)</sup> , J.C. LABORDE <sup>(2)</sup> , J. LACAN <sup>(2)</sup> , A. RENOUX <sup>(3)</sup> , L. RICCIARDI <sup>(2)</sup> . (1) FILTRAUTO St. Quentin en Yvelines; (2) IPSN/DPEA/SERAC CEA Saclay (3) LPATC Université Paris XII.	29
Simulation numérique de la collecte des aérosols par une série de gouttes en présence de condensation à leur surface. N. GAUCHET <sup>(1)</sup> , J. VENDEL <sup>(1,2)</sup> , A. RENOUX <sup>(2)</sup> . (1) IPSN/DPEA/SERAC CEA Saclay; (2) LPATC Université Paris XII.	37
Influence d'un aérosol submicronique sur le fonctionnement d'une décharge fil - cylindre. L. UNGER, P. EHOARN, J.P. BORRA. LPGP/EDEE/Ecole Sup. d'Electricité GIF sur YVETTE.	45

#### METROLOGIE DES AEROSOLS

Détermination de la granulométrie et de la concentration d'un aérosol submicronique par mesure du coefficient d'extinction à plusieurs longueurs d'ondes. M. ATTOUI <sup>(2)</sup> , K.F. REN <sup>(1)</sup> , T. GIRASOLE <sup>(1)</sup> , G. GOUESBET <sup>(1)</sup> , G. GREHAN <sup>(1)</sup> , (1) LESP INSA de Rouen; (2) LPATC Université Paris XII.	51
Mesure de température de goutte en vol par fluorescence induite par laser. F. HERVY <sup>(1)(2)</sup> , F. FEUILLEBOIS <sup>(1)</sup> (1) PMMH ESPCI Paris; (2) Centre d'Essais des Propulseurs ORSAY.	59
Etude numérique d'un échantillonneur à fente annulaire dans un écoulement turbulent. F. ROGER <sup>(1)(2)</sup> , J.F. FABRIES <sup>(1)</sup> , P. GÖRNER <sup>(1)</sup> , L. WROBEL <sup>(1)</sup> , A. RENOUX <sup>(2)</sup> (1) INRS Nancy; (2) LPATC Université Paris XII.	65
Echantillonnage des aérosols en ambiance de travail : une nouvelle chambre expérimentale. S. FAUVEL, O. WITSCHGER. IPSN/LPMAC/DPEA/SERAC CEA Saclay.	73
Efficacité d'un générateur d'ions à effet couronne. Application à la charge et à la neutralisation d'un nuage d'aérosols. M. ATTOUI. LPATC Université Paris XII.	81
Diffusion de la lumière par des particules complexes : imagerie aux grands angles. S. MEUNIER-GUTTIN-CLUZEL, T. GIRASOLE, G. GOUESBET, G. GREHAN. LESP INSA de Rouen.	87

Interaction entre des pulses de lumière et des particules 3-D. G. GOUESBET, G. GREHAN. <i>LESP INSA de Rouen.</i>	99
Utilisation et étude d'un générateur d'aérosols pour la synthèse de poudres céramiques nanométriques. M. MAYNE, N. ALLAIN, X. ARMAND, N. HERLIN-BOIME. <i>DRECAM/SPAM CEA Saclay.</i>	107
<u>Conférence plénière</u> par Dr. A. REBOURS <i>AIR Pays de la Loire.</i> La surveillance de la qualité de l'air en France - mesure des aérosols dans les réseaux.	113

## LES AEROSOLS DANS L'ENVIRONNEMENT

Composition chimique élémentaire et granulométrie des particules en suspension sur un site urbain sous influences industrielles. A. ROBACHE, F. MATHE, J.C. GALLOO, R. GUILLERMO. <i>Ecole des Mines de Douai.</i>	119
Mesures de PM 2.5 et PM 10 au bassin de la Ruhr, Allemagne. A.C. JOHN <sup>(1)</sup> , T.A.J. KUHLBUSCH <sup>(1)</sup> , H. FISSAN <sup>(1)</sup> , H.U. PFEIFFER <sup>(2)</sup> , D. GLADTKE <sup>(2)</sup> . (1) <i>TMPA Université de Duisburg</i> ; (2) <i>LNW Essen.</i>	125
Mise au point d'un réacteur à flux continu d'aérosols, pour l'étude de réactions chimiques hétérogènes. O. LE BIHAN, F. CALOZ, A. ALLIANIC, M. ROSSI. <i>LPA Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne.</i>	131
Application de la télédétection à l'étude de la distribution spatiale de la pollution atmosphérique sur la région d'Ile - de - France. A. IONESCU <sup>(1)(2)</sup> , J.P. GILG <sup>(1)</sup> , P. BILDGEN <sup>(3)</sup> , Y. CANDAU <sup>(2)</sup> (1) <i>LATES EHESS Paris</i> ; (2) <i>LETIEF IUT Université Paris XII</i> ; (3) <i>LGM Université Paris VI.</i>	141
Mesure de la couverture moutonneuse durant la campagne F.E.T.C.H. 98. L. MASSOUH; O. LE CALVE, S. DESPIAU. <i>LEPI Université de Toulon et du Var.</i>	147

## PHYSIQUE DES AEROSOLS ET APPLICATIONS

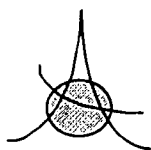
Diffusion de la lumière par des particules complexes : chaos optique Hamiltonien et diffusion irrégulière. G. GOUESBET <sup>(1)</sup> , S. MEUNIER-GUTTIN-CLUZEL, G. GREHAN <sup>(1)</sup> <i>LESP INSA de Rouen.</i>	155
Caractérisation physique des dérivés à vie courte du Radon 222 dans une habitation : comparaison modèle - expérience. C. HUET <sup>(1)</sup> , G. TYMEN <sup>(1)</sup> , N. MICHELSEN <sup>(2)</sup> , D. BOULAUD <sup>(2)</sup> (1) <i>LRAAH Université de Brest</i> ; (2) <i>IPSN/DPEA/SERAC CEA Saclay.</i>	161
Mise en suspension d'une contamination particulaire par écoulement d'air. L. ALLOUL <sup>(1)(2)</sup> , O. WITSCHGER <sup>(1)</sup> , D. LE DUR <sup>(3)</sup> , A. RENOUX <sup>(2)</sup> , J. MONNATTE <sup>(4)</sup> , (1) <i>IPSN/DPEA/SERAC CEA Saclay</i> ; (2) <i>LPATC Université Paris XII</i> ; (3) <i>AEROLAB Courtaboeuf</i> ; (4) <i>COGEMA St.Quentin en Yvelines.</i>	167
Etude expérimentale du processus de charge électrique des aérosols radioactifs émetteurs beta. F. GENSDARMES <sup>(1)(2)</sup> , D. BOULAUD <sup>(1)</sup> , A. RENOUX <sup>(2)</sup> (2) <i>LPATC Université Paris XII</i> (1) <i>IPSN/DPEA/SERAC CEA Saclay.</i>	173
Domaines de stabilité du monde (Multi-) Cone-Jet-Glow selon la tension de surface du liquide et la géométrie du capillaire : lois d'échelle. P. EHOUARN, L. UNGER, J.P. BORRA. <i>LPGP Ecole Supérieure d'Electricité GIF Sur Yvette.</i>	179

### EXPOSANTS :

- ECOMESURE Etude Contrôle Mesure B.P.n°13 3 rue du Grand Cèdre 91640 JANVRY.
- ITS Incharge Testing Service 91 rue du Général de Gaulle 27109 LE VAUDREUIL Cedex.

L'EUROPEAN AEROSOL CONFERENCE, EAC 2.10 <sup>3</sup> , DUBLIN.	185
Liste des auteurs	187
Liste des participants	189

## ASFERA



Association Française d'Etudes et de Recherches sur les Aérosols

LPATC - UFR Sciences, Université Paris XII, 94010 Créteil.

Tel : 0145171362 Fax : 0145171361

### *Le Président*

Ce n'est pas sans émotion que je rédige cet éditorial qui sera mon dernier. En effet, ne souhaitant pas ressembler à ces vieillards politiques qui s'accrochent à leurs prébendes comme la moule à son rocher, j'ai estimé qu'il devenait temps que je quitte mes fonctions de Président de l'ASFERA. Une nouvelle équipe prendra les rênes à partir du 15 septembre 2000.

Je tiens à dire que, pour moi, la présidence du COFERA puis de l'ASFERA restera l'un des grands souvenirs d'une carrière déjà bien longue. J'ai une pensée pour les initiateurs de cette aventure, les Drs MADELAINE et MARTIN. Et je remercie très chaleureusement toutes celles et tous ceux qui, au fil des ans, en présentant des communications, en assistant à nos congrès, ont permis à l'ASFERA de s'affirmer sur le plan national et international.

Comme chaque année, deux conférences plénières ont été données. Madame Dominique DERANGERE, dans un exposé de très haute tenue, nous a parlé des risques causés par les biocontaminants dans l'habitat. Quant à Monsieur REBOURS, il a tenté de nous initier aux problèmes des réseaux de surveillance de la pollution atmosphérique. Qu'ils soient remerciés de l'effort qu'ils ont bien voulu faire pour nous. Merci également aux conférenciers qui ont rédigé leur intervention. Ils nous permettent de publier ces actes du CFA 99 (le quinzième) qui constituent la vitrine de l'ASFERA.

En septembre 1999, à Prague, j'ai présidé le bureau de l'European Aerosol Assembly, avec la chance d'avoir Denis BOULAUD à mes côtés. Nous avons fait admettre une nouvelle société, la HAS, Hungarian Aerosol Society présidée par le Professeur Erno MESZAROS, Membre de l'Académie des Sciences de Hongrie.

Les résumés de notre CFA 98 viennent d'être publiés par le Journal of Aerosol Science (Vol.31, n°1, pp. 137-150-2000). Cette revue internationale nous a même fait le plaisir d'imprimer le programme de nos journées en Français! Quant aux résumés français, ils ont été publiés intégralement par la Revue Pollution Atmosphérique (n°161, pp. 31-55, 1999) qui a fait un magnifique travail de présentation (24 pages !). Que ces deux publications renommées, qui



contribuent au prestige national et international de l'ASFERA, soient remerciées très chaleureusement.

Cette année, notre secrétaire Générale Evelyne GEHIN nous a honteusement abandonnés pour cause de génération d'un aérosol unidispersé de forme bécéboïde. Ainsi est née une petite Lise dont je suis heureux de saluer la naissance, en espérant qu'elle nous rendra bientôt sa Maman en bon état de marche.

*Un petit être arrive, tandis que part un grand ami de l'ASFERA. Le Professeur Kvetoslav SPURNY est décédé le 3 novembre 1999, suite à un accident de voiture. Nous ne verrons plus sa silhouette mince et élégante, et cela me peine énormément. Je lui dédie ces actes, en rappelant brièvement sa carrière. D'abord Chercheur en Chimie de l'Environnement à PRAGUE de 1952 à 1956, il soutenait sa Thèse de Doctorat en 1952 à l'Université de Prague puis il devenait Directeur du Département de Science des Aérosols à l'Académie des Sciences de Tchécoslovaquie à Prague. Il passait une année à BOULDER en 1966, et en 1969, une autre année au C.E.A. Fontenay aux Roses (M. J. PRADEL, Pr. J. BRICARD).*

*Après les sinistres événements de son pays, déclaré Ennemi du Peuple (!) et personnage de conviction très fortement antisocialiste (!), K. SPURNY profitait d'un voyage en Italie avec son épouse pour passer à l'Ouest. Ainsi, de 1972 à 1988, il était Chef du Département de Chimie des Aérosols au Fraunhofer Institute for Environmental Chemistry and Ecotoxicology en Allemagne Fédérale. Il prenait sa retraite en 1988, mais contribuait, par ses livres et ses interventions dans les congrès du monde entier à oeuvrer pour la Science des Aérosols. Les travaux du Pr. SPURNY ont beaucoup porté sur la caractérisation des fibres dans l'air, captées par des filtres "nuclepore" et détectées par microscopie électronique. Il était également un spécialiste reconnu de la composition chimique de l'aérosol atmosphérique. Ayant reçu, en 1969, le prix Américain (AAAR) David SINCLAIR, il a publié plus de 150 articles scientifiques et six livres. Denis BOULAUD et moi même avons, du reste, à sa demande, eu l'honneur d'écrire un chapitre de son dernier ouvrage «Advances in Aerosol Filtration» (LEWIS, 1999). En août - septembre 1999, nous avons eu le plaisir de le rencontrer à l'Académie des Sciences de Vienne où, à l'invitation du Professeur O. PREINING, nous participions au Symposium sur l'Histoire de la Science des Aérosols. Et dans la foulée, il était présent à l'EAC 99 (European Aerosol Conference) dans sa ville de Prague dont il avait la joie de savourer la liberté enfin retrouvée. Kvetoslav SPURNY était un grand ami de la France, et il nous a fait l'honneur de participer (en français) à beaucoup de nos congrès. Il nous manquera beaucoup. En hommage, on trouvera, dans ces actes, le résumé de la conférence qu'il projetait de nous faire au CFA 99.*

*Une autre triste nouvelle vient de m'arriver. Un coup de téléphone de sa fille m'apprend que Madame BRICARD est décédée hier en ce samedi 15 Janvier 2000 à 14h. Elle a eu une grande importance dans la vie du Professeur Jean BRICARD qui, je le rappelle aux plus jeunes d'entre nous, est le Père de la Science des Aérosols française. En particulier, elle fit preuve d'un dévouement admirable durant les derniers mois de la vie de Monsieur BRICARD. C'était une grande dame à qui il convenait de rendre un affectueux et respectueux hommage.*

Mais, comme il se doit, la vie continue et nous apporte aussi ses joies. En particulier, de voir que la Science des Aérosols française peut compter sur des jeunes chercheurs de talent. Comme chaque année, notre CFA 99 leur a permis de nous montrer la qualité de leurs travaux.

Je remercie le bureau de l'ASFERA qui m'a aidé à établir le programme de ce congrès et m'a si fidèlement soutenu durant toutes ces années. Avec une pensée particulière à Lidia Martin, véritable cheville ouvrière de l'ASFERA et de ses CFA. On lui doit l'édition des résumés, celle de ces actes. Avec son talent, sa gentillesse et son dévouement, elle m'a énormément apporté, et l'ASFERA lui doit beaucoup.

Je n'oublierai pas les jeunes Etudiants et Etudiantes de mon DESS Science des Aérosols; génie de l'Aérocontamination qui avec beaucoup de gentillesse et d'efficacité, ont assuré l'accueil de nos congressistes.

L'European Aerosol Conference est organisée, du 3 au 8 Septembre 2000 par nos amis de The Aerosol Society (admirez la modestie anglaise!). J'espère qu'il y aura beaucoup de communications françaises.

Et en guise de ... testament, j'espère que l'ASFERA s'ouvrira de plus en plus vers le monde industriel, et que, de plus en plus, elle deviendra, par ses CFA, le point de rencontre de tous ceux qui, Biologistes, Chimistes, Médecins, Pharmaciens, Physiciens, contribuent aux progrès de la Science des Aérosols en France.

Donc, le 15 septembre 2000, en ce début du 21<sup>e</sup> siècle, une nouvelle équipe prendra en main les destinées de l'ASFERA. Je suis sûr qu'elle continuera à la hisser vers les sommets. De tout cœur, je lui souhaite bonne chance et, comme on dit à Brest ... BON VENT.

Professeur André RENOUX  
Président de l'European Aerosol Assembly

*En Hommage au Professeur K.R. SPURNY  
(1924 - 1999)*



TAILLE, NATURE CHIMIQUE ET TOXICITE DES AEROSOLS  
ATMOSPHERIQUES  
CHEMISTRY AND TOXICITY OF SIZE SELECTED ATMOSPHERIC  
AEROSOLS

Kvetoslav R. Spurny

Aerosol Chemist, Eichenweg 6, D-57392 Schmallenberg, Germany

The physical, chemical and toxic characteristics of the atmospheric anthropogenic aerosols (AAA) have changed considerably in the highly industrialized countries since about the 1980s. The since the 1970s existing PM-10 standard for the measurement of the concentration of airborne particulate matter, indicating the mass of particles with the aerodynamic diameter less than 10  $\mu\text{m}$ , is for this reason an anachronism.

Particle size resolved composition of the AAA is a complex parameter of choice, which only can satisfactorily characterize the toxic and health harmful potential of the particulate air pollutants. This complex parameter has to be obtained by near-real-time and on-line continuous monitoring.

The measurement and analysis strategies for the evaluation of the AAA have to take much account of particle size distribution and chemistry, which can cause health problems for the general population, children, elderly and vulnerable persons.

Three parameters of basic importance should be considered: Physical characterization (mass concentration of PM-2.5 and PM-1.0, and particle number concentration of PM-0.1).

Chemical characterization (chemical composition of these three fractions) and biological characterization (toxicity, mutagenicity, etc.).

## CONFERENCE EUROPEENNE SUR LES AEROSOLS

Prague 6-10 septembre 1999

Christelle HUET

LARAAH - Faculté des Sciences de BREST

En septembre dernier, j'ai participé à la conférence européenne sur les aérosols. Je tiens à remercier vivement les membres de l'ASFERA pour la bourse qu'ils m'ont offerte afin de financer ma participation à ce congrès. J'ai ainsi pu présenter une partie des travaux de recherche que j'ai réalisés dans le cadre de ma thèse au Laboratoire de Recherches Appliquées Atmosphère-Hydrosphère de l'Université de Bretagne Occidentale sous la direction du Professeur Tymen.

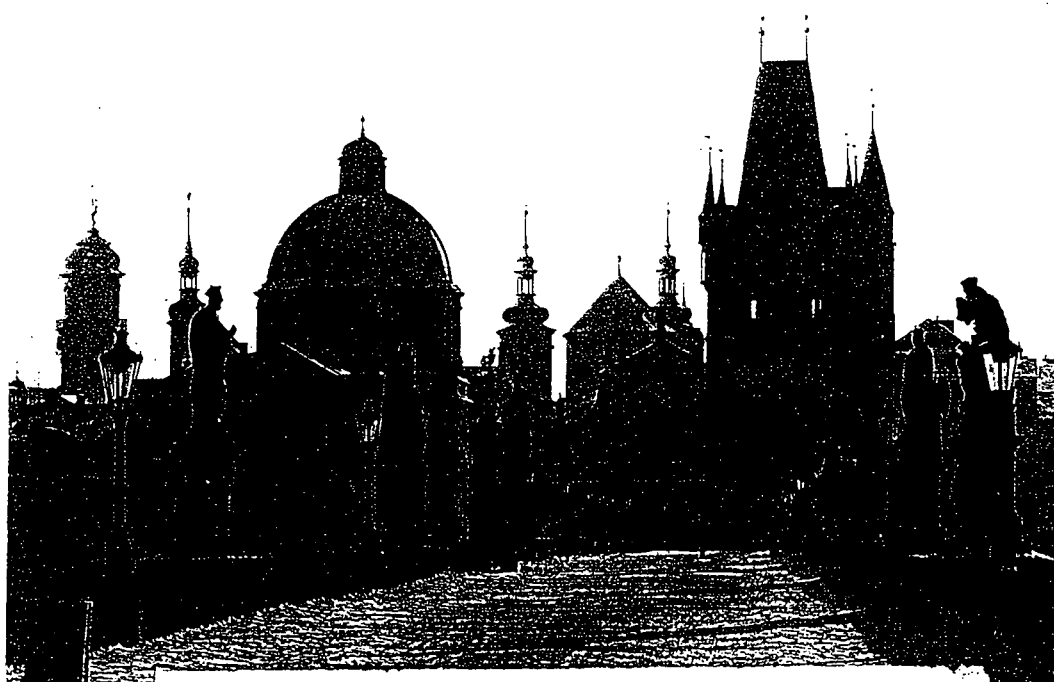


Figure 1: Vue du pont Charles.

Le congrès s'est donc déroulé du 6 au 10 septembre 1999 à l'Institut d'Agriculture de Prague en République Tchèque. Chaque matinée et chaque après-midi débutaient par une conférence plénière sur un thème à chaque fois différent et d'actualité: l'aérosol atmosphérique, les nanoparticules... Ensuite 4 sessions avaient lieu en parallèle. Les exposés ont couvert l'ensemble des thèmes de la Science des Aérosols, en particulier de nombreuses communications portaient sur l'aérosol atmosphérique et l'instrumentation. Au total, 452 contributions provenant de 34 pays (Europe, Asie, Etats Unis) ont été présentées. De nombreux chercheurs de renommée internationale étaient présents et j'ai eu la chance d'en rencontrer quelques uns.

Ma présentation orale s'est déroulée le jeudi après-midi dans la session "Health Effects" qui comportait 6 communications. Mon exposé portait sur l'étude des caractéristiques physiques des dérivés à vie courte du Radon-222 en atmosphère domestique et plus précisément sur les résultats obtenus lors d'une comparaison entre la modélisation et l'expérimentation. Ce type d'étude s'inscrit dans le but de fournir des données d'entrée réalistes pour les modèles dosimétriques. Mon exposé s'intégrait tout à fait dans le cadre de la session puisqu'elle était précédée de trois communications portant sur le dépôt des aérosols dans les voies respiratoires.

Dans le cadre du congrès, deux manifestations culturelles ont été organisées. Tout d'abord, le mardi soir, nous avons pu assister à un concert piano-violoncelle donné par les épouses des Professeur Wagner et Marijnissen. Enfin le jeudi soir, nous avons été conviés sur l'île de Zoffin au dîner de gala.

J'ai également profité de mon séjour dans cette ville magnifique pour faire un peu de tourisme. Prague est une ville très riche en monuments et, malgré les divers événements historiques qui s'y sont déroulés, ces derniers sont pour la plupart restés intacts. La ville est séparée en deux par le fleuve, la Vltava, qui est enjambé par un pont magnifique: le pont Charles (Figure 1). A Prague, tous les styles se côtoient: roman, gothique, baroque et art nouveau. Un des clous de la ville est l'horloge astronomique (Figure 2) qui se trouve sur la place de la Vieille-Ville. Toutes les heures, la foule se masse devant l'horloge pour admirer les douze apôtres qui défilent devant deux fenêtres tandis qu'un coq chante en agitant ses ailes.

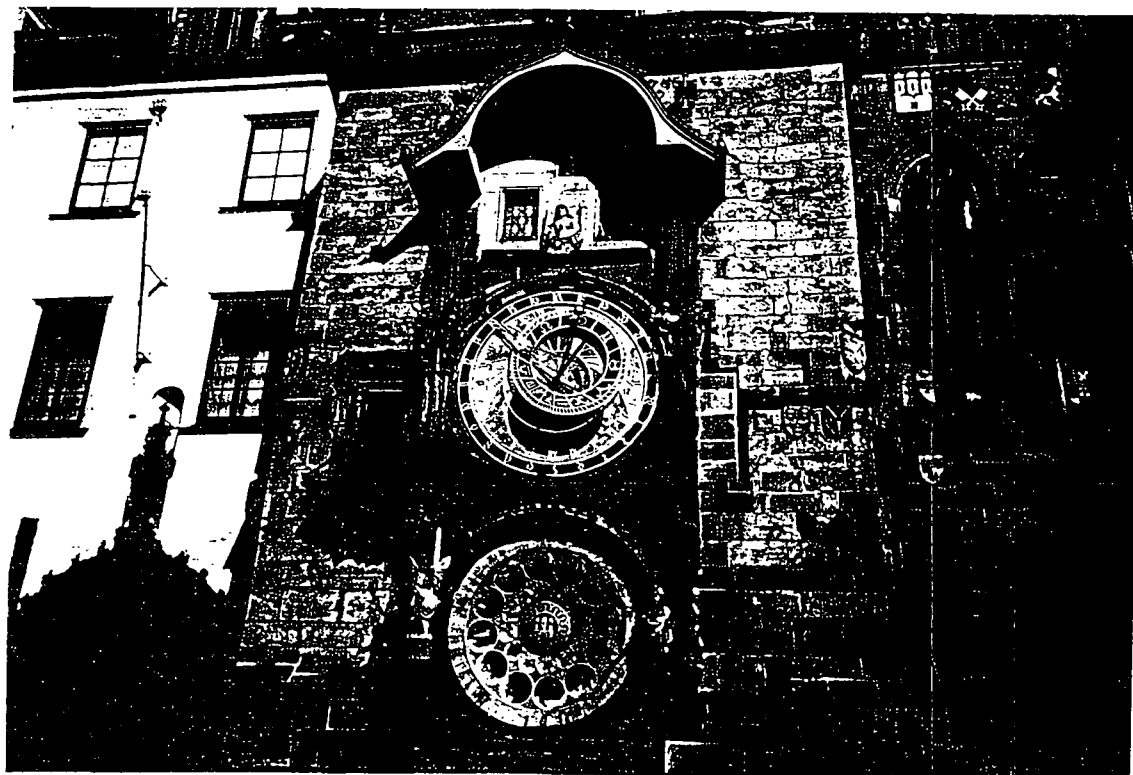


Figure 2: Horloge astronomique de la Vieille-Ville.

Un après-midi, avec une partie de la délégation française, je suis allée visiter le château et ses alentours. Nous avons eu la chance d'être accompagnés par le Docteur P. Görner, chercheur à l'INRS, qui, grâce à son origine tchèque, a ainsi pu nous livrer quelques anecdotes historiques au cours de la visite. Nous avons également pu découvrir les nombreuses spécialités culinaires de la République Tchèque.

Ce congrès fut ainsi très enrichissant et très plaisant et je rends hommage à l'initiative de l'ASFERA de financer la participation chaque année d'un ou plusieurs jeunes chercheurs français à ces congrès européens et internationaux. J'encourage également vivement les jeunes chercheurs en thèse à concourir pour l'obtention de cette bourse.

C. Huet

# RISQUES SANITAIRES LIES A LA PRESENCE DE BIOCONTAMINANTS DANS L'HABITAT

Dominique DERANGERE

Centre Scientifique et Technique du Bâtiment

## RESUME

Il y a quelques trois milliards d'années sont apparues sur terre les premières cellules, les premiers micro-organismes. Trois milliards d'années d'adaptation à l'environnement, naturel ou de plus en plus artificiel avec l'apparition et l'évolution de l'homme et de son habitat. Depuis toujours donc, l'homme a du s'adapter, combattre ou utiliser ces hôtes de l'invisible.

A la fin des années trente, l'homme a cru pouvoir gagner son combat contre les infections bactériennes avec l'apparition des antibiotiques. Les techniques et les procédés toujours plus performants de la stérilisation, la désinfection, de l'hygiène, la maîtrise de l'environnement intérieur ont peut-être renforcé la conviction de l'homme sur sa capacité à maîtriser et éradiquer les pathologies d'origine microbienne. C'était sans compter la formidable capacité d'adaptation des micro-organismes que leurs milliards d'années d'existence ont rompu à toutes les parades, au développement d'armes secrètes mettant en place des mécanismes de défense aux agressions externes. Aujourd'hui, pour ne prendre que l'exemple des infections nosocomiales, 90 à 95 % des souches de staphylocoques d'origine hospitalière sont résistantes non seulement à la pénicilline, mais aussi à la majorité des béta-lactamines.

Pour des raisons d'économies d'énergie et de confort, on a vu apparaître dans les années 70 un renforcement de l'enveloppe des bâtiments et le développement des systèmes de climatisation. Parallèlement, on assiste à l'émergence de nouvelles pathologies, liées spécifiquement à l'environnement intérieur telle que la légionellose, des pathologies immuno-allergiques et le Sick Building Syndrom.

Le lien épidémiologique entre la climatisation et le Sick Building Syndrom et des troubles immuno-allergiques a été démontré. La mise en relation des polluants chimiques dans l'air intérieur et l'apparition de certains troubles non symptomatiques (irritations, allergies, SBS, sécheresse cutanée...) ou sévères (cancer et benzène) est largement évoquée dans la littérature internationale. Le lien entre micro-organismes et troubles de santé est beaucoup plus difficile à établir, et bien moins documenté, en dehors du champs des pathologies infectieuses (légionellose, tuberculose, fièvre...). La composition d'un aérosol microbien ou bio-aérosol dans l'air intérieur est particulièrement complexe ; on peut y retrouver aussi bien des micro-organismes vivants, bactéries, virus champignons et protozoaires, que des fragments microbiens, antigéniques ou toxiques, voire des substances organiques volatiles, d'origine microbienne.

La formation d'un bioaérosol ou l'aérobiocontamination de l'air intérieur dépend de plusieurs conditions : (1) la présence d'un ou plusieurs réservoir(s) microbien(s) (vivant ou inerte) ; (2) la possibilité d'amplification microbienne par multiplication active grâce à divers facteurs physiques, chimiques ou (micro)biologiques, permettant au micro-organisme d'atteindre une concentration critique ; (3) la dissémination par perturbation du milieu et génération d'un bioaérosol ; (4) la survie des micro-organismes dans le bioaérosol ; (5) le type de ventilation du local. Le déclenchement ou non d'une pathologie dépend également des facteurs de risque personnel de la personne exposée (état de santé, immuno déficience, ...)

La dissémination aérienne s'effectue selon différents modes. Elle peut être continue ou discontinue. La parole, la toux, les éternuements provoquent l'expulsion d'un grand nombre de gouttelettes microbiennes qui donnent naissance, après évaporation, à des noyaux de condensation ou droplets nuclei. Ces derniers sont de véritables concentrés de germes, facilement diffusibles et transportables à distance. D'autre part, les squames cutanées, libérées en permanence par la desquamation de la couche kératinisée de l'épiderme, contaminent également l'atmosphère par des bactéries ou des champignons souvent encore viables.

La perturbation mécanique d'un milieu hydrique contaminé ou d'un biofilm colonisant une surface, la manipulation d'un produit ou d'un matériel contaminé permet de libérer les micro-organismes de leurs sources. La formation d'aérosols biologiques peut ainsi être favorisée avec certains systèmes d'humidification, les tours aéro-réfrigérantes et lors du nettoyage d'une surface contaminée sans précautions particulières. La biocontamination des systèmes de ventilation, considérés comme des générateurs potentiels de bioaérosols, est l'un des facteurs de risque identifiés dans les cas du SBS.

Certaines difficultés météorologiques et méthodologiques, le manque d'études épidémiologiques, ne permettent pas encore de démontrer une relation claire de cause à effet entre l'inhalation de particules biologiques aéroportées et l'apparition de symptômes plus ou moins graves, plus ou moins spécifiques du fait en particulier:

- de la difficulté de la définition de l'exposition, du fait que les micro-organismes sont présents dans l'air et à concentration variable, dans le temps et l'espace, en fonction des espèces

- des difficultés de définir le "cas" pathologique, notamment lorsqu'il s'agit de symptômes aspécifiques (irritations, troubles immuno-allergiques...)

- de la présence de nombreux facteurs confondants

- des difficultés de la mesure de l'exposition, liés au principe des techniques de prélèvement et d'identification et à l'état métabolique des micro-organismes.



# MISE AU POINT D'UN IMPACTEUR DESTINE A L'AEROBIOCONTAMINATION DES PRODUITS DE CONSTRUCTION.

A.L. Dufour<sup>\*</sup>, E. Robine<sup>\*\*</sup>, D. Derangère<sup>\*\*</sup>, D. Robin<sup>\*\*</sup>

<sup>\*</sup>L.P.A.T.C., Université Paris XII, Avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil

<sup>\*\*</sup>Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, 84 avenue Jean Jaurès, Champs-sur-Marne, BP 02, 77421  
Marne-la-Vallée Cedex 2, [robine@cstb.fr](mailto:robine@cstb.fr)

## RESUME

Dans le cadre général de la qualité de l'air à l'intérieur des bâtiments, et pour répondre à la directive européenne « produits de construction (1988) » qui définit des exigences en terme d'hygiène, de santé et d'environnement, le Centre Scientifique et Technique du Bâtiment (CSTB) a mis en place un programme de recherche destiné à évaluer l'aptitude hygiénique des matériaux de construction. Cette recherche vise à établir une classification de ces produits selon leur aptitude à favoriser ou non la colonisation microbienne en fonction des conditions environnementales d'utilisation. L'un des principaux axes de la démarche expérimentale adoptée a été le développement de techniques de contaminations de surfaces par des bactéries aéroportées.

L'objectif de l'étude visait à mettre au point un nouveau dispositif destiné à améliorer l'aérobiocontamination des différentes surfaces inertes. Les progrès devaient porter sur l'obtention d'une contamination homogène de la surface, avec une bonne efficacité de collecte tout en conservant la viabilité des bioaérosols utilisés.

Les premiers résultats de la validation expérimentale du prototype ont montré, pour un aérosol de taille supérieure à 0,32 µm (diamètre optique), une efficacité de collecte de 83 %. Le déplacement longitudinal de la buse, assuré par un système motorisé, permet une contamination homogène de la surface avec un taux de survie des microorganismes de l'ordre de 80 %. La conception de l'appareil permet d'utiliser différents matériaux (en terme d'épaisseur) et de collecter des microorganismes de tailles différentes.

**Mots clés :** bioaérosol; impacteur; produits de construction; hygiène des surfaces

## INTRODUCTION

Certains environnements intérieurs nécessitent une maîtrise de la biocontamination de l'air et des surfaces. Dans le cadre d'une meilleure prévention et détection de ces contaminations d'origine microbienne, le Centre Scientifique et Technique du Bâtiment a mis en place au sein de sa division "Santé et Bâtiment", un programme de recherche destiné à évaluer l'aptitude hygiénique des matériaux de construction. Un banc d'essai expérimental a été conçu afin de simuler une contamination par voie aérienne de différentes surfaces inertes. Le but de cette expérimentation vise à établir une classification des produits de construction selon leur aptitude à favoriser ou non l'adhésion puis la survie microbienne en fonction des conditions environnementales d'utilisation [1]. Le principe repose sur la génération et la contamination contrôlée des surfaces par un bioaérosol de type bactérien. Pour simuler une contamination bactérienne aérienne des matériaux et évaluer les bactéries viables fixées sur les supports, on utilise un principe de collecte adapté à des particules biologiques viables, permettant d'assurer une contamination reproductible des matériaux testés. Ce principe est celui de l'impaction et repose sur un préleveur Andersen à un seul étage. Une grille de 400 trous de 0,25 mm de diamètre répartis concentriquement, permet d'obtenir 400 zones réduites d'impaction. Celles-ci se présentent sous forme de « spots » disséminés régulièrement sur la surface à tester ; les particules biologiques se répartissant selon un gradient de concentration plus élevé au centre de la zone. La composition des matériaux à évaluer étant le plus souvent hétérogène, il importe d'améliorer ce principe de façon à obtenir une contamination répartie sur l'ensemble de la surface à analyser tout en gardant une bonne efficacité de collecte et un maximum de survie des particules biologiques impactées. Plusieurs principes de collecte d'aérosols biologiques ont donc été envisagés : les méthodes électrostatiques sont des méthodes peu applicables avec les bioaérosols car elles affectent leur viabilité [2]. Parmi les méthodes aérodynamiques, la centrifugation présente des difficultés de mise en œuvre pour obtenir une contamination répartie sur l'ensemble de la surface à tester ; la sédimentation est quant à elle difficilement envisageable pour récupérer de petites particules sur une surface inerte. La conception d'un nouveau dispositif s'est donc basée sur le principe de l'impaction, avec une prise en compte des exigences liées à la viabilité des bioaérosols, au diamètre de coupure des particules, ainsi qu'à des exigences en terme de reproductibilité de la méthode.

# MATERIELS ET METHODES

## CHOIX DU BIOAEROSOL

L'étude porte sur un aérosol bactérien. Nous avons utilisé une souche de collection de l'Institut Pasteur : *Enterococcus faecalis* 10.30.15. Il s'agit d'un coque à Gram positif, de forme sphérique.

## CARACTERISATION DE LA CONTAMINATION DE SURFACE

A partir d'observations réalisées à la loupe binoculaire, nous avons évalué la zone contaminée sur une surface en verre. La distribution de la contamination a été caractérisée par des dénombrements bactériens sur une surface d'acier à l'aide d'un microscope électronique à balayage (JEOL 5600 LV). 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).

Le dénombrement des cellules bactériennes est réalisé de façon automatique par un système d'analyse d'images (société *Microvision*), composé :

- 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'un micro-ordinateur PC HP90vl sur lequel est installé deux logiciels d'analyse d'images développés pour nos applications (Colonia et Histolab, Société *Microvision*)[4].

## EVALUATION DE LA SURVIE BACTERIENNE PAR OBSERVATION MICROSCOPIQUE.

L'évaluation de l'intégrité de la membrane cytoplasmique de la cellule bactérienne est visualisée par passage passif de deux marqueurs fluorescents (KIT blaight, colorants A et B de la Société *Molecular Probe Inc*), ayant respectivement une bande spectrale de 510 à 540 nanomètres (réémission dans le vert, colorant A) et 620 à 650 nanomètres (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. L'ensemble des cellules bactériennes fluorescent, « mortes et vivantes », après excitation par la lampe à mercure de 50 W du microscope à épifluorescence à la longueur d'onde de 365 nm (*Axioscop de la société Zeiss*). 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 Achroplan 100x/1.25 en immersion, 40 et 10 à sec (*Zeiss*).

## RESULTATS-DISCUSSION

### CARACTERISTIQUES DU BIOAEROSOL

Le principe de la chaîne d'aérosolisation a été décrite sur [1,4]. Le diamètre optique de l'aérosol bactérien est compris entre 0,4 et 0,8 µm (fig 1.), le diamètre aérodynamique moyen est de 0,8 µm et des dimensions de l'ordre de 1 µm sont observées au microscope.

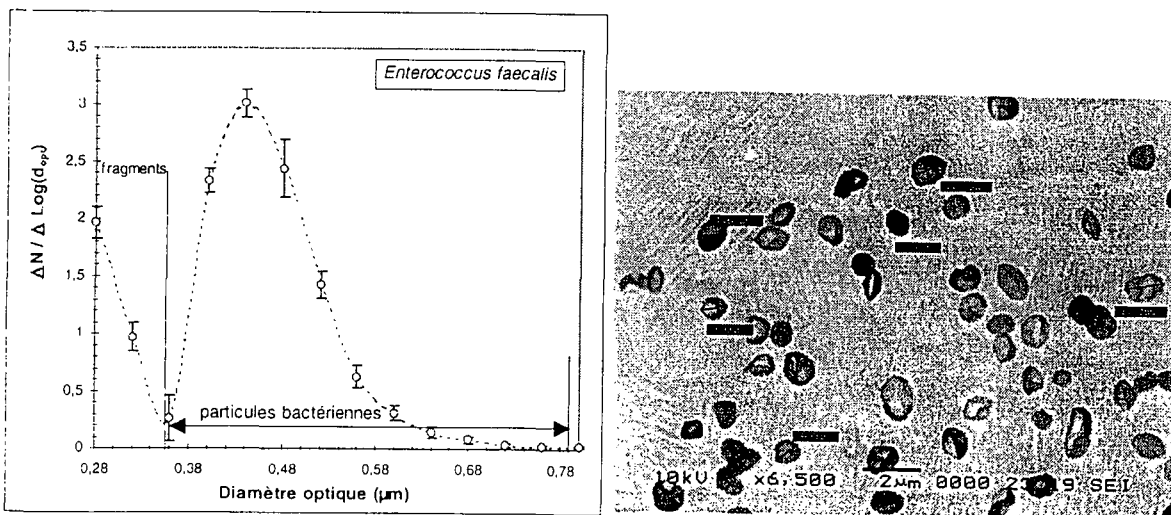


Figure 1 : Profil granulométrique et observation au microscope électronique à balayage d'un *Enterococcus*

*faecalis* après aérosolisation.

### CONCEPTION ET DESCRIPTIF DU PROTOTYPE

En s'appuyant sur la théorie de l'impaction, nous avons déterminé les caractéristiques dimensionnelles du prototype. Il s'agit de la géométrie et du diamètre ( $D$ ) de la buse, de la hauteur ( $S$ ) qui sépare la buse au produit de construction (valeur fixée à partir du ratio  $S/D$ ) ainsi que de la surface que nous cherchons à contaminer selon le déplacement longitudinal de la buse. Pour cela, les travaux théoriques de *Rader et Marple* sur les efficacités de collection pour les impacteurs à orifices circulaires nous ont permis de déterminer le diamètre  $D$  de la buse à usiner [3].

En fixant le diamètre de coupure  $d_{p50}$  à  $0,5 \mu\text{m}$ , le nombre de Reynolds à 3000 (de façon à obtenir une efficacité de coupure maximale), et le ratio  $S/D$  à 1 (pour évaluer la distance  $S$  et obtenir la meilleure efficacité de collecte), nous avons déterminé, pour une efficacité de collecte théorique de 50 %, la valeur de  $\sqrt{Stk_{50}}$ .

A partir de cette valeur, nous avons calculé le diamètre  $D$  qui est de 1,6 mm.

De façon à caractériser l'effet du ratio  $S/D$  sur l'efficacité de collection, nous avons ensuite déterminé 3 valeurs de ce rapport qui doit rester compris entre 1 et 10 [3]. Nous en avons alors déduit trois distances  $S$  (distance séparant la sortie de la buse à la surface de collection), égales à 1,6 ; 8 et 12,8 mm.

S/D	1	5	8
S (mm)	1,6	8	12,8

Nous avons fixé la surface de contamination du produit de construction à  $(18 \times 1) \text{ mm}^2$ , surface définie par les exigences d'analyse ultérieures des matériaux testés en microscopie.

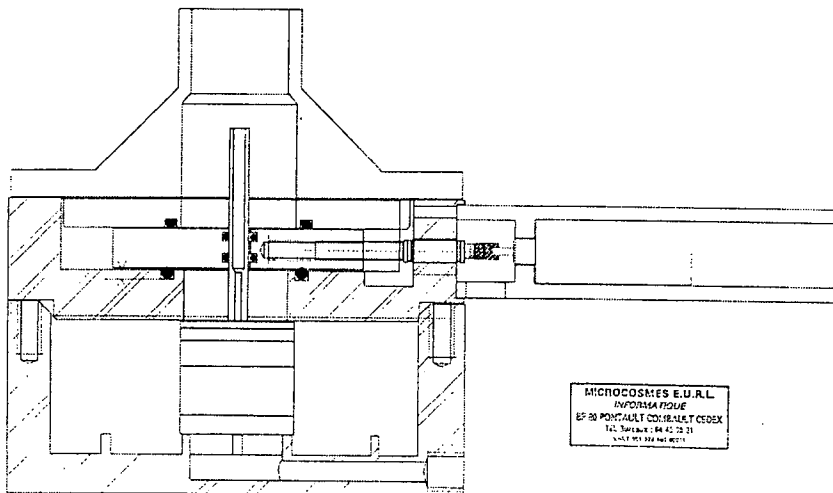


Figure 2 : Plan en coupe transversale de l'appareillage.

L'appareillage représenté en coupe transversale sur la figure 2, est constitué d'une bride d'entrée de l'air contenant les bioaérosols. La buse, au cours du prélèvement, se déplace longitudinalement grâce à un système motorisé électro-aimanté. La distance  $S$  est préalablement ajustée par différentes cales de réglage. L'appareillage est confectionné en acier inoxydable de façon à ce que les parties directement en contact avec les bioaérosols puissent être stérilisées.

L'écoulement du gaz obtenu dans la buse est un écoulement très turbulent ( $Re=16,1.10^3$ ) augmenté d'un facteur 5 par rapport à l'impacteur Andersen à un seul étage précédemment utilisé ( $Re=3000$ ). D'autre part la vitesse d'écoulement dans la buse, comparée également à celle de l'impacteur Andersen à un seul étage ( $U_0=24,02.10^2 \text{ cm/s}$  pour chaque trou de  $0,25 \text{ mm}$  de diamètre) est 6 fois plus élevée.

L'efficacité de collecte du nouvel appareil pour les bioaérosols testés, a été caractérisée à l'aide du montage d'aérobiocontamination déjà mis en place au C.S.T.B.[1] (fig.3). Les résultats montrent, pour une granulométrie comprise entre  $0,32$  et  $0,84 \mu\text{m}$ , une efficacité de collecte supérieure à 80% (83,3%) pour la plus petite distance  $S$  séparant la sortie de la buse à la surface de collection ( $S=1,6 \text{ mm}$ ). C'est en fixant cette distance que nous avons caractérisé la distribution de la contamination et évalué la survie des bioaérosols.

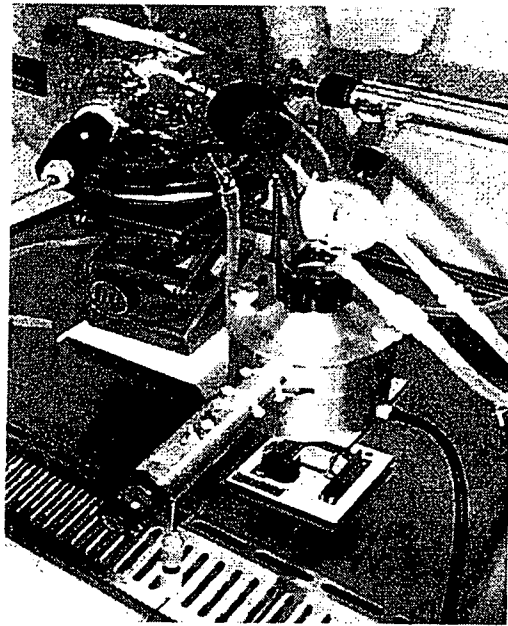


Figure 3 : Photographies de la cellule d'aérobiocontamination automatisée

Nous avons observé à la loupe binoculaire la contamination de surface (figure 4). Les observations montrent une contamination régulière sous forme d'une bande de 18 X 1 mm. On obtient de part et d'autre de cette surface de contamination deux spots, l'un correspond à l'impaction avant le déplacement de la buse, l'autre aux bactéries impactées après déplacement longitudinal de la buse.

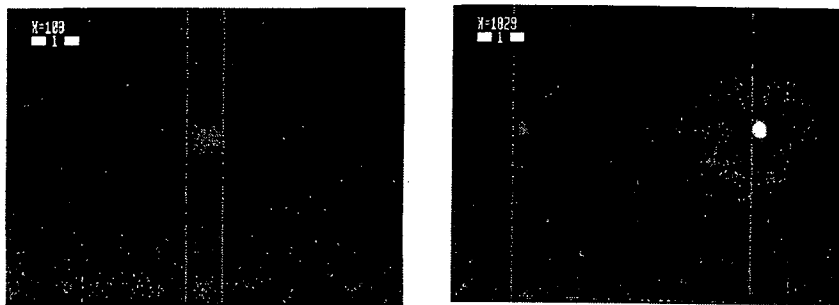


Figure 4 : Observation à la loupe binoculaire de la zone de contamination.

Afin de caractériser la distribution de la contamination, on effectue des dénombrements bactériens sur une surface d'acier à l'aide du microscope électronique à balayage. Les résultats sont exprimés par  $\mu\text{m}^2$  selon les déplacements effectués en X et en Y pour une longueur de contamination égale à 9 mm (figure 5). La représentation tridimensionnelle ainsi obtenue montre une contamination caractérisée par un gradient de concentration régulier. On évalue la répartition bactérienne en surface de l'ordre de 2500 bactéries par  $\mu\text{m}^2$  dans ces conditions d'essai.

$$z = 1240,13 + 20,696 \cdot x + 1864,477 \cdot y - 5,891 \cdot x^2 + 21,986 \cdot x \cdot y - 696,416 \cdot y^2$$

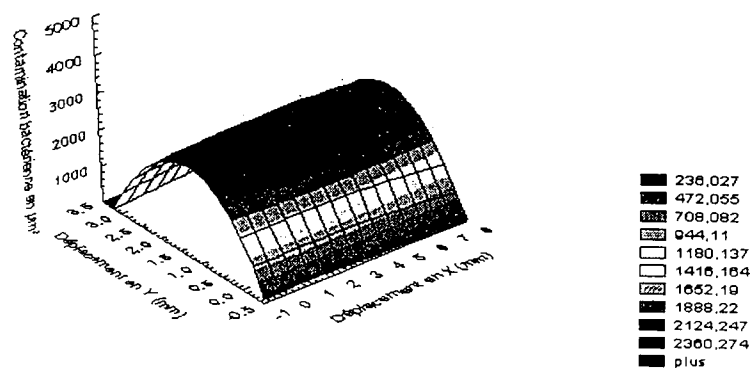


Figure 5 : Distribution de la contamination de surface

Enfin l'observation directe des cellules bactériennes au microscope à épifluorescence après marquage spécifique, a permis d'évaluer leur intégrité membranaire. On évalue à 80% le pourcentage de survie de ces bactéries (avec un écart-type de 1,2) pour une hauteur de buse de 1,6 mm.

## CONCLUSION

Notre travail visait à mettre au point un nouveau dispositif expérimental destiné à améliorer la simulation d'une contamination par voie aérienne de différentes surfaces inertes. Pour cela, les objectifs de départ étaient d'obtenir une contamination homogène de la surface totale à tester, tout en gardant une efficacité de collecte comparable à celle de l'ancien impacteur ainsi qu'une survie des bioaérosols sur la surface.

Nous avons conçu et évalué les performances d'un nouveau prototype d'impaction en couplant des techniques physiques d'observation des aérosols (compteur optique de particules), de dénombrement et d'observations microbiologiques (microscopies optique et électronique à balayage) vis à vis de ses caractéristiques physiques et du comportement physiologique pour les bioaérosols.

Les premiers résultats de la validation expérimentale ont montré, une efficacité de collecte supérieure à 50% pour les distances S de 1,6 et 8 mm (pour un rapport S/D respectif de 1 et 5). Dans nos conditions expérimentales, seule la distance de 1,6 mm permet d'obtenir une efficacité totale supérieure à 80%. Le déplacement longitudinal de la buse, assuré par le système de motorisation, a permis une contamination homogène de la surface (mise en évidence par un gradient de concentration régulier) avec une survie des bioaérosols de 80% ( $\pm 10$ ).

Le développement de ce prototype permet d'envisager l'application à des bioaérosols de taille et de nature différentes (spores fongiques) ainsi que l'utilisation pour différents types de matériaux.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

1. **ROBINE E.**, « *Fixation et survie des aérosols bactériens sur les surfaces* », Thèse de l'Université Paris XII, avril 1999.
2. **MAINELIS G., GRINSHPUN S.A., WILLEKE K., REPONEN T., ULEVICIUS V., HINTZ P.J.**, « Collection of airborne microorganisms by electrostatic precipitation », *Aerosol Science and Technology*, Vol.30, N°2, pp.127-144, février 1999.
3. **MARPLE V.A., RUBOW KENNETH L., OLSON B.A.**, « Inertial, Gravitational, Centrifugal, and Thermal Collection Techniques », *Aerosol Measurement-Principles Techniques and Applications* édité par WILLEKE K., BARON P.A., pp. 206-231, 1993.
4. **ROBINE E.**, « *Survie d'un aérosol de Pseudomonas fluorescens et Enterococcus faecalis sur des surfaces inertes* », Actes du 14<sup>ème</sup> Congrès Français des Aérosols, pp 79-84, décembre 1998.

# PERFORMANCES DE MEDIAS FILTRANTS UTILISES EN DEPOUSSIERAGE INDUSTRIEL

S. Callé<sup>(1)</sup>, D. Bémer<sup>(2)</sup>, D. Thomas<sup>(1)</sup>, P. Contal<sup>(1)</sup>, D. Leclerc<sup>(1)</sup>

<sup>(1)</sup> LSGC-CNRS, 1 rue Grandville, BP 451, 54001 Nancy cedex, France

<sup>(2)</sup> INRS, Ave de Bourgogne, BP 27, 54501 Vandoeuvre les nancy, France

## RESUME

L'objectif de cette étude est le suivi des performances de filtration de deux médias filtrants utilisés en dépolluierage industriel lorsqu'ils sont soumis à des cycles de colmatage et de décolmatage par à-coup de pression à contre-courant. Un banc d'essais a été mis au point pour la détermination de la perte de charge et l'efficacité fractionnelle de filtration de ces médias filtrants au cours de ces cycles. L'aérosol colmatant est constitué de particules d'alumines de diamètre médian aérodynamique en masse de 4,8  $\mu\text{m}$ . La vitesse de filtration est fixée à 2  $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ . Les résultats montrent d'une part que la perte de charge résiduelle après décolmatage augmente au fur et à mesure des cycles et d'autre part que l'efficacité de filtration augmente très fortement à l'état décolmaté par rapport aux valeurs initiales. L'un des deux médias testé présentant un traitement de surface anti-colmatant a permis de mettre en évidence une influence de ce traitement sur l'amélioration de la durée de vie du filtre. Les mesures d'efficacité fractionnelle réalisées sur le banc d'essais ont été confrontées à des mesures d'efficacité de séparation d'un dépolluier industriel et montrent l'intérêt de prendre en compte ces cycles de colmatage et décolmatage pour évaluer les performances de médias filtrants.

**Mots clés :** Efficacité, filtration, colmatage, décolmatage, aérosol, perte de charge

## INTRODUCTION

Le recyclage de l'air dans les locaux de travail est une technique de ventilation très répandue qui nécessite un contrôle permanent de la qualité de l'air recyclé et par conséquent des performances de filtration des dépolluier. Ce contrôle peut se faire selon deux approches. La première est un suivi sur site de la concentration en polluant en sortie du dépolluier ou de son efficacité de séparation. La seconde repose sur une détermination en laboratoire de l'efficacité de filtration du média filtrant constituant les manches du dépolluier. A l'heure actuelle les méthodes normalisées ne permettent une classification des médias utilisés en dépolluier industriel qu'à partir de données d'efficacité mesurées sur les médias à l'état neuf. Or les performances ainsi obtenues sont très éloignées de celles des matériels en cours d'exploitation.

L'intérêt de cette étude est de montrer que les performances de filtration de médias varient au cours de leur utilisation caractérisée par des cycles de colmatage et de décolmatage. Un banc de test des médias filtrants a été mis au point et a permis le suivi de deux paramètres, la perte de charge et l'efficacité fractionnelle, en fonction des cycles de filtration et de régénération. Deux médias, notés C et D, utilisés respectivement comme filtre à manche et filtre à cartouche sont testés. L'aérosol filtré est constitué de particules d'alumines ( $d_{ae} = 4,8 \mu\text{m}$ ). La vitesse de filtration est fixée à 2  $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ . Enfin la technique de décolmatage mise au point est celle d'un décolmatage par à-coup de pression à contre-courant.

## MATERIEL ET METHODES

Les caractéristiques physiques initiales des deux médias ont été déterminées. Le média C est constitué de fibres de polyester non tissées alors que le média D est composé de fibres de cellulose recouvertes d'un film de fibres de polymère très fines qui facilitent le décolmatage des particules en limitant l'adhésion de celles-ci à la surface du média. Les grandeurs caractéristiques de chacun des médias sont données dans le tableau 1. La détermination de la distribution de tailles de fibres est réalisée à partir d'analyse d'images microscopiques et application d'une loi log-normale.

Média filtrant	Grammage ( $\text{g.m}^{-2}$ )	Epaisseur ( $\mu\text{m}$ )	Compacité	Diamètre médian des fibres ( $\mu\text{m}$ )
C	475	1400	0,246	12,5
D	135	400	0,225	11,7 / 0,2 (film en surface)

Tableau 1 : Propriétés physiques des médias filtrants testés

Les essais sont réalisés sur une installation constituée d'un caisson de filtration de diamètre 130 mm et d'un système de génération de l'aérosol solide au moyen d'une brosse tournante (Palas RBG 1000). Le débit de filtration est réglé au moyen d'un by-pass à une valeur de  $14,7 \text{ NL.min}^{-1}$ . La concentration des particules est de  $700 \text{ mg.Nm}^{-3}$ . De part et d'autre du filtre se trouvent deux conduits de prélèvements permettant la détermination de l'efficacité de filtration ainsi que deux prises de pression pour le suivi en continu de la perte de charge. Le schéma de cette installation est donné sur la figure 1.

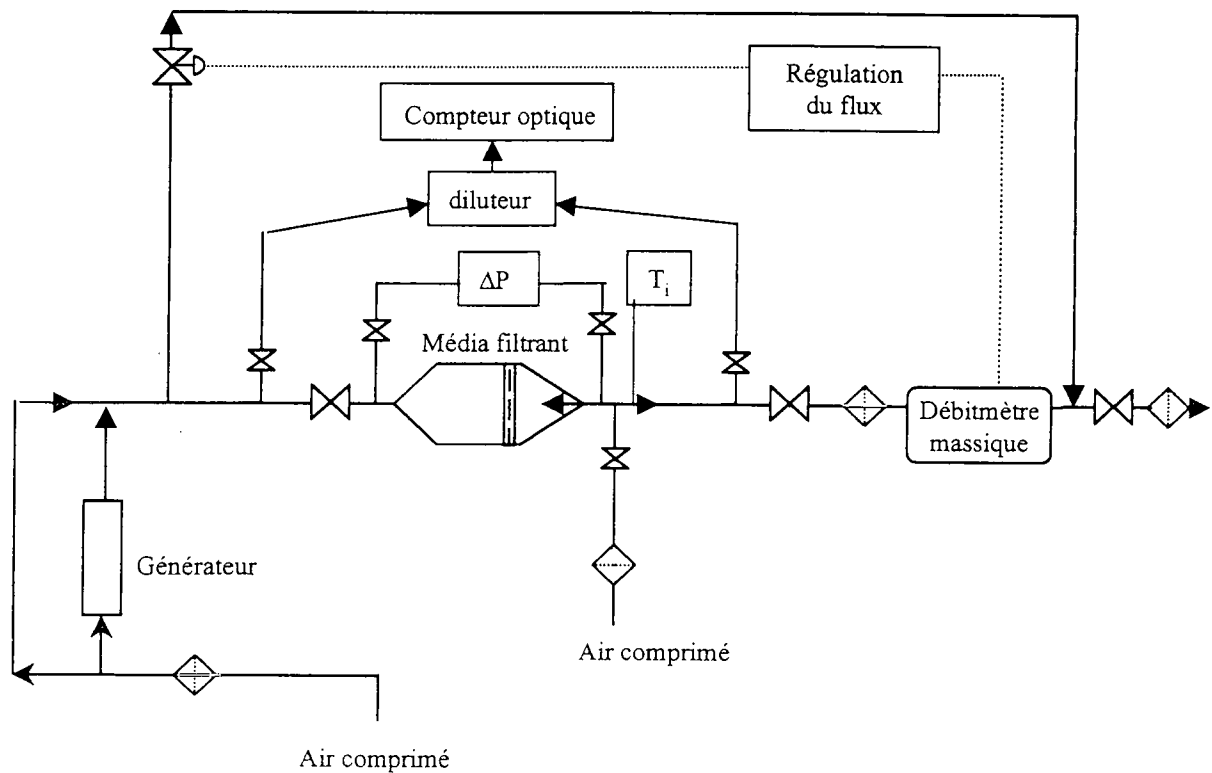


Fig. 1 : Banc de test des médias filtrants

L'efficacité fractionnelle de filtration est déterminée par prélèvements isocinétiques alternés, entre l'amont et l'aval du média, au moyen d'un compteur optique (PMS Lasair 1001) d'un aérosol polydispersé, généré par nébulisation d'une solution de KCl. L'efficacité de filtration pour une tranche granulométrique donnée est alors définie par le rapport du débit massique de particules collectées sur le débit massique de particules à l'amont du média. En considérant le débit de filtration constant, l'efficacité en nombre est déterminée conformément au projet de norme européenne EN 779 (1998).

Le fonctionnement de cette installation peut se scinder en deux parties.

La première consiste en le suivi de la perte de charge et de l'efficacité de séparation au cours du colmatage.

La seconde est le décolmatage par à-coup de pression à contre-courant, déclenché lorsque la perte de charge atteint la valeur arbitraire de 350 Pa. La vanne d'amenée d'air à contre-courant est ouverte alors pendant 0,4 secondes accompagnée d'une montée en pression de 1300 Pa à l'aval du filtre. La surface du filtre subit une déformation. Pendant ces séquences de décolmatage, la filtration n'est jamais interrompue.

Les deux médias sont testés dans les mêmes conditions. Au cours du premier cycle, l'efficacité fractionnelle est déterminée à l'état initial puis à l'état colmaté. Ce paramètre est ensuite mesuré tous les dix cycles dans les états colmaté et décolmaté. La perte de charge est constamment suivie au fur et à mesure des cycles.

## RESULTATS

### Evolution de la perte de charge avec les cycles

Les figures 2 et 3 présentent respectivement l'évolution de la perte de charge des médias C et D avec les cycles de colmatage et décolmatage établies dans des conditions opératoires identiques.

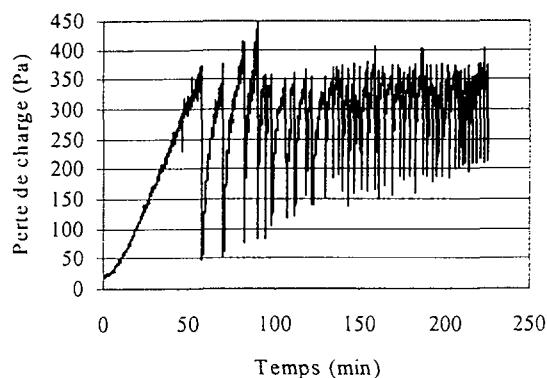


Fig. 2 : Evolution de la perte de charge du média C avec les cycles

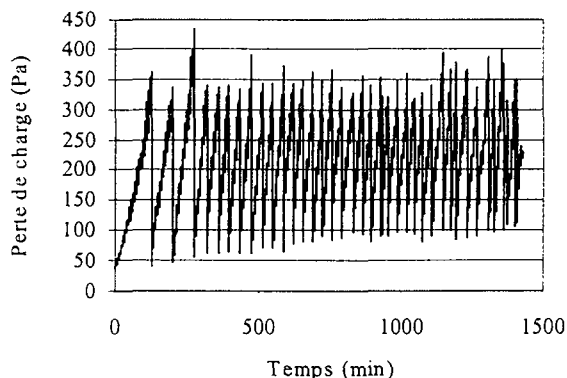


Fig. 3 : Evolution de la perte de charge du média D avec les cycles

Au cours du premier cycle, le colmatage de chacun des deux médias neufs présente deux étapes distinctes correspondant respectivement à la filtration en profondeur puis en surface. Cette seconde phase est bien mise en évidence par une croissance linéaire et rapide de la perte de charge en fonction du temps.

Contrairement à cette évolution, la croissance de la perte de charge après un décolmatage est d'abord très rapide puis suit une évolution quasi linéaire avec le temps. Cette courbe est caractéristique d'un décolmatage par plaques, décrit précédemment par Humphries



(1981) et Koch et al. (1996). Ce phénomène correspond au détachement préférentiel de certains fragments du gâteau de particules formé lors du colmatage précédent. Le système obtenu est composé de deux types de zones, celles complètement décolmatées où ne reste que le média colmaté en profondeur et celles non décolmatées composées du média et d'une couche de particules. Les différences de perte de charge entre ces deux zones entraînent une direction préférentielle du flux à travers les espaces décolmatés et donc une plus grande vitesse de filtration dans ces trous juste après décolmatage, qui explique la croissance très rapide de la perte de charge. Des observations du média décolmaté confirment cette hypothèse de décolmatage par plaques.

Les figures 2 et 3 permettent également de définir une durée de vie du filtre qui correspondrait au temps pendant lequel le filtre est réellement efficace. Il apparaît à la vue de ces deux courbes que très rapidement, le média C est saturé, la fréquence des cycles étant très élevée. Par contre, grâce à son traitement de surface, le filtre D possède une capacité de décolmatage supérieure au filtre C et donc un temps de vie beaucoup plus long : > 1500 min par rapport au filtre C pour lequel le temps de vie serait de 200 min. Ces valeurs sont liées aux conditions expérimentales en laboratoire. L'influence du traitement du média D est ainsi mise en évidence. Après 40 cycles les cycles atteignent un régime permanent dans le cas du média D. On ne peut donc pas à partir de ces résultats expérimentaux définir de durée de vie de ce média.

Après chaque décolmatage la perte de charge décroît jusqu'à une valeur appelée perte de charge résiduelle et traduisant un colmatage irréversible. Les évolutions de la perte de charge résiduelle des deux médias sont représentées sur la figure 4 en fonction de la masse surfacique de particules générées. Pour les deux médias, la perte de charge résiduelle croît avec la masse de particules générée. Cette augmentation est beaucoup plus importante dans le cas du média C, ce qui traduit une plus faible capacité de ce média à se régénérer.

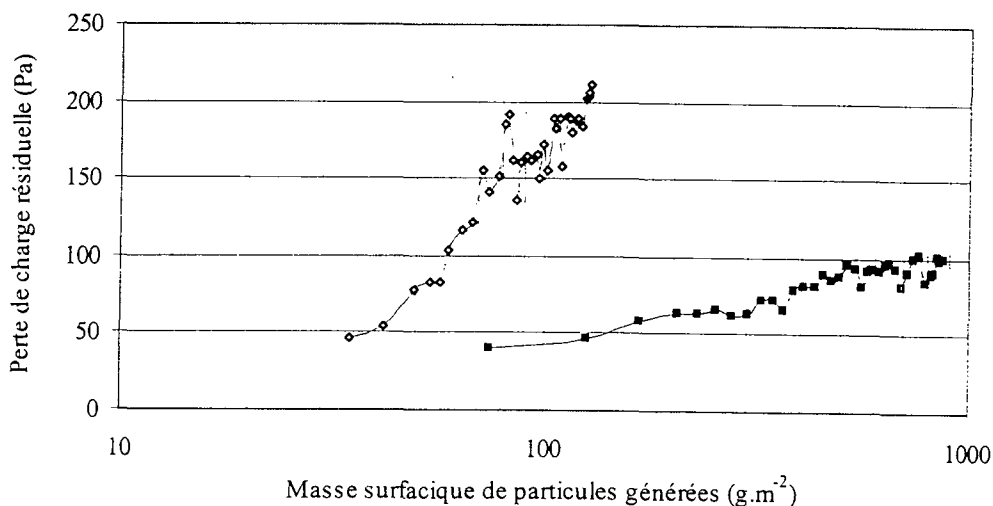


Fig. 4 : Perte de charge résiduelle en fonction de la masse surfacique générée  
 ◇ Média C ; ■ Média D

On retrouve le fait que le traitement de surface du média D limite l'augmentation de sa perte de charge résiduelle, qui reste voisine de la perte de charge initiale du média. Les fibres fines en surface du média empêchent le colmatage en profondeur et favorisent la réversibilité du système. Après décolmatage, le média D retrouve donc des propriétés de filtration voisines de celles de son état vierge et présente donc alors une plus grande capacité de filtration.

## Evolution de l'efficacité fractionnelle avec les cycles

Les figures 5 et 6 présentent les efficacités fractionnelles des médias C et D à différentes étapes des cycles de colmatage et décolmatage.

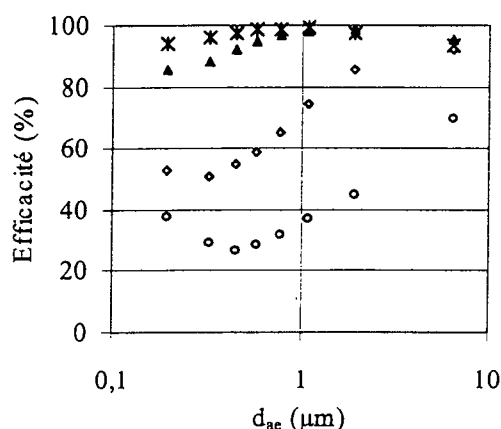


Fig. 5 : Média C

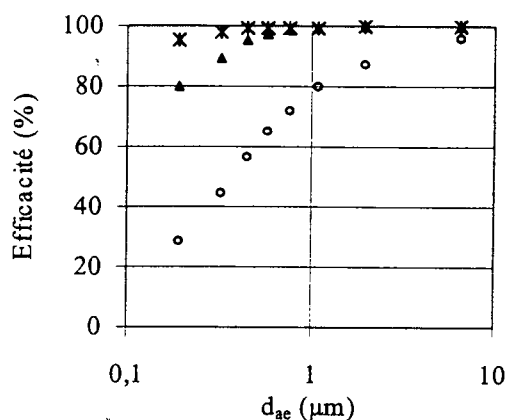


Fig. 6 : Média D

○ Etat initial ; \* Etat colmaté (à  $\Delta P_{max}$ ) ; ◇ Etat décolmaté après le premier cycle (filtre C seul) ; ▲ Etat décolmaté après 40 cycles

L'efficacité fractionnelle augmente très fortement de l'état vierge du média et l'état décolmaté après 40 cycles. A l'état initial le média D est plus efficace que le média C mais en fin de cycles de colmatage et décolmatage leur performances sont comparables. Les deux médias présentent dans les états colmatés et décolmatés après 40 cycles des efficacités de filtration similaires. A partir du premier décolmatage, la très forte croissance de l'efficacité de filtration est due au fait que le gâteau de particules déposées en surface du média devient le principal collecteur et que son efficacité de filtration est beaucoup plus élevée que celle d'un média neuf. Il apparaît nettement que l'efficacité d'un média neuf n'est pas caractéristique de ses performances de filtration en fonctionnement, c'est à dire lorsqu'il subit des cycles de colmatage et de décolmatage.

## Comparaison avec les mesures réalisées in situ

Des mesures d'efficacité fractionnelle ont été réalisées sur un dépoussiéreur industriel pour poussières de bois dont les manches sont constituées du média C. Ce dépoussiéreur fonctionne avec un débit de filtration de  $10000 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  environ et présente une surface filtrante de  $4 \text{ m}^2$ . Ces mesures ont été comparées aux résultats obtenus avec le banc d'essais sur média plan.

La technique de détermination de l'efficacité de séparation du dépoussiéreur est basée sur la génération d'un traceur particulaire fluorescent à l'amont de l'installation et le suivi de sa concentration à l'aval par prélèvement sur impacteur en cascade (Andersen, 1 CFM). Cette méthode a été développée par Bémer et al. (1998) qui a également montré son très bon accord avec la méthode normalisée utilisant le comptage optique.

L'efficacité de filtration du média C plan à l'état décolmaté après 40 cycles et celle du dépoussiéreur sont comparées sur la figure 7. Même si les conditions de filtration et de décolmatage ne sont pas identiques dans les deux cas, une bonne concordance est observée entre les deux séries de résultats. Cette conclusion confirme le fait que la prise en compte de ces cycles de colmatage et de régénération du média filtrant est nécessaire à la détermination de ses performances.

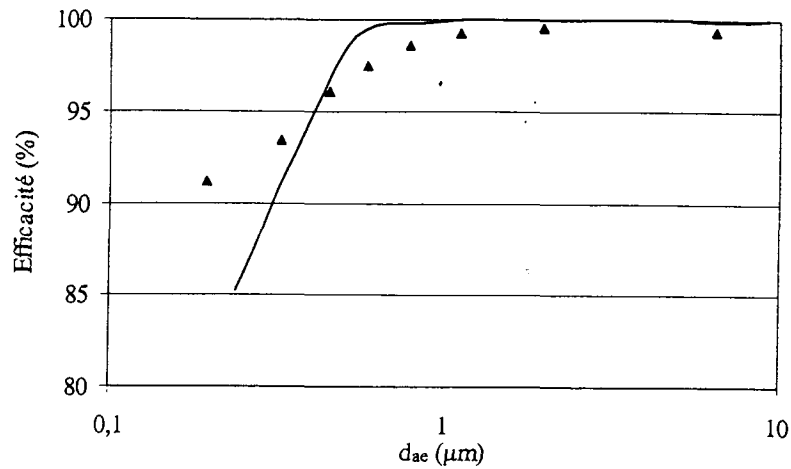


Fig. 7 : Efficacité fractionnelle

▲ Média C à l'état décolmaté après 40 cycles ; — Dépoussiéreur industriel

## CONCLUSION

Les performances de deux médias ont été testées lorsque ces éléments filtrants sont soumis à des cycles de colmatage et de décolmatage. La détermination des deux paramètres caractéristiques que sont la perte de charge et l'efficacité fractionnelle de filtration en fonction de ces cycles a permis de mettre en évidence l'influence de ces cycles de filtration et régénération et la nécessité de leur prise en compte pour l'évaluation des performances des médias. En effet un média, tel que le média C, présentant une efficacité initiale de l'ordre de 40 % pour des particules de 1  $\mu\text{m}$ , aura après quelques dizaines de décolmatages une efficacité voisine de 90 % vis à vis de ces mêmes particules. L'influence d'un traitement limitant l'adhésion des particules à la surface du média, tel que dans le cas du média D, a été mise en évidence. Ce type de média présentera une durée de vie plus longue et une meilleure capacité de collecte des particules puisque sa régénération sera plus efficace.

Les perspectives de ce travail sont d'une part la poursuite de l'étude expérimentale en faisant varier les paramètres de fonctionnement tels que la vitesse de filtration et la granulométrie de l'aérosol généré et d'autre part le développement d'une approche plus théorique du décolmatage par plaques et de proposer une modélisation de ce phénomène.

## BIBLIOGRAPHIE

- Bémer D., Régnier R., Callé S. ; Measurement of the fractional efficiency of an industrial dust separator using a fluorescent aerosol ; Journal of Aerosol Science, 29, S1, pp. S1077-S1078 ; 1998.
- Humphries W. ; Influence of cloth structure on dust dislodgement from fabric filters ; Powder Technology, 28, pp. 198-194 ; 1981.
- Koch D., Seville J., Clift R. ; Dust cake detachment from gas filters ; Powder Technology , 86, pp. 21-29 ; 1996.
- Pr EN 779 ; Filtres à air de ventilation générale – Détermination des performances de filtration ; 1998.
- Ravin M. , Humphries W. ; A model for the performances of a pulse-jet filter ; Filtration and Separation, Proceeding of the filtration society, May/June 1998.

# 15<sup>ème</sup> CONGRÈS FRANÇAIS SUR LES AÉROSOLS

8 et 9 décembre 1999 – PARIS

## *Modélisation des écoulements d'air dans différents filtres industriels plissés*

L. DEL FABBRO\*, P. BRUN\*, J.C. LABORDE\*\*, J. LACAN\*\*, A. RENOUX\*\*\*, L. RICCIARDI\*\*

\*FILTRAUTO

5 avenue Newton

78053 SAINT-QUENTIN EN YVELINES Cedex, France

\*\*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 383 – 91191 GIF-SUR-YVETTE Cedex, France

\*\*\*Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université Paris XII

Av. du Général de Gaulle, 94010 CRETEIL Cedex, France

## RÉSUMÉ

La communication proposée présente les résultats relatifs à une étude menée à l'Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN), en collaboration avec la société FILTRAUTO, afin de modéliser les écoulements d'air et le colmatage, par des aérosols solides, des filtres plissés de type nucléaire et automobile. Les expériences sont menées dans un premier temps sur des filtres vierges. Les résultats les plus significatifs obtenus concernent tout d'abord la mise en évidence d'une répartition de l'écoulement d'air plus homogène le long de la surface des plis du filtre à usage nucléaire ; de plus, on note une influence certaine des caractéristiques géométriques (distance entre deux crêtes de plis, hauteur des plis) des filtres à usage automobile sur leur perte de charge initiale. Ces expériences ont par ailleurs servi à qualifier un modèle numérique obtenu à l'aide d'un outil multi-dimensionnel (code CFX) ; ce modèle a permis de comprendre le rôle fondamental joué par la résistance aéraulique du médium filtrant.

## INTRODUCTION

Les dispositifs de filtration des particules présentes dans l'air sont largement répandus dans différents secteurs industriels : nucléaire, automobile, agroalimentaire, ... Les deux grandeurs les plus importantes pour caractériser le comportement des filtres sont la perte de charge et l'efficacité de collecte des particules. Ces grandeurs sont fonction des caractéristiques du filtre, de l'aérosol et des conditions aérauliques. La plupart des recherches menées sur les filtres ont pour but d'apprécier ou encore d'optimiser la durée de vie du filtre, d'où, en particulier, le plissage du médium filtrant qui permet de diminuer sa perte de charge tout en traitant des débits d'air et des masses d'aérosols élevés.

De nombreux modèles ont été proposés pour calculer l'efficacité de collecte et la perte de charge des filtres en régime stationnaire. En revanche, peu 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. Les modèles théoriques d'efficacité et de colmatage ont été développés uniquement pour des filtres plans, alors que les filtres industriels possèdent des médias filtrants plissés. L'objet de l'étude menée dans le cadre d'une collaboration entre la société FILTRAUTO et l'Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire est donc de pallier un manque évident de connaissances et de modèles phénoménologiques sur le colmatage des filtres plissés.

L'étude du colmatage des filtres à air plissés passe par la connaissance des écoulements d'air au sein même des plis du filtre. L'étape préliminaire à cette étude est l'élaboration d'un modèle d'écoulement d'air dans le filtre à air plissé vierge. Le modèle est établi à partir d'un code de

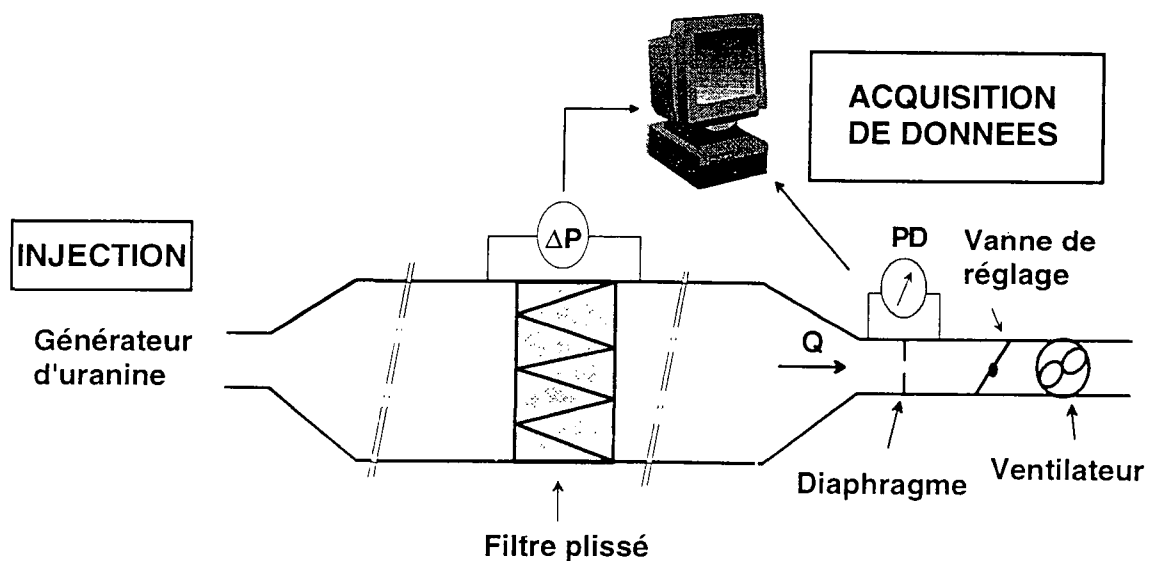
mécanique des fluides multi-dimensionnel (code CFX) et qualifié par des expérimentations basées sur l'utilisation d'un traceur fluorescent (fluorescéine sodée).

## 1. ETUDE EXPERIMENTALE RELATIVE AUX FILTRES PLISSES VIERGES

### 1.1. Contexte expérimental

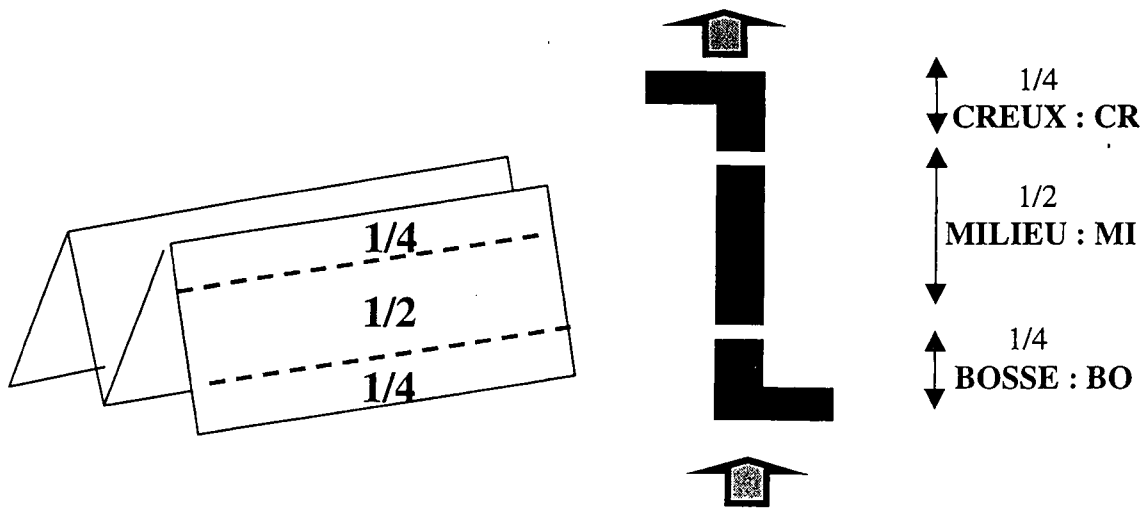
Afin de pouvoir acquérir des valeurs de la perte de charge entre l'amont et l'aval du filtre, ainsi que des données sur les écoulements d'air dans les filtres plissés vierges, un banc d'essais aéraulique est mis en œuvre. Il est constitué d'une veine aéraulique, d'un générateur de fluorescéine sodée (ou uranine) en amont du caisson de filtration et d'un système de mesure par fluorimétrie.

La veine aéraulique est constituée de différents conduits raccordés à un caisson de filtration contenant le filtre plissé testé. En amont de ce caisson, entre le système d'injection de particules et le caisson lui-même, une gaine de ventilation suffisamment longue assure une homogénéisation de la concentration des aérosols en amont du filtre et un écoulement d'air établi. La perte de charge est mesurée en temps réel à l'aide d'un capteur électronique de pression raccordé à un système d'acquisition de données. Le débit de filtration dans le conduit est assuré par un ventilateur placé en aval de la veine aéraulique. Une vanne de réglage permet d'ajuster ce débit, et la mesure de la pression différentielle aux bornes d'un diaphragme permet d'accéder à la valeur du débit d'air. Un schéma de principe du banc d'essais est donné figure 1.



**Figure 1 - Banc d'essais**

Afin de caractériser la répartition de l'écoulement ( $Fr$ ) au sein du filtre, on émet sur le filtre un traceur fluorescent grâce au générateur d'uranine. L'aérosol traceur fluorescent est un aérosol de fluorescéine sodée dont le diamètre aérodynamique médian massique est de  $0,18 \mu m$ . La concentration d'uranine sur le filtre résulte de mesures fluorimétriques dans l'ultraviolet. Lorsque le filtre est chargé en aérosol fluorescent, un découpage des plis du filtre est réalisé afin d'obtenir les répartitions massiques de l'aérosol fluorescent le long de la surface de filtration. Les découpages réalisés sont présentés sur la figure 2 : un demi pli est découpé horizontalement en trois bandelettes (appelées CREUX, MILIEU, BOSSE) dont la bandelette centrale est deux fois plus grande que les deux autres.



**Figure 2 – Découpages horizontaux d'un demi-pli**

Une analyse fluorimétrique est ensuite faite sur les bandelettes découpées. La répartition massique des particules suivant les lignes de courant est obtenue ( $m_{BO}$ ,  $m_{MI}$ ,  $m_{CR}$ ) ; cette répartition est divisée par la surface de chacune des bandelettes ( $S_{BO}$ ,  $S_{MI}$ ,  $S_{CR}$ ). Les fonctions de répartition pour chacune des parties considérées ( $Fr_i$ ) sont obtenues par la relation :

$$Fr_i (\%) = \frac{m_i/S_i}{\sum_{j=BO, MI, CR} m_j/S_j}$$

Les expériences ont été réalisées selon un plan factoriel d'expériences  $2^3$  pour chaque type de filtre testé. Les trois variables considérées sont la vitesse de filtration  $v_f$  (entre 1 et 10 cm/s), la hauteur des plis  $h$  (27, 32, 40 et 48 mm) et le pas des plis  $p$  (entre 2 et 3,5 mm). Pour caractériser le comportement des filtres vierges, deux grandeurs sont étudiées : la perte de charge  $\Delta P$  et la fonction de répartition  $Fr$ .

### **1.2. Enseignements apportés par les expériences**

Le premier enseignement issu des expériences concerne la perte de charge des différents filtres. L'ensemble des résultats montre une grande influence des paramètres géométriques des filtres plissés de type automobile sur l'évolution de la perte de charge en fonction de la vitesse de filtration, cette influence étant moindre dans le cas du filtre THE (Très Haute Efficacité) de type nucléaire. Le filtre de type automobile ayant une perte de charge optimale possède une petite hauteur des plis ( $h=27$  mm) et un grand pas ( $p=3,5$  mm). La figure 3 illustre les évolutions de la perte de charge en fonction de la vitesse de filtration pour chaque type de filtre.

L'étude des fonctions de répartition pour chacun des filtres montre une répartition homogène des écoulements dans un filtre THE, alors que la répartition est hétérogène dans le cas des filtres de type automobile. Cette hétérogénéité augmente avec la vitesse de filtration ; elle a également été observée lors d'études menées par Cai et Tebutt [1], [2]. La répartition préférentielle vers le creux du pli d'un filtre de type automobile démontre que la surface de filtration de ces filtres n'est pas utilisée de manière optimale. A titre d'exemple, la figure 4 propose les fonctions de répartition pour un filtre de type nucléaire  $h27,5p2,2$  (hauteur des plis 27,5 mm et pas des plis 2,2 mm) et pour un filtre de type automobile  $h27p2$ , à deux vitesses de filtration ( $v_f=1$  cm/s et  $v_f=10$  cm/s).

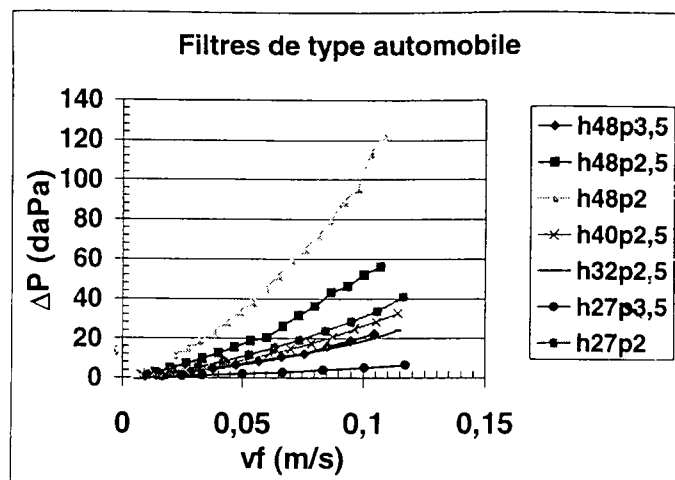
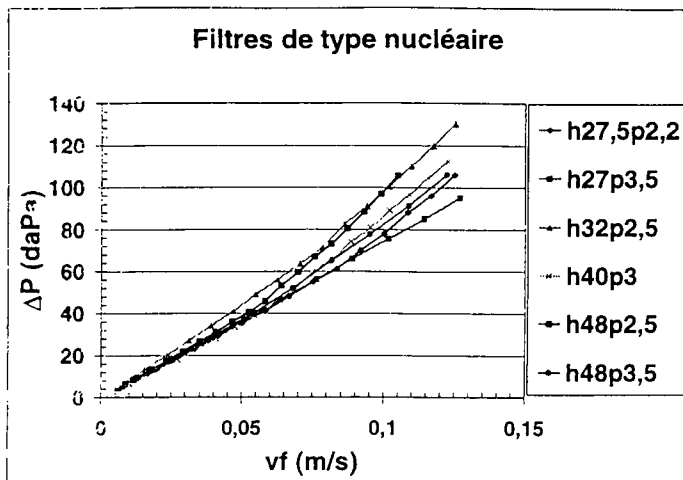


Figure 3 - Evolution de la perte de charge d'un filtre de type nucléaire et d'un filtre de type automobile avec la vitesse de filtration

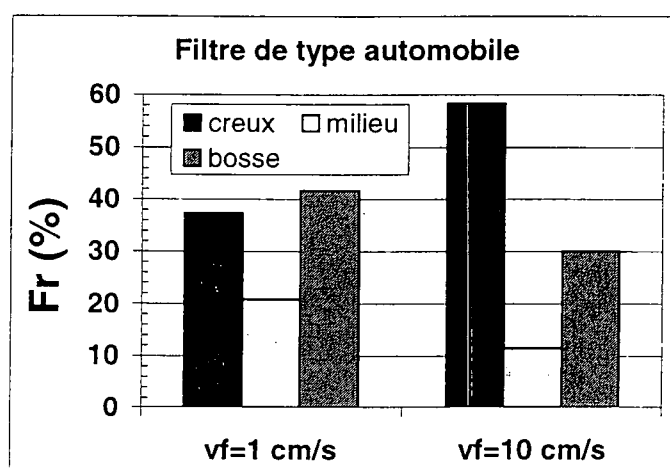
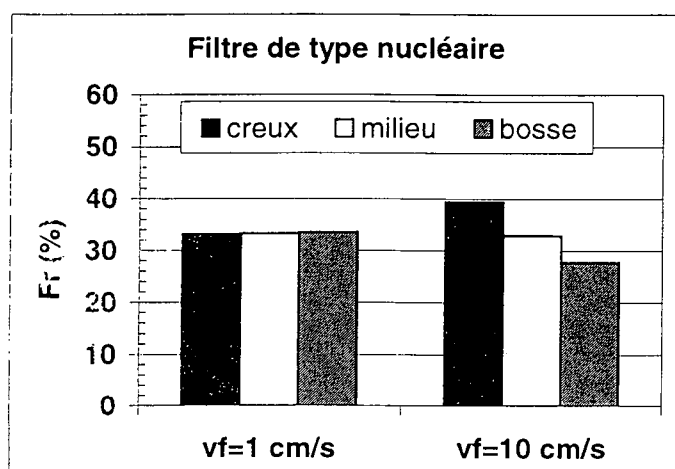


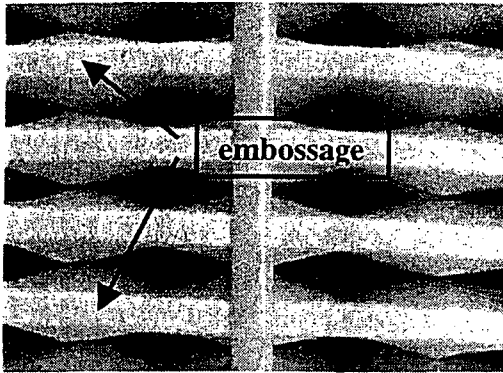
Figure 4 - Fonction de répartition pour un filtre (h27p2) de type nucléaire et de type automobile, en fonction de la vitesse de filtration

## 2. ETUDE NUMERIQUE RELATIVE AUX FILTRES PLISSES VIERGES

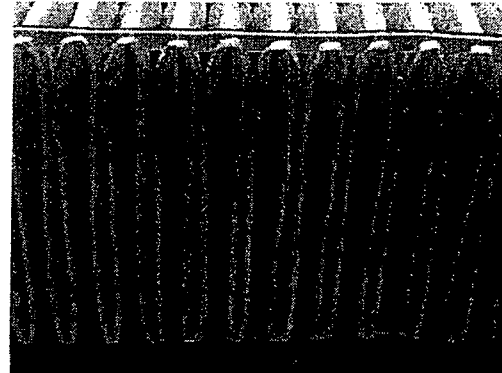
### 2.1. Contexte numérique

L'écoulement au voisinage du filtre est décrit par les équations de Navier-Stokes en régime permanent et isotherme. De plus, de par les faibles variations relatives de pression (y compris dans le filtre), l'écoulement est incompressible. Les pertes de charge à l'intérieur du filtre sont modélisées, dans le code CFX [3], par un terme puits dans l'équation de mouvement du fluide, selon la loi de Darcy :  $\nabla P = \underline{R} \cdot U$ , où  $R$  est un tenseur du second ordre représentant la résistance locale à l'écoulement du médium filtrant et  $U$  la vitesse locale de l'écoulement dans le milieu poreux (discontinue à l'interface du filtre en raison de la porosité du filtre). L'écoulement est laminaire au voisinage du filtre et on fait l'hypothèse qu'il l'est également sur tout le domaine de calcul. Les paramètres introduits dans le fichier de données des calculs sont la vitesse d'entrée, la viscosité et la masse volumique de l'air (à 20 °C), la porosité et la résistance aéraulique du milieu poreux. Ces deux derniers paramètres proviennent directement de mesures effectuées sur un filtre plan dont le médium filtrant est identique à celui du filtre plissé.

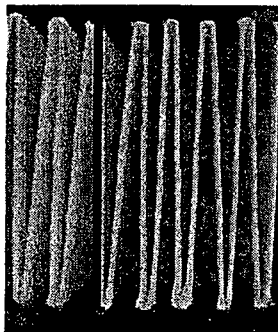
Les filtres modélisés ont les caractéristiques géométriques des filtres utilisés pour les plans d'expériences ; ces caractéristiques diffèrent pour un filtre nucléaire et un filtre automobile. Ainsi, pour les filtres de type automobile, les figures 5 et 6 montrent une caractéristique spécifique de ces filtres : l'embossage, « gaufrage » appliqué au médium filtrant qui rapproche les plis entre eux afin de les maintenir à distance constante ; cette structure implique une géométrie des plis plus complexe que pour les filtres de type nucléaire (figure 7).



**Figure 5** – Vue de dessus d'un filtre de type automobile

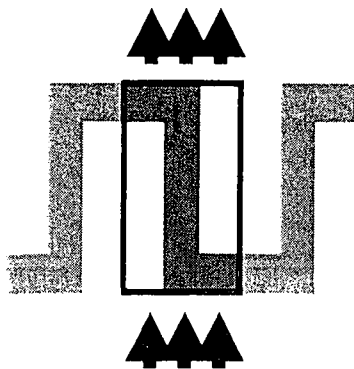


**Figure 6** – Vue latérale d'un filtre de type automobile

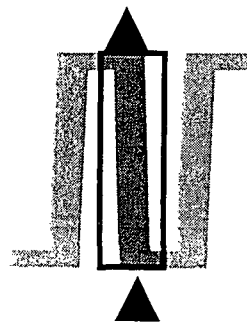


**Figure 7** – Vue transversale d'un filtre de type nucléaire

Ainsi, il a été créé dans un premier temps (figure 8), un modèle créneau bidimensionnel, puis, afin de réaliser une géométrie représentative de la réalité, une géométrie tridimensionnelle qui reproduit l'embossage du filtre automobile. Pour le filtre nucléaire, des modèles créneau (figure 8) et triangulaire (figure 9) bidimensionnels ont été créés.



**Figure 8** – Modèle créneau appliqué aux deux types de filtre

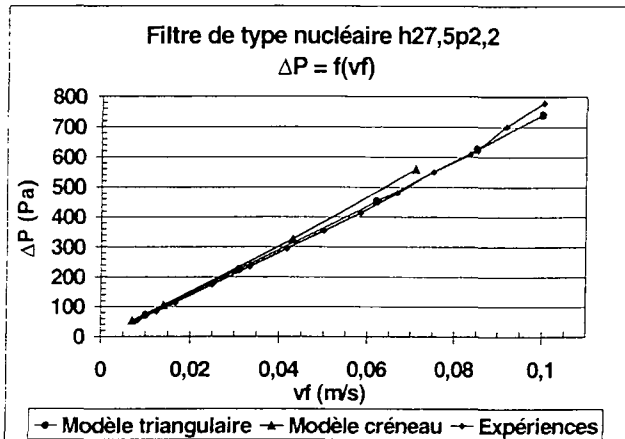


**Figure 9** – Modèle triangulaire appliqué au filtre nucléaire

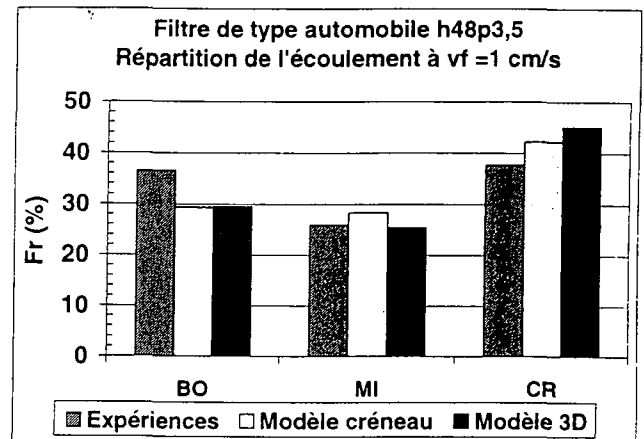


## 2.2. Apports de la modélisation

Le modèle numérique élaboré permet, tout comme les expériences, d'obtenir l'évolution de la perte de charge en fonction de la vitesse de filtration, ainsi que les fonctions de répartition. Les résultats obtenus témoignent d'un accord satisfaisant avec les résultats expérimentaux, tant en termes de perte de charge qu'en termes de répartition de l'écoulement (figures 10 et 11, à titre d'exemple).



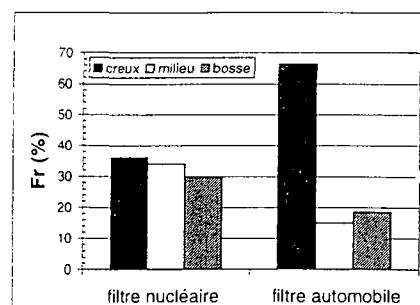
**Figure 10** - Comparaison des pertes de charge obtenues à partir des modèles numériques, avec les résultats expérimentaux



**Figure 11** - Comparaison des fonctions de répartition obtenues à partir des modèles numériques, avec les résultats expérimentaux

Les résultats présentés sur les figures 10 et 11 montrent que les modèles triangulaire dans le cas du filtre nucléaire et tridimensionnel dans le cas du filtre automobile n'apportent pas de résultats plus proches des valeurs expérimentales que le modèle créneau ; c'est pourquoi, le modèle créneau est retenu pour les deux types de filtres.

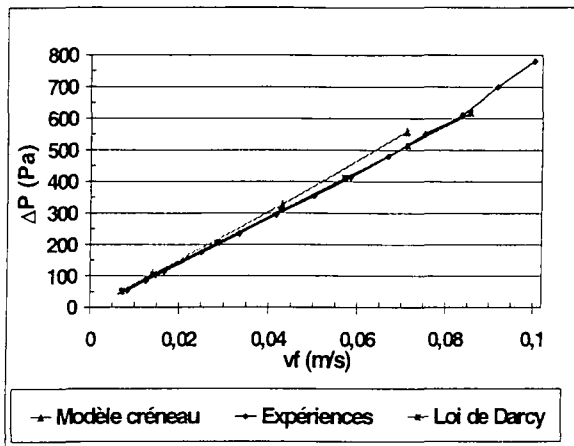
Ce modèle permet également de comprendre certains phénomènes physiques. Ainsi, afin d'analyser la différence de répartition entre les deux types de filtre, des calculs de la fonction de répartition ont été réalisés à partir d'une même géométrie, seule la résistance des médias à l'écoulement variant. Les résultats résumés figure 12 témoignent que la différence des répartitions de l'écoulement entre les deux filtres plissés est uniquement due à une caractéristique du médium filtrant, la résistance aéraulique  $R$  du médium utilisé.



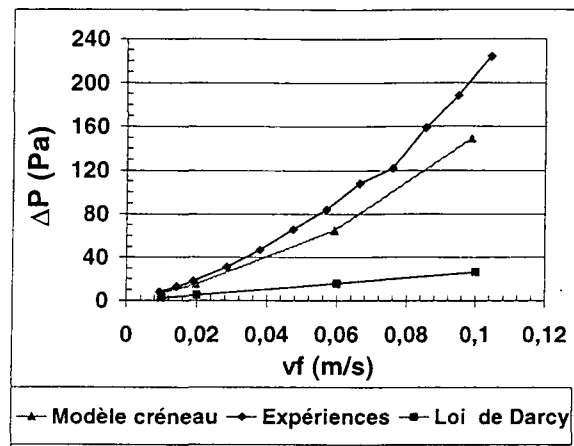
**Figure 12** - Comparaison de la répartition de l'écoulement ( $vf=0,07 \text{ m/s}$ )

Par ailleurs, l'approche numérique permet de montrer que la loi de Darcy est valide, non seulement localement (hypothèse de base), mais aussi globalement (la loi de Darcy globale relie la perte de charge du filtre à la vitesse moyenne de filtration, rapport entre le débit d'air et la surface de filtration), pour les filtres THE. Cette particularité s'explique principalement par la grande résistance aéraulique du filtre de type nucléaire qui oblige l'écoulement à se répartir uniformément sur toute la surface de filtration. Le filtre plissé THE se comporte donc comme un filtre plan de surface de

filtration équivalente. Ceci n'est pas vérifié pour le filtre de type automobile, de résistance beaucoup plus faible (30 fois inférieure). Les figures 13 et 14 représentent les évolutions de la perte de charge en fonction de la vitesse de filtration ; les valeurs de la perte de charge sont issues de mesures expérimentales, de simulations numériques 2D créneaux, ainsi que de la loi de Darcy utilisée de manière globale.



**Figure 13 – Comparaison des résultats pour un filtre de type nucléaire h27,5p2,2**



**Figure 14 – Comparaison des résultats pour un filtre de type automobile h48p3,5**

## CONCLUSION

Les travaux présentés permettent de caractériser la perte de charge et les écoulements d'air dans des filtres plissés vierges de type nucléaire ou automobile. Les études expérimentales, associées aux études numériques, ont montré une répartition homogène des écoulements d'air dans un filtre THE de type nucléaire, alors que la répartition est hétérogène dans le cas d'un filtre de type automobile ; cette hétérogénéité augmente avec la vitesse moyenne de filtration. Les résultats numériques ont permis de mettre en évidence que cette différence de répartition est principalement due à la résistance aéroulque du médium filtrant.

L'ensemble des résultats montre une grande influence des paramètres géométriques des filtres plissés de type automobile (hauteur des plis et distance entre chaque pli) sur l'évolution de la perte de charge en fonction de la vitesse de filtration, cette influence étant moindre dans le cas d'un filtre THE.

## REFERENCES

- [1] Q. Cai. A study of air filter flow by computational fluid dynamics, 1993  
MS Thesis, School of mechanical and aerospace engineering – Oklahoma state university, Stillwater, OK
- [2] C. B. Tebbutt. Computational fluid dynamics model of flow through air filter pleats, 1995  
MS Thesis, School of mechanical and aerospace engineering – Oklahoma state university, Stillwater, OK
- [3] AEA Technology. CFX-4.2, Solver manual, 1997

# Simulation numérique de la collecte des aérosols par une série de gouttes en présence de condensation à leur surface

N. Gauchet<sup>(1,2)</sup>, J. Vendel<sup>(1)</sup>, A. Renoux<sup>(2)</sup>

(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 drops with steam condensation on their surface is presented. Particle impaction has been predicted with an eulerian approach. This work performs the influence of condensation on the aerosol collection efficiency and the evolution of the collection efficiency with the distance between the drops. While varying the distance between the drops from 5 to 25 drop diameters, we can highlight the modification of the impaction collection efficiency related to the disturbance of the velocity and concentration fields in the vicinity of the drops. We observe strong variations of the collection efficiency, but the steam condensation at the surface of the drops limits the decrease.

**Résumé :** Cette étude présente une simulation numérique de la collecte d'aérosols par une série de gouttes sphériques à la surface desquelles se condense de la vapeur d'eau. Une approche eulerienne a été utilisée pour calculer la collecte par impaction des particules sur les gouttes. Ce travail se propose d'étudier l'influence de la condensation sur la collecte des aérosols, ainsi que l'évolution des efficacités élémentaires de collecte des aérosols avec la distance entre les gouttes. En faisant varier la distance entre les gouttes de 5 à 25 diamètres de goutte, nous avons pu mettre en évidence les modifications d'efficacité d'impaction liées à la perturbation des champs de vitesse et de concentration au voisinage des gouttes. Nous avons constaté de fortes variations de l'efficacité d'impaction, mais la condensation de la vapeur d'eau à la surface des gouttes permet de limiter ces variations.

## 1 Introduction

La collecte d'aérosols par des gouttes sphériques intervient dans des domaines d'application très variés tels que le lavage de l'atmosphère par les gouttes de pluie en météorologie ou le développement de systèmes d'épuration des gaz comme les laveurs ou les dispositifs d'aspersion de sûreté dans les industries chimiques et nucléaires. Dans certaines applications, lorsque l'atmosphère est saturée en vapeur d'eau et que les gouttes injectées sont froides, la vapeur d'eau se condense à leur surface. Le flux de condensation provoque un écoulement radial dirigé vers la goutte qui modifie la collecte des aérosols.

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 potentiels<sup>1</sup> ou visqueux<sup>2</sup> 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. A notre connaissance, aucune étude ne prend en compte le cas où de la vapeur d'eau se condense sur les gouttes.

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 cas réel d'application de ces corrélations, les collecteurs peuvent se situer à une certaine distance 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 à leur voisinage. 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.

L'originalité de notre étude est l'utilisation d'un modèle de type bifluide : c'est une approche eulerienne du comportement des aérosols, qui permet de calculer intégralement l'écoulement de la phase particulaire autour d'une série de gouttes sphériques et de prédire ainsi l'efficacité de chaque collecteur. Les deux fluides considérés sont le mélange air/vapeur, qui est le gaz vecteur, et le fluide particulaire constitué de l'aérosol étudié, dont le diamètre est compris entre 0,1 et 10  $\mu\text{m}$ . Les gouttes sphériques ont des diamètres compris entre 100 et 800  $\mu\text{m}$  et la vitesse relative entre les particules et les gouttes varie de 0,3 à 3 m/s. L'écoulement de l'air au voisinage de chaque goutte est calculé numériquement de manière à prendre en compte les modifications apportées par la condensation sur l'écoulement, ainsi que les interactions entre les gouttes.

## 2 Collecte par impaction en présence de condensation à la surface des gouttes

### 2.1 Ecoulement de l'air autour des gouttes et prise en compte de la condensation

Soit un repère en coordonnées sphériques  $(r, \theta, \phi)$  centré sur la goutte. Ce repère sera utilisé par exemple pour décrire la surface de la goutte ( $r = R_g$ ). Un repère cartésien  $(x, y, z)$  centré sur la goutte sera utilisé pour écrire les équations.

Dans les situations qui nous intéressent, le nombre de Reynolds de la goutte  $Re_g$  est inférieur à 210, c'est à dire qu'il n'y a pas d'instabilités hydrodynamiques en aval de la goutte et celle-ci est sphérique. Par conséquent, l'écoulement est axisymétrique. Nous allons faire l'hypothèse que l'on peut négliger l'écoulement à l'intérieur de la goutte et comparer nos résultats avec ceux de Ayyaswamy [6] qui ne fait pas cette hypothèse.

On peut considérer que vis à vis de ce qui se passe à l'intérieur de la goutte, les échanges dans la phase gazeuse peuvent être étudiés à l'état stationnaire [7]. Ce qui simplifie considérablement les équations à résoudre.

Nous pouvons faire quelques hypothèses et simplifications :

- la surface de la goutte est à l'équilibre thermodynamique et sa température de surface est uniforme ;
- on suppose que les propriétés physiques du mélange sont indépendantes de la température ;

---

1. Nombre de Reynolds  $> 1000$

2. Nombre de Reynolds  $\ll 1$

- le mélange air/vapeur se comporte comme un gaz parfait et est incompressible ( $\rho_f$  ne varie pas avec  $T_f$  ni avec les concentrations d'air et de vapeur au voisinage de la goutte);
- les transferts de chaleur par rayonnement sont négligés, ainsi que la condensation en masse;

En tenant compte de ces hypothèses, les équations du problème sont les suivantes :

Equation de continuité :

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

Equation de conservation de la quantité de mouvement :

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

Equation de conservation des espèces :

$$U_j \cdot \frac{\partial Y_i}{\partial x_j} = D_{12} \cdot \Delta Y_i \quad (3)$$

$Y_1$  représente la fraction massique de l'air ( $i=1$ ) et  $Y_2$  celle de la vapeur ( $i=2$ );  $D_{12}$  est le coefficient de diffusion de la vapeur dans l'air. Les conditions aux limites à la surface de la goutte ( $r = R_g$ ) sont les suivantes :

l'air adhère à la surface de la goutte :

$$U_{\theta,s} = 0 \quad (4)$$

l'air ne peut pas pénétrer ni sortir de la goutte<sup>3</sup>, donc :

$$U_{r,s} = \frac{D_{12}}{Y_{1,s}} \cdot \frac{\partial Y_1}{\partial r} \quad (5)$$

la goutte est à l'équilibre thermodynamique :

$$Y_{2,s} = \frac{P_{2,s} M_2}{\rho_f R T_s} \quad (6)$$

où  $P_{2,s}$  est la pression partielle de la vapeur à la surface de la goutte,  $M_2$  est la masse molaire de la vapeur et  $T_s$  est la température de surface de la goutte. A l'infini ( $r = \infty$ ), la vitesse  $U_\infty$  ainsi que les fractions massiques  $Y_{1,\infty}$  et  $Y_{2,\infty}$  sont connues.

## 2.2 Modèle eulerien 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 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 [8].

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,  $\alpha$  la fraction volumique des particules et  $\rho_p$  leur masse volumique. Puisque les aérosols représentent une phase diluée ( $\alpha \ll 1$ ), le « fluide » particulaire est décrit par les équations suivantes :

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

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

3. Il s'agit de la condition d'imperméabilité des incondensables

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

## 2.3 Calcul de l'efficacité élémentaire de collecte de chaque goutte

La résolution des équations précédentes est effectuée avec le code de calcul CASTEM 2000 qui est développé au CEA. Le maillage est constitué de trois gouttes alignées dans le sens de l'écoulement, ce qui permet de calculer le flux de particules pénétrant dans chaque goutte par impaction. Pour la suite, l'indice  $i$  est utilisé pour désigner une grandeur concernant une goutte 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 ( $S_i$ ) :

$$\Phi_{imp,i} = \int_{S_i} \alpha_s \vec{V} \cdot \vec{n} ds, \quad (10)$$

où  $\alpha_s$  représente la fraction volumique des particules à la surface de la goutte  $i$ .

L'efficacité élémentaire de collecte par impaction de la première goutte s'écrit :

$$E_{imp,1} = \frac{\int_{S_1} \alpha_s \vec{V} \cdot \vec{n} ds}{\alpha_e \pi R_g^2 V_0}, \quad (11)$$

où  $\alpha_e$  représente la fraction volumique des particules à l'entrée du domaine et  $V_0$  leur vitesse sous la première goutte.

Pour les deux gouttes 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  $R_g$ . Ce disque de surface  $S_D$ , correspond à la surface projetée d'une sphère sur un plan perpendiculaire à l'écoulement en amont de la goutte. On a donc :

$$E_{imp,i} = \frac{\int_{S_i} \alpha_s \vec{V} \cdot \vec{n} ds}{\int_{S_{D,i}} \alpha \vec{V} \cdot \vec{n} ds}, \quad (12)$$

pour  $i = 2$  et  $3$ .

Par exemple, on peut définir la vitesse moyenne des particules sur ce disque :

$$\bar{V}_i = \frac{\int_{S_{D,i}} \vec{V} \cdot \vec{n} ds}{\pi R_g^2}. \quad (13)$$

De la même manière, on définit la vitesse moyenne d'air et la concentration moyenne sous les gouttes, ainsi que la vitesse moyenne des particules et la concentration moyenne des particules à la surface des gouttes.

## 3 Résultats des calculs

### 3.1 Validation du modèle de condensation

Nous effectuons des calculs avec ce modèle pour une goutte dont le diamètre varie de 100 à 500  $\mu\text{m}$ . La température de goutte est fixée à 20°C. La pression varie de 1 à 5 bars et la température du fluide varie de 25 à 140°C. Le mélange air/vapeur est toujours à saturation.

La figure 1 montre l'évolution du rapport  $\frac{J_{Y_2}}{J_{Y_2,0}}$  (4) avec le produit  $Sc^{1/3} Re_g^{1/2}$  (5) pour différentes valeurs du nombre de Spalding  $W = 1 - \frac{Y_{1,\infty}}{Y_{1,s}}$ . Le nombre de Spalding est utilisé dans [6] pour

4. Flux de vapeur sur la goutte en mouvement / Flux de vapeur sur la goutte au repos

5.  $Sc$  est la nombre de Schmidt du mélange et  $Re_g$  est le nombre de Reynolds de la goutte.

caractériser la condensation. Nous avons tracé nos résultats numériques sur cette figure, ainsi que les différentes corrélations issues de la littérature [6, 9, 10].  $W = 0,01$  correspond à  $T_f = 95^\circ\text{C}$  et  $W = 0,62$  correspond à  $T_f = 140^\circ\text{C}$ . Pour une valeur de  $W$  fixée, nous avons effectué un calcul pour trois gouttes différentes :  $D_g = 100, 300$  et  $500 \mu\text{m}$ . Cette figure amène plusieurs remarques :

- le flux de condensation est plus important quand la goutte est en mouvement ;
- pour des valeurs faibles de  $W$  (fortes valeurs de la fraction massique d'air à l'infini), la vitesse radiale provoquée par la condensation à la surface de la goutte est faible. Dans ce cas, le flux de vapeur est essentiellement contrôlé par  $Re_g$  et par conséquent les corrélations valides pour les faibles débits de condensation sont en bon accord avec nos résultats ;
- pour des valeurs plus élevées de  $W$ , le rôle joué par la vitesse radiale à la surface devient plus important et on constate une différence entre nos résultats et ceux donnés par Pruppacher [9] qui ne la prend pas en compte.

### 3.2 Effet de la condensation sur la collecte des aérosols

Nous effectuons une série de calculs avec ce modèle couplé impaction/condensation pour une goutte de  $500 \mu\text{m}$  à  $20^\circ\text{C}$  plongée dans un mélange air/vapeur saturé à  $140^\circ\text{C}$  contenant des particules (figure 2). Afin de comparer nos résultats avec les résultats antérieurs, nous traçons notre corrélation pour l'impaction<sup>6</sup> donnée dans [7], calculée avec ces conditions thermodynamiques.

Nous appelons  $E_{imp,cond}$  l'efficacité de collecte de la goutte que nous obtenons avec CASTEM 2000, car il s'agit de l'efficacité d'impaction des particules sur une goutte à la surface de laquelle de la vapeur se condense. Pour la calculer, nous utilisons l'équation 11.

Sur la figure 2 on constate que la condensation n'a pas d'effet sur la collecte des plus grosses particules ( $Stk > 2$ ), puisque les résultats de notre corrélation sont identiques aux résultats des calculs CASTEM 2000 qui tiennent compte de la condensation. Par contre, nous remarquons que la condensation a un effet sur la collecte des petites particules ( $Stk < 2$ ), car ce phénomène est beaucoup plus important que l'impaction, du fait de la vitesse de condensation à la surface de la goutte qui entraîne les particules. Notons que ces résultats sont en bon accord avec ceux de l'expérience CARAIDAS [11] qui ont été obtenus dans des conditions thermodynamiques proches de celles de nos calculs ( $T_f = 120^\circ\text{C}$  et  $P=4$  bars) pour des gouttes de  $300$  et  $700 \mu\text{m}$ . En effet, pour des particules de diamètre compris entre  $0,5$  et  $3 \mu\text{m}$ , l'efficacité mesurée varie entre  $0,5$  et  $1$ .

### 3.3 Influence de la distance entre les gouttes sur l'efficacité de collecte

Nous avons appliqué ce modèle au cas de trois gouttes alignées et espacées de  $5$  à  $25$  diamètres de goutte. Nous calculons ainsi l'évolution de l'efficacité de collecte de chaque goutte avec la distance entre les gouttes. Les conditions thermodynamiques sont les mêmes que précédemment. Pour les petites particules ( $D_p \leq 1 \mu\text{m}$ ), soumises au flux de condensation, la baisse d'efficacité de la troisième goutte par rapport à la première est de l'ordre de  $33\%$  et ne varie pas avec la distance entre les gouttes. Pour les particules plus grosses, pour lesquelles la condensation tend à maintenir une faible concentration en amont des gouttes, ces variations se situent entre  $+19\%$  et  $-17\%$ .

## 4 Conclusion

Ce travail montre un bon accord entre la simulation numérique de la collecte des aérosols par une série de trois gouttes alignées à la surface desquelles se condense de la vapeur d'eau, des données issues de la littérature et des résultats expérimentaux. Nous observons que la condensation de la vapeur d'eau à la surface des gouttes modifie la collecte des aérosols dont le nombre de Stokes est inférieur à  $2$ . De

6. Il s'agit d'une formule semi-empirique permettant de calculer l'efficacité d'impaction d'une goutte en fonction du nombre de Stokes des particules et du nombre de Reynolds de la goutte.

plus, l'effet de la distance entre les gouttes sur la collecte des aérosols par les gouttes est sensible pour les distances entre les gouttes que nous avons étudiées. 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] P. S. Ayyaswamy. – Fluid mechanics of direct-contact transfer processes with moving liquid droplets. In: *Encyclopedia of Fluid Mechanics*, chap. 16, pp. 535–587. – Gulf Publishing Company, Nicholas P. Cheremisinoff édition, 1989.
- [7] N. Gauchet. – *Etude de l'influence de la densité spatiale des gouttes d'aspersion sur l'efficacité de collecte des produits de fission*. – Thèse de Doctorat, Université Paris XII, 1999.
- [8] 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 Paris VI, 1995.
- [9] H. R. Pruppacher et J. D. Klett. – *Microphysics of Clouds and Precipitation*. – D. REIDEL, 1978.
- [10] E. Kulic, E. Rhodes et G. Sullivan. – Heat transfer rate predictions in condensation on droplets from air-steam mixtures. *Can. J. Chem. Engng.*, vol. 53, 1975, pp. 252–258.
- [11] 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.



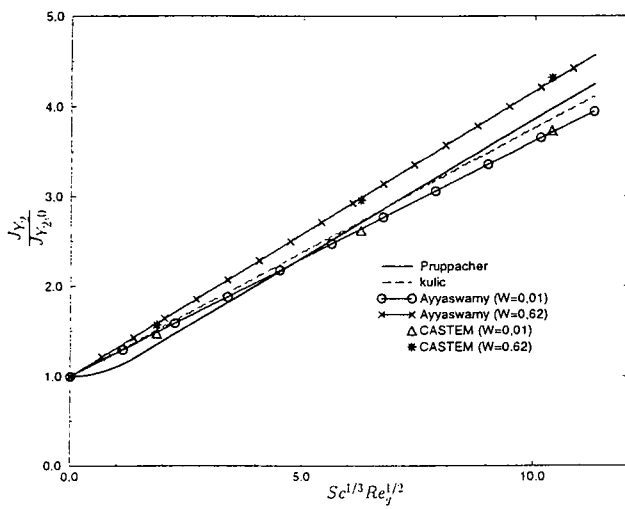


FIG. 1 - Comparaison des coefficients de ventilation  $f_v = \frac{J_{Y_2}}{J_{Y_2,0}}$  issus de nos calculs avec les corrélations existantes pour différentes valeurs de  $W$

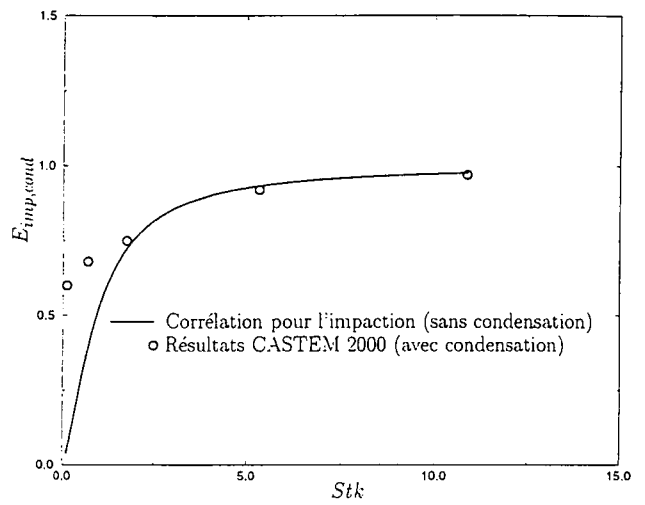


FIG. 2 - Efficacités d'impaction avec et sans condensation à la surface de la goutte -  $D_g = 500 \mu m$ ,  $T_g = 20^\circ C$ ,  $T_f = 140^\circ C$ ,  $P = 5 \text{ bars}$ ,  $S = 1$

# INFLUENCE D'UN AEROSOL SUBMICRONIQUE SUR LE FONCTIONNEMENT D'UNE DECHARGE FIL-CYLINDRE

Unger L., Ehouarn P., Borra J.P.

Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas,  
Equipe Décharges Electriques et Environnement (UMR 8578 du CNRS),  
Ecole Supérieure d'Electricité, Plateau de Moulon, 91192 GIF-SUR-YVETTE cedex

**Résumé :** Un système de charge d'aérosol par décharge couronne fil-cylindre de polarité négative à pression atmosphérique a été testé. Le but de cette étude est double : (i) disposer d'un système dont le courant de particules chargées en sortie soit contrôlé (limitation du dépôt i.e. évolution temporelle reproductible et courant de sortie maximal), permettant le contrôle du débit de charge et (ii) étudier l'influence de l'aérosol sur le fonctionnement de la décharge. Les différentes contraintes pour stabiliser la décharge et les premiers résultats de l'étude paramétrique (dimensions de la zone de décharge et conditionnement de l'aérosol i.e. débit, concentration et vitesse) sont présentés.

## I. Introduction

Le but n'est pas de mettre au point un système de charge des aérosols plus efficace que ceux existants, mais de disposer d'un système calibré (évolution temporelle du courant de sortie reproductible). En outre, nous abordons l'influence de l'aérosol sur le fonctionnement d'une décharge fil-cylindre à pression atmosphérique.

## II. Système expérimental et méthodes de mesures

La source d'ions est une décharge fil-cylindre de polarité négative, dans laquelle l'aérosol est injecté, parallèlement à l'axe de la décharge (l'aérosol circule entre deux tubes en verre cf. Figure 1).

L'aérosol de test est produit par nébulisation d'une solution de NaCl (dont la concentration permet de connaître la taille moyenne des résidus secs). On obtient ainsi un aérosol unimodal polydispersé dont le diamètre moyen varie de 40 nm à 100 nm, la concentration étant de l'ordre de  $10^7 \text{ cm}^{-3}$ .

A l'aide d'un oscilloscope (bande passante 500Mhz) et d'un picoAmpèremètre, les caractéristiques électriques suivantes ont été mesurées :

- Courants moyen et impulsif de décharge (collectés sur le cylindre)
- Courants de fuite dans les différentes parties du système
- Courant d'aérosol chargé en sortie du système (collecté sur un système de grille + cage de Faraday)

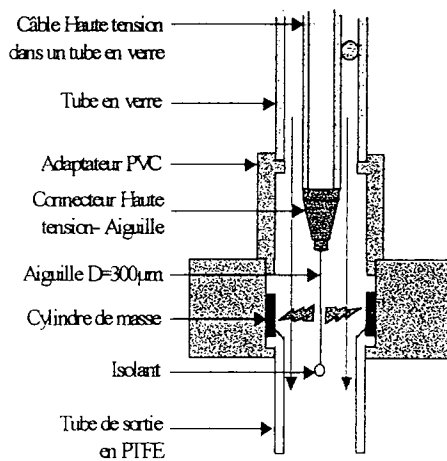


Figure 1 : Schéma de l'ioniseur

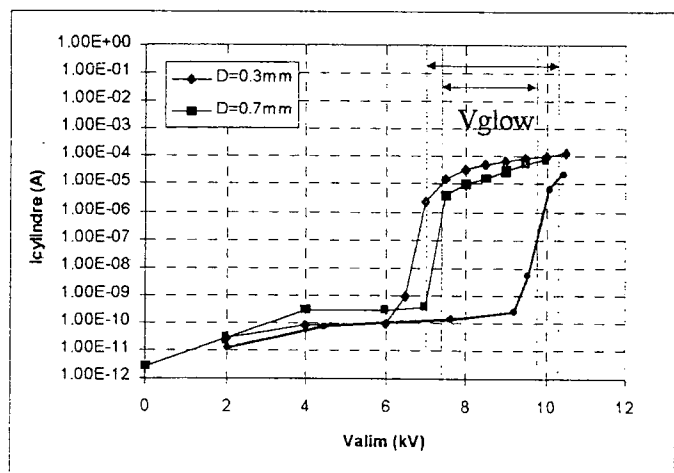


Figure 2 : Caractéristique potentiométrique du système Fil-Cylindre

La figure 2 présente les caractéristiques de décharge fil-cylindre à pression atmosphérique pour différents rayons de courbure du fil (dcylindre=14 mm) dans l'air sec sans murs isolants et la même caractéristique pour un rayon de courbure de 165 µm après polarisation des surfaces isolantes dans le système fermé présenté figure 1 (cf § IV.3.).

Le nombre de charges acquises par des particules de diamètre  $d_p$  au bout d'un temps  $\tau$  passé dans une densité d'ions  $N_i$ , qu'il s'agisse de charge par diffusion des ions ou de charge par effet de champ, est une fonction croissante du produit  $N_i \times \tau$  et du diamètre des particules ([HIN 82]). C'est pourquoi le point de fonctionnement choisi est compris

dans la gamme de tensions variant de 7.5 à 10 kV, ce qui permet d'établir un régime de glow (courant continu correspondant à la superposition d'impulsions trichels indiscernables) et d'obtenir une concentration d'ions Ni élevée, de répartition spatiale continue et constante dans le temps favorable à la charge des particules.

Les conditions géométriques permettant d'obtenir des plages de tension de glow importantes (de 7.5 à 10 kV), ainsi que des niveaux de courant de décharge importants (25 mA/m avant l'arc), sont des faibles rayons de courbures pour l'électrode active, et des rayons de contre-électrode importants. Le système d'électrodes suivant :  $d_{fil}=330 \mu\text{m}$  et  $R_{cylindre}=14 \text{ mm}$  a donc été pris en référence pour l'étude qui suit.

### III. problématique

**Stabilisation de la décharge** : une estimation du produit  $Ni \times \tau$  (de l'ordre de  $10^7 \text{ s.cm}^{-3}$ ) implique des niveaux de charges qui permet d'expliquer les pertes par collection des particules chargées observées sous forme de dépôt sur les électrodes et sur le tube de sortie en PTFE. Cet encrassement progressif des électrodes de décharge entraîne une variation dans le temps du courant de décharge à tension fixe (apparition de décharges filamenteuses) et donc des conditions de charge de l'aérosol. En diminuant le temps  $\tau$  de passage de l'aérosol dans la zone de décharge, les pertes diminuent, ainsi que l'efficacité de charge. Il s'agit donc de trouver le point de fonctionnement optimal c'est-à-dire de trouver le meilleur compromis entre efficacité de charge et pertes par collection sur les électrodes (donc durée maximale de stabilité du système). Cette optimisation entre charge et pertes passe par une optimisation des variables du système : dimensions du système et de la zone de décharge et conditionnement de l'aérosol (concentration, débit, taille des particules). La figure 3 résume la problématique en fonction de l'influence des différents paramètres sur la concentration d'ions Ni et sur le temps de passage  $\tau$ .

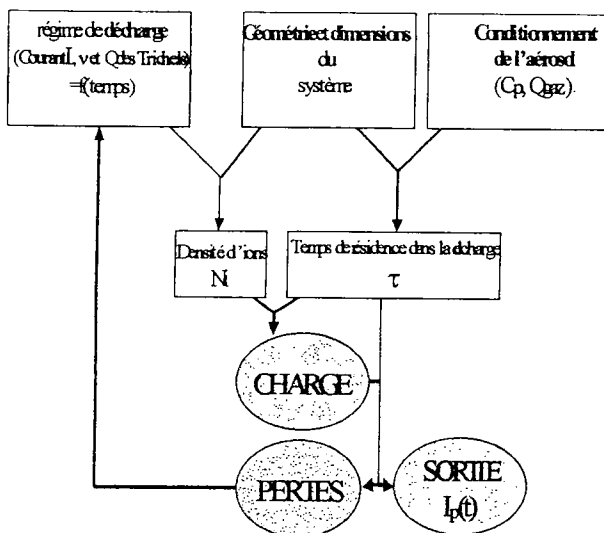


Figure 3 : problématique

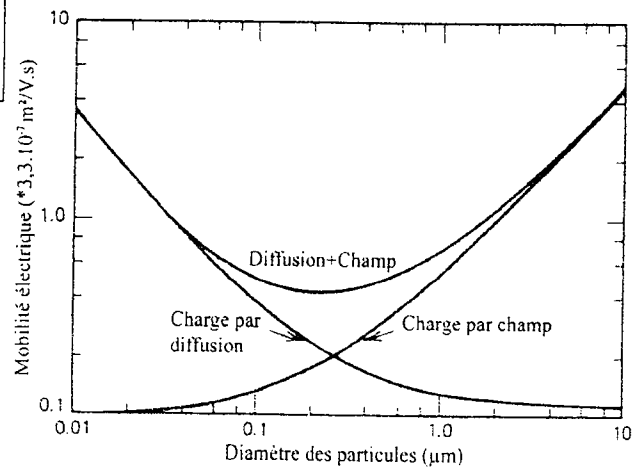


Figure 4 : Mobilité électrique due à la charge par diffusion et par effet de champ en fonction du diamètre ( $E=5.10^5 \text{ V/m}$  et  $Ni.t=10^7 \text{ cm}^{-3}.s$ ) [HIN 82]

**Ségrégation des ions et des aérosols en sortie de décharge** : dans le cas de l'air sec, une partie des ions ( $\sim 0.1 \%$ ) créés au voisinage du fil est entraînée par le flux d'air en dehors de l'espace inter-électrodes vers la surface du tube de sortie (voir paragraphe suivant) voire même jusqu'à l'électrode de mesure à la sortie du système. Ce courant d'ions en sortie doit être limité pour déterminer avec exactitude le courant de particules chargées en sortie. Cette ségrégation des ions et des aérosols est possible du fait de la différence de mobilité entre les particules chargées ( $\mu_p \approx 10^{-7} \text{ m}^2/\text{V.s}$ ) et les ions ( $\mu_{ions} \approx 10^{-4} \text{ m}^2/\text{V.s}$ ) (cf. figure 4).

### IV. Définition d'un système et d'un protocole pour l'étude paramétrique

Nous présenterons dans un premier temps les contraintes à respecter pour obtenir un système de décharge stable dans nos conditions et dans un deuxième temps les résultats des mesures du courant de sortie (courants moyen et instantané).

#### IV.1 Stabilisation de la décharge et effet de l'humidité sous flux continu d'air sans aérosols

En l'absence d'aérosol, les conditions requises pour la stabilisation du courant de décharge sont les suivantes :

- centrage du fil haute tension par rapport au cylindre afin d'obtenir une décharge homogène autour du fil, donc une densité d'ions dans l'espace inter-électrodes homogène et axisymétrique,
- réduction des fuites surfaciques (de la haute tension vers les masses) : les chemins de fuites en surface des parois isolantes doivent être allongés afin de limiter les fuites électriques perturbant la mesure du courant de décharge,
- élimination des décharges parasites (vers les masses proches de l'électrode active) : les parois proches de l'électrode active (fil) doivent être isolantes (PTFE, PVC) ou à une distance supérieure à la distance inter-électrodes.

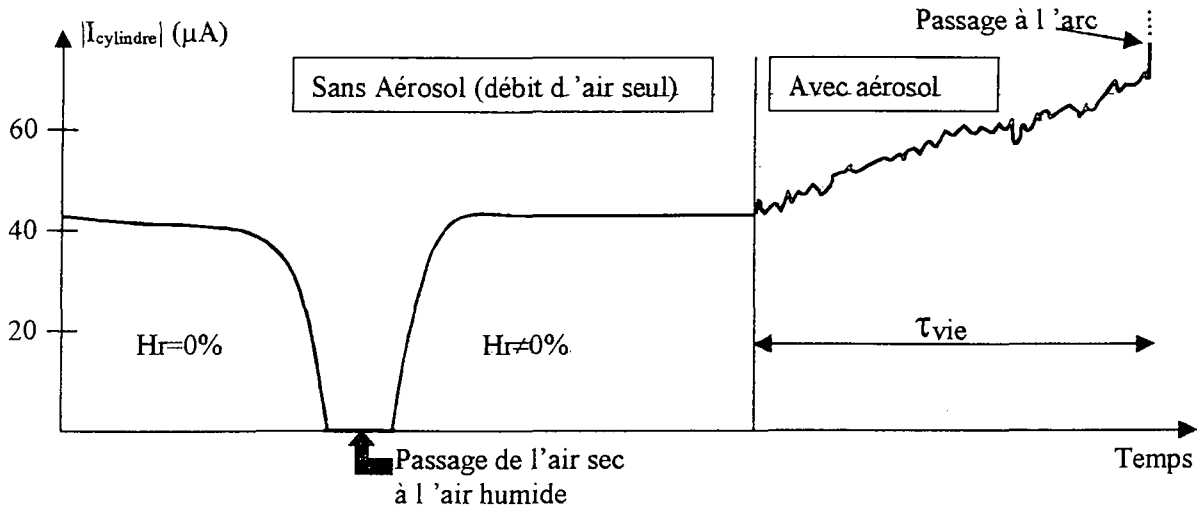


Figure 5 : Evolution du courant avec et sans aérosols dans l'air sec et humide

La double nécessité de travailler dans un milieu fermé pour éviter les pertes d'aérosol et les décharges parasites (entre le fil à la haute tension et d'éventuelles masses à proximité) impose des surfaces isolantes à proximité de la décharge (cf. Figure 1). Le fonctionnement de la décharge induit une polarisation des surfaces. Ces zones de potentiel non nul proches de la décharge induisent une diminution du champ électrique à proximité du fil (et une diminution du courant de décharge). On distingue alors deux évolutions possibles selon l'humidité relative  $H_r$  :

- Si  $H_r = 0$ , la dépolarisation des surfaces isolantes est impossible, et la charge progressive des isolants induit une diminution du courant de décharge (voire une coupure de la décharge) après une durée qui dépend de la nature des isolants (i.e. de la valeur du potentiel de surface  $V_{surface}$ ). Dans le cas où la décharge est coupée, la différence de potentiel entre le fil polarisé à 8.5 kV et les surfaces proches du cylindre de masse est inférieure à la différence de potentiel seuil pour l'ionisation du gaz i.e inférieure à 6 kV (cf figure 2) ; cela implique que le potentiel des surfaces à proximité du cylindre de masse après polarisation en air sec est en moyenne de l'ordre de 2.5 kV. Le seuil de tension d'apparition des décharges dans ces conditions (murs polarisés) est plus élevé du fait de la diminution de champ induit par la polarisation des murs (courbe reliant les ronds de la figure 2). Toutefois, la même évolution du courant avec la tension, i.e. la même succession des régimes de décharge est alors induite par des potentiels plus élevés.
- Si  $H_r \neq 0$ , la dépolarisation partielle des surfaces isolantes est possible (par diminution de la résistance surfacique) et un équilibre quasi-stationnaire s'établit entre la polarisation des surfaces par dépôts d'ions issus de la décharge et la dépolarisation par fuites surfaciques. Il faut souligner qu'au cours d'expériences préliminaires, où l'humidification de l'air était réalisée par bullage avant injection dans la décharge sans filtre intermédiaire, la production de goutte de film et de jet par explosion des bulles a conduit à la mesure d'artéfacts expérimentaux ; en effet, des bouffées de particules/gouttes chargées ont été mesurées en sortie du système et supprimées par utilisation d'un impacteur entre le bulleur et la décharge.

La diminution du courant de décharge et la constante de temps de polarisation, dépendent de la nature des isolants et de l'humidité relative  $H_r$ . Le temps de mise à l'équilibre (avec  $H_r \approx 60\%$ ) est de l'ordre de 15 min dans notre cas (mur supérieur en PVC et inférieur en PTFE). Cet équilibre atteint, le courant de sortie en l'absence d'aérosols est alors inférieur à 0.5 nA. Ces conditions permettent l'étude de l'efficacité de l'ioniseur pour la charge des aérosols.

#### IV.2 Courant de particules chargées en sortie du système

Le courant de particules chargées, mesuré sur la grille à la sortie du système peut être exprimé de la manière suivante :

$$I_{sortie} = I_{pmax} - I_{coll\dot{d}ech} - I_{collpost} - I_{perteout}, \text{ avec}$$

- $I_{pmax}$  est le courant théorique de particules chargées (sans pertes) :  $I_{pmax} = Q_{air} \times C_p \times n \times e$

Avec  $Q_{air}$  le débit d'air ( $m^3/s$ ),  $C_p$  la densité de particules chargées par  $m^3$  de gaz et  $n$  le nombre de charges moyen par particules

- $I_{coll\acute{e}ch}$  est le courant de particules collecté sur le cylindre de décharge
- $I_{coll\acute{e}post}$  est le courant de particules collecté sur le tube de PTFE
- $I_{perteout}$  est le courant de particules collecté sur des masses en sortie avant la grille

La trajectoire des ions et des particules chargées dépend du champ électrique et de la vitesse du gaz vecteur dans les différentes parties du système (1. Espace inter-électrodes, 2. Tube de sortie, 3. Espace entre la sortie et l'électrode de mesure).

La présence de la grille à la masse et sa position font varier la quantité de charges accumulées entre la sortie et la grille. Le champ électrique est donc modifié par la présence de cette électrode de mesure, et la valeur mesurée en sortie dépend sa position.

Un exemple du courant moyen obtenu en sortie du système en fonction de la tension appliquée à l'électrode active et du diamètre moyen des particules est représenté sur la figure 6.

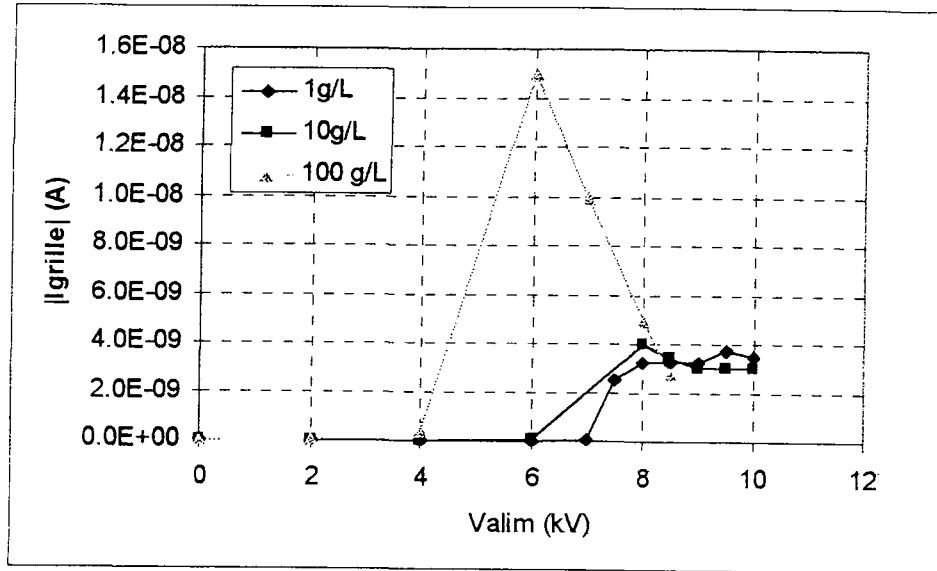


Figure 6 : Evolution du courant de sortie ( $I_{grille}$ ) en fonction de la tension appliquée au fil

En augmentant la tension appliquée, on augmente l'efficacité de charge, mais également le champ électrique dans l'espace inter-électrodes i.e l'efficacité de collection. Les variations du courant de sortie en fonction de la tension sont donc représentées par une courbe présentant un maximum (rapport charge/perte maximal) pour une géométrie et un débit donnés. Le courant représenté est ici un courant moyen.

Le diamètre moyen des résidus secs augmente avec la concentration en NaCl (40 nm pour 1g/L → 80 nm pour 100g/L). La mobilité des particules augmente avec le diamètre ( $\mu_p \propto q/d_p \propto d_p^2/d_p \propto d_p$  pour la charge par champ) et la tension nécessaire pour atteindre le point de fonctionnement est plus faible (efficacité de charge et de collection plus importantes). De plus, le niveau de charge augmente avec  $d_p$ , c'est pourquoi le niveau de courant de sortie au point de fonctionnement est plus élevé quand la taille moyenne des résidus secs augmente.

#### IV.3 Polarisation – dépolarisation ; dynamique du courant de sortie

Les mesures de courant moyen (à l'aide d'un multimètre) ne permettent pas d'observer les variations rapides du courant de sortie. L'utilisation d'un oscilloscope multi-voies a permis de mettre en évidence des variations rapides du courant de sortie, que nous attribuons à la variation du potentiel de surface du tube de sortie en isolant (PTFE).

Les surfaces isolantes proches de l'électrode active (le fil) collectent un courant d'ions non négligeable, et acquièrent ainsi un potentiel de surface non nul. Le degré d'humidité du gaz va ensuite permettre ou non la dépolarisation des surfaces.

La figure 7 décrit de manière qualitative les variations temporelles du courant de sortie lorsqu'un aérosol est injecté dans la zone de décharge, ainsi que les hypothèses sur le profil de potentiel de surface permettant de les expliquer.

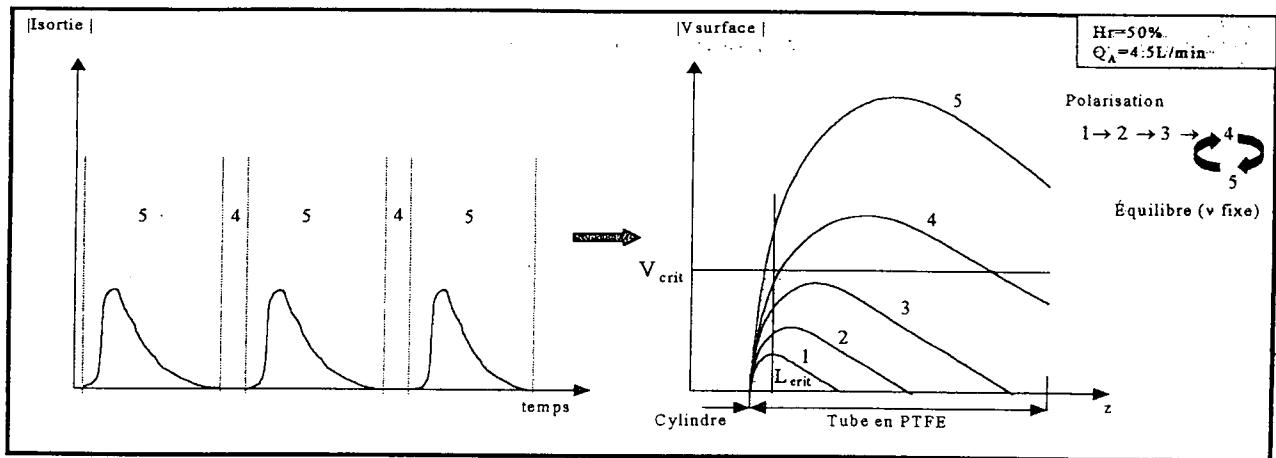


Figure 7 : Dynamique du profil de potentiel de surface et du courant de sortie en résultant avec un débit d'aérosol (équilibre polarisation – dépolarisation)

Pour une mobilité donnée, on peut définir un potentiel de surface critique  $V_{crit}$ , correspondant à la valeur à partir de laquelle les particules ne sont plus collectées sur la surface de PTFE. Pour un flux de charge donné sortant de la décharge, on peut définir une longueur critique  $L_{crit}$ , correspondant à la longueur sur laquelle le potentiel de surface doit être inférieur à  $V_{crit}$  pour qu'il y ait collection complète du flux de charges émergeant de la zone de décharge. Si  $L$  est la longueur à partir de laquelle  $V_{surf}$  atteint  $V_{crit}$  (en partant de 0 au niveau du contact entre le cylindre et la masse et le tube de sortie), on peut alors expliquer qualitativement la dynamique du courant de sortie de la manière suivante :

- Cas où  $L > L_{crit}$  : étapes 1,2,3 et 4

Le flux de charge est collecté entièrement sur l'isolant ; le courant de sortie est nul, et l'isolant se charge.

- Cas où  $L < L_{crit}$  : étape 5

Une partie des particules chargées est collectée sur l'isolant (sur une longueur  $L$ ) et le reste sort du système ; le courant de sortie est non nul. Le flux de charges normal à la surface de l'isolant diminue et la dépolarisation induit une diminution du potentiel de surface. Le profil de potentiel évolue donc vers un cas type étape 4.

En fonctionnement, le système est à l'équilibre (dynamique) entre des profils ( $L > L_{crit}$ ) et ( $L < L_{crit}$ ) et le courant de sortie a l'allure indiquée sur la figure 7.

Par ailleurs, avec l'encrassement des électrodes progressifs des électrodes, ces phénomènes de bouffées sont alternés avec des périodes de quelques secondes où le courant de particules chargées en sortie est continu, et non nul. Cela correspond à une polarisation plus importantes du PTFE due à une variation dans le fonctionnement de la décharge.

## V. Premiers résultats de l'étude paramétrique

### V.1 Géométrie de la décharge

En faisant varier les dimensions de la contre électrode, on change à la fois le temps de passage (pour un débit donné) et la densité d'ions Ni disponible à l'endroit de l'injection. La figure 8 représente les variations du courant moyen de particules chargées (au point optimal de tension) en fonction de la longueur du cylindre  $L_{cylindre}$  et de son diamètre intérieur  $D_{int}$ .

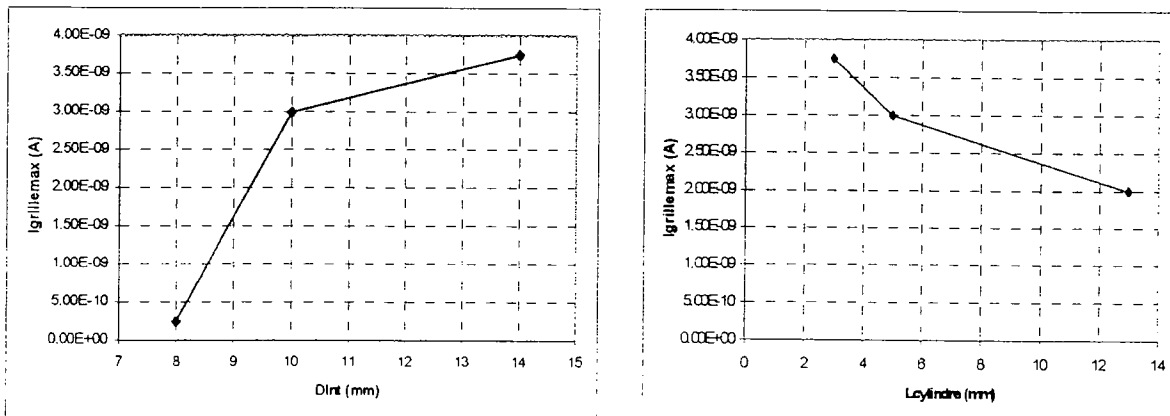


Figure 8: Evolution du courant de sortie Igrille en fonction de  $L_{cylindre}$  et  $D_{int}$

On retrouve là des variations typiques en fonction de la géométrie de notre système (précipitateur électrostatique en géométrie fil-cylindre), que l'on peut expliquer avec la formule de Deutsch-Anderson donnant l'efficacité de collection (le courant de sortie pourrait être approché par  $I_{\text{sortie}}=1-E$ ) en fonction des dimensions du cylindre et des vitesses radiale ( $V_{\text{TE}}$ ) et axiale ( $V_{\text{GAZ}}$ ):

$$E = 1 - \exp\left(-4 \cdot \frac{V_{\text{TE}}}{V_{\text{GAZ}}} \cdot \frac{L_{\text{cylindre}}}{D_{\text{int}}}\right)$$

En effet si  $L_{\text{cylindre}}$  augmente (ou si  $D_{\text{int}}$  diminue), l'efficacité de collection augmente, et le courant de particules chargées en sortie diminue. Le courant de sortie est donc maximal pour des petites longueurs et des grands diamètres de cylindre (limitation des pertes).

## V.2 Influence de l'aérosol

Les pertes par collection de particules chargées induisent des variations géométriques et perturbent le fonctionnement de la décharge. Les conditions de décharge (et de charge des particules) évoluent donc dans le temps. Il convient donc de limiter le dépôt sur les électrodes pour limiter l'évolution temporelle du courant de sortie. Nous n'avons pas encore effectué l'étude paramétrique sur le temps de passage  $\tau$  et la concentration  $C_p$  de l'aérosol, mais comme le montrent les résultats des premiers tests (cf. Tableau 1) utilisant l'aérosol dilué dans un débit d'air humide, une nette amélioration est envisageable en optimisant ces deux paramètres.

	$\tau$ (ms)	Débit total (L/min)	$C_p/C_{p0}$	$I_{\text{sortie}}$ (nA)	$\tau_{\text{vie}}$ (min)
Aérosol seul	6	4.5	1	10	60
Aérosol + air humide	2.4	11.7	0.4	25	>90

Tableau 1 : Variation du courant de sortie et du temps de vie du système avec et sans dilution de l'aérosol

Cette optimisation est rendue possible par le fait que la concentration  $C_{p0}$  en sortie de nébuliseur est de l'ordre de  $10^7 \text{ cm}^{-3}$ . Nous avons donc travaillé avec des concentrations trop importantes, et des temps de passage trop longs. Ainsi, une augmentation du débit de fonctionnement permettra de remplir ces deux contraintes simultanément de façon à produire des courants de sortie plus importants.

## VI. Conclusions et perspectives

L'analyse phénoménologique du système a permis de comprendre l'évolution temporelle du système et des différents courants mesurés ; d'une part, les phénomènes rapides (telles que la variation par bouffées du courant de sortie) et d'autre part, l'évolution lente des différents paramètres avec l'encrassement des électrodes par précipitation électrostatique. L'étude paramétrique de la zone de décharge (dimensions des électrodes) et du conditionnement de l'aérosol (débit, concentration et taille) devrait permettre de diminuer suffisamment le temps de passage (donc les pertes) pour pouvoir moyenner l'évolution temporelle. Dans le cas où l'optimisation du temps de passage ne serait pas suffisante pour limiter les pertes, nous avons prévu de mettre au point un système de charge des aérosols en post-décharge. Le transfert d'aérosols chargés dans un tube (permettant de s'affranchir des contraintes d'encombrement) fera également l'objet d'une étude.

# Détermination de la granulométrie et de la concentration d'un aérosol submicronique par mesure du coefficient d'extinction à plusieurs longueurs d'ondes.

M. Attoui, K.F. Ren, T. Girasole, A. Garo, G. Gouesbet et G. Gréhan  
LESP,  
UMR 6614-CORIA  
INSA et Université de Rouen,  
76 130 Mont Saint Aignan

4 janvier 2000

## Résumé

Cet article est dédié à la présentation d'un turbidimètre multilongueur d'onde. L'instrument est optimisé pour permettre une inversion en temps réel de spectres mesurés en un grand nombre de points (typiquement 50 à 100). Une attention particulière est portée à la validation des mesures.

Quand la taille moyenne des particules est proche de la longueur d'onde, une technique classique et populaire est la turbidimétrie pour quantifier la distribution granulométrique et la concentration des particules du milieu étudié.

## 1 Introduction

La caractérisation des nuages de particules est un défi majeur pour améliorer la maîtrise de nombreux procédés industriels. En fonction de la taille, de la concentration, des accès optiques. de nombreuses techniques existent.

Cet article est dédié à la description d'un tel granulomètre. Il est organisé comme suit. La section 2 rappelle les bases théoriques et les hypothèses de cette méthode. La section 3 est dédiée à la validation numérique et expérimentale de la chaîne de mesure. La section 4 est une conclusion où des extensions possibles sont suggérées.



## 2 Inversion: schéma théorique et implémentation numérique

Un turbidimètre est basé sur le fait que lorsque la lumière traverse un nuage de particules, ses propriétés spectrales sont changées[1]. En effet lors de l'interaction entre un faisceau de lumière et une particule, une certaine quantité de lumière caractérisée par une section efficace d'extinction,  $C_{ext}$ , est soustraite au faisceau incident. Cette section efficace dépend de la forme et la taille de la particule, l'indice de réfraction complexe de la particule et la longueur d'onde. La figure 1 illustre l'évolution de la section efficace d'extinction en fonction du diamètre de la particule, pour une goutte d'eau sphérique. Sur cette figure, deux familles de courbes sont tracées. La première famille (symboles pleins) correspond à la section efficace d'extinction  $C_{ext}$ , tandis que la deuxième famille (symboles vides) correspond à la section efficace d'absorption  $C_{abs}$ . Le paramètre pour ces deux familles est la longueur d'onde incidente. Pour chaque famille, quatre courbes sont tracées, correspondant aux longueurs d'ondes 0.4, 0.6, 0.8 et 1.0  $\mu m$ . A chaque longueur d'onde correspond un indice de réfraction complexe de l'eau ( $m = n - ik$ ). Nous avons utilisé les valeurs données par Halle et Query[2], qui correspondent également à celles obtenues à partir de la formule de Thormalhen et al [3] pour la composante réelle. La table suivante compile certaines de ces valeurs à titre illustratif. La section efficace d'absorption a été multipliée par un fac-

teur arbitraire afin de pouvoir être tracée sur cette figure. Ce facteur (grand) confirme que l'absorption peut être négligée. Nous constatons que la section efficace d'extinction évolue avec le diamètre suivant une loi dépendante de la longueur d'onde. Ce fait est mis en évidence figure 2 où l'évolution du facteur d'efficacité d'extinction est tracée en fonction du diamètre, avec la longueur d'onde comme paramètre. Le facteur d'efficacité d'extinction est défini comme le rapport de la section efficace d'extinction par la quantité d'énergie incidente sur la surface géométrique de la particule. Cette figure, plus classique, met en évidence les similarités et différences de la section efficace d'extinction avec la longueur d'onde.

$\lambda$ (en micron)	$n$	$k$
0.4	1.339	$1.86 \cdot 10^{-9}$
0.6	1.333	$1.09 \cdot 10^{-8}$
0.8	1.329	$1.25 \cdot 10^{-7}$
1.0	1.327	$2.89 \cdot 10^{-6}$

Table 1: Evolution de l'indice de réfraction de l'eau en fonction de la longueur d'onde

Une expérience de turbidimétrie est schématisée figure 3. Un faisceau incident de lumière blanche, issu d'une source d'extension latérale  $D_s$  et située à  $z_s$  du nuage à étudier, émet un rayonnement d'intensité  $I_0$ . Le nuage, d'épaisseur  $L$ , contient les particules dont on cherche à mesurer la taille et la concentration. L'intensité  $I$  de la lumière transmise est mesurée par un détecteur de diamètre  $D_d$ , situé à une distance  $z_d$  du nuage.

Si les hypothèses suivantes sont vérifiées:

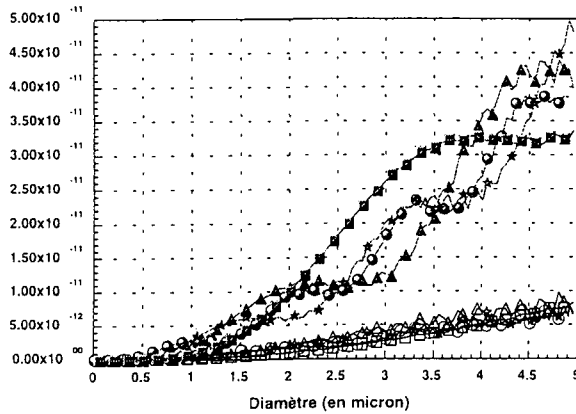


Figure 1: Evolution de la section efficace d'extinction en fonction du diamètre d'une goutte d'eau

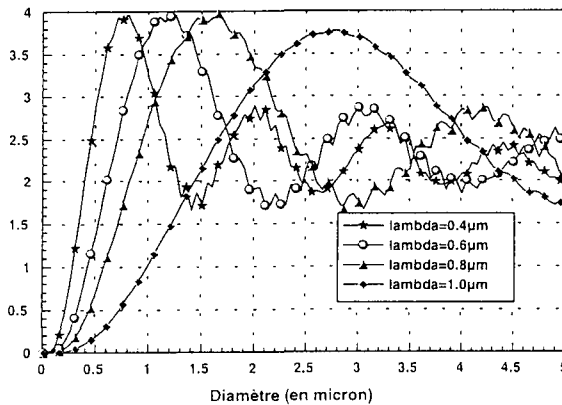


Figure 2: Evolution du facteur d'efficacité d'extinction en fonction du diamètre d'une goutte d'eau

1. La dimension  $L$  et la concentration des particules sont telles qu'il n'y a pas de diffusion multiple dans le nuage,
2. La dimension  $D_d$  et la distance  $z_d$  sont telles que le détecteur ne collecte pas la lumière diffractée par les plus grosses particules,
3. La dimension de la source  $D_s$  et la distance  $z_s$  sont telles que la lumière incidente peut être considérée comme parfaitement collimatée,

alors on peut écrire, pour chaque longueur d'onde:

$$\frac{I}{I_0} \Big|_{\lambda} = \exp \left( - \int_0^{\infty} C_{ext}(r) \Big|_{\lambda} N_r L dr \right) \quad (1)$$

où  $N_r dr$  représente le nombre de particules par unité de volume de diamètre compris entre  $r$  et  $r + dr$ .

Une mesure turbidimétrique consiste à partir de la mesure d'une série de  $\frac{I}{I_0} \Big|_{\lambda}$ , à extraire la distribution  $N_r$ . Ce problème classique d'inversion est traité par de nombreux auteurs. Nous avons travaillé à partir de l'ouvrage de Lawson et Hanson [4], par la méthode dite des moindres carrés avec contraintes non-négatives. Notre principale contribution a été de rechercher une programmation de cette méthode permettant une inversion rapide, stable, et avec beaucoup de points (typiquement de 20 à 100 points en longueur d'onde et jusqu'à 500 en diamètre) de l'Eq 1.

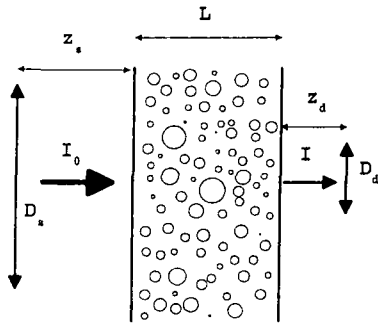


Figure 3: Principe d'une mesure turbidimétrique

### 3 Validation

Pour valider notre travail, de nombreuses simulations numériques ont été réalisées:

1. soit en inversant les prédictions de l'équation 1, avec une discrétisation en 100 points,
2. soit en simulant le schéma 3 grâce à un code de Monte carlo.

Seuls les résultats de l'item (1) sont présentés dans cet article.

#### 3.1 Validation numérique

Deux lois de distributions sont utilisées dans cet article: une loi de distribution gaussienne:

$$N(r) = w \exp\left(-\frac{(r_0 - r)^2}{2\beta^2}\right) \quad (2)$$

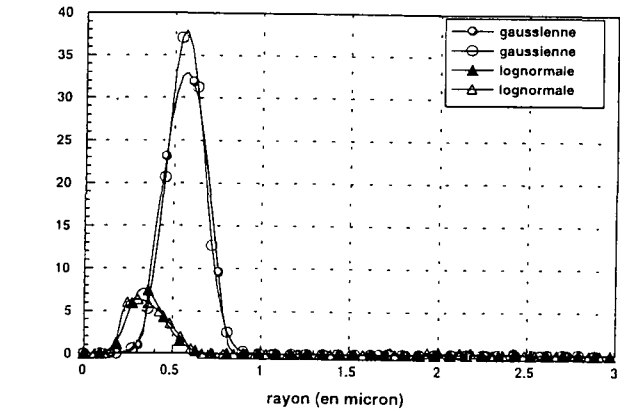


Figure 4: Comparaison entre la distribution volumique initiale et celle obtenue par inversion, pour des distributions gaussienne et lognormale.

et une loi de distribution log-normale:

$$N(r) = w r^{\beta r_0} \exp(-\beta r) \quad (3)$$

Les coefficients sont, pour la distribution gaussienne:  $w = 0.6 \cdot 10^{-4}$ ,  $\beta = 0.11$ ,  $r_0 = 0.5$ , et pour la distribution lognormale:  $w = 28 \cdot 10^6$ ,  $\beta = 36.74$ ,  $r_0 = 0.25$ . Les distributions initiales ont été calculées en 100 points pour des rayons compris entre  $0.00001 \mu\text{m}$  et  $3 \mu\text{m}$ . Les spectres d'extinction correspondants ont été calculés en 100 points équidistants compris entre  $0.5 \mu\text{m}$  et  $1.0 \mu\text{m}$ , avec une épaisseur du milieu  $L = 5 \text{ cm}$ . La procédure d'inversion a été utilisée en imposant une épaisseur du milieu de  $5 \text{ cm}$ , et un rayon des particules compris entre  $0$  et  $5 \mu\text{m}$ .

La figure 4 compare les distributions granulométriques, en volume, initiale (symboles pleins) et extraite du spectre d'inversion

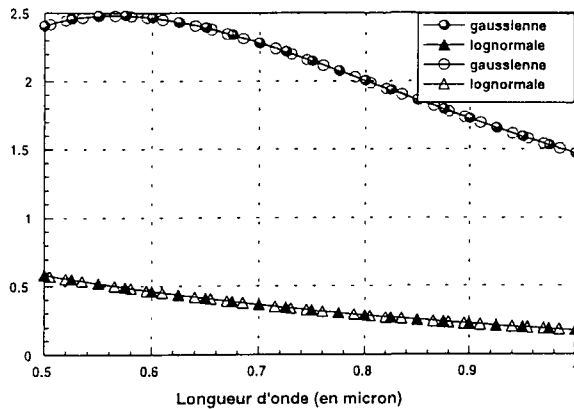


Figure 5: Comparaison entre les spectres d'extinction originaux et ceux calculés à l'aide de l'Eq (1) pour la distribution de diamètres extraite du spectre. Distributions gaussienne et lognormale.

(symboles vides) pour des distributions gaussienne et lognormale. L'accord entre les distributions initiale et extraite est satisfaisant, avec cependant une légère sous-estimation du diamètre le plus probable.

La figure 5 compare les spectres d'extinction initiaux (symboles pleins) et calculés à l'aide de la formule (1) pour les distributions extraites représentées figure 4 (symboles vides). L'accord entre les deux types de courbes est excellent.

La figure 6 a pour objectif d'illustrer l'importance du nombre de points de mesure. Pour la même loi de distribution lognormale que celle présentée ci-dessus, le spectre d'extinction a été simulé comme étant discrétisé en 5, 10, 20, 40 et 80 points de longueur d'onde, équidistants entre 0.4 et 1  $\mu m$ . Le nombre de rayons exigé pour construire la

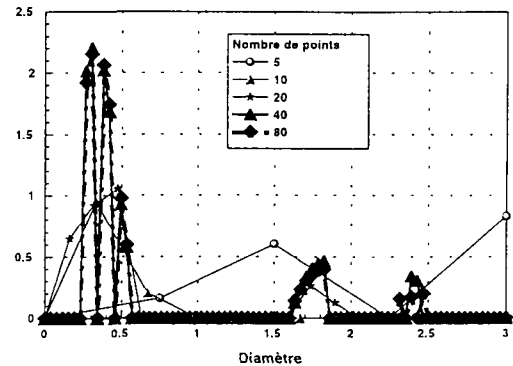


Figure 6: Distribution volumique extraite, avec comme paramètre le nombre de points de discrétisation du spectre et de la distribution

distribution est fixé comme identique au nombre de mesures d'extinction (5, 10, 20, 40 et 80).

Afin de quantifier la qualité de l'inversion, un coefficient de distance entre le spectre initial et le spectre calculé pour la distribution extraite est introduit. Ce coefficient  $\delta$  est défini par:

$$\delta = \frac{\sqrt{\sum_{i=1}^N \left( \frac{I}{I_0} \Big|_{\lambda_i, mes} - \frac{I}{I_0} \Big|_{\lambda_i, cal} \right)^2}}{N} \quad (4)$$

où  $N$  est le nombre de points du spectre à inverser,  $\frac{I}{I_0} \Big|_{\lambda_i, mes}$  est la transmittance mesurée à la longueur d'onde  $\lambda_i$  et  $\frac{I}{I_0} \Big|_{\lambda_i, cal}$  est la transmittance calculée à la longueur d'onde  $\lambda_i$ . Le tableau 2 compile les résultats obtenus. Dans ce tableau, les lignes donnent le nombre de points du spectre à inverser, tandis que les colonnes correspondent au nombre de points exigé pour décrire la distribution.

L'amélioration de l'accord lorsque le nombre de points de discrétisation du spectre et de la distribution augmente est mis en évidence. Le même type d'évolution est observable en fonction des différents paramètres du code (diamètre minimum, diamètre maximum, ...). Nous définissons la meilleure inversion comme celle qui permet d'obtenir la plus petite valeur de  $\delta$ , indépendamment de toute hypothèse sur la distribution granulométrique des particules. Soulignons, que sur un PC équipé d'un processeur Celeron cadencé à 300 MHz, pour un spectre d'extinction discrétisé en 80 points et 80 points exigés pour la distribution granulométrique, le temps d'inversion est inférieur à 5s.

### 3.2 Validation expérimentale

Notre chaîne turbidimétrique est basée sur un spectromètre Ocean Optics SD2000 avec son logiciel d'acquisition. La mesure du spectre est réalisée par une barrette CCD de 2048 éléments entre 0.5 et 1.0  $\mu\text{m}$ . La source est une lampe halogène. Le temps d'intégration sélectionné est de 1 ms, et 50 spectres consécutifs sont moyennés pour chaque point de mesure.

La génération de l'aérosol étalon est réalisée par un générateur commercial de fumée. Ce générateur vaporise un produit composé d'eau, d'alcool et d'aditifs dont l'indice réel de réfraction a été mesuré égal à 1.3333. Dans la suite de cet article les indices complexe et imaginaire de l'eau seront donc utilisés. La figure 7 compare le spectre d'extinction mesuré et le spectre d'extinction reconstruit à l'aide de la distribution extraite par inversion. L'ac-

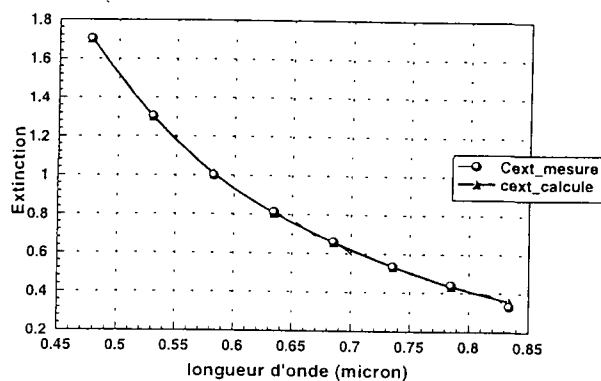


Figure 7: Comparaison entre les spectres mesuré et reconstruit.

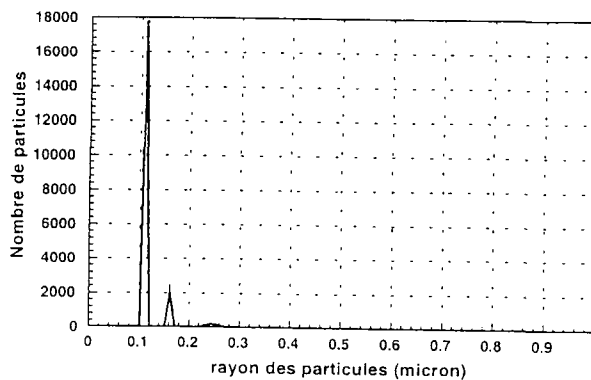


Figure 8: Distribution en nombre extraite.

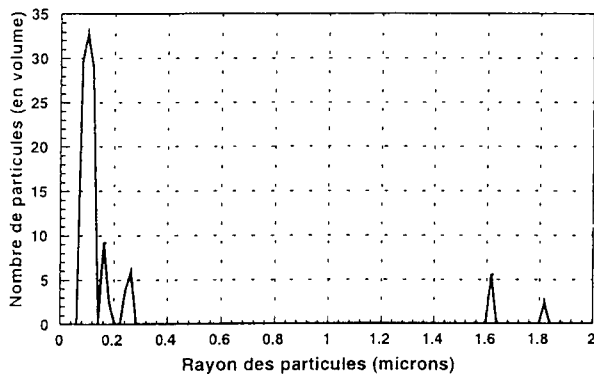


Figure 9: Distribution extraite en volume.

cord est très satisfaisant. Les figures 8 et 9 présentent les distributions granulométriques en nombre et en volume extraites du spectre de la figure 8. Le diamètre mesuré ( $0.2 \mu\text{m}$ ) est en accord avec la physique de la génération de l'aérosol (vaporisation/condensation) ainsi qu'avec des mesures indépendantes.

## 4 Conclusion

La turbidimétrie multilongueur d'onde est une technique dont le principe est établi depuis de nombreuses années. Cependant, les progrès en instrumentation (spectromètre miniature, barrette CCD) ainsi que les puissances de calcul des PC actuels permettent de lui redonner de l'attrait pour le diagnostic en ligne d'aérosols. Ainsi, nous avons démontré dans cet article qu'une instrumentation simple et bon marché, associée à un programme convivial permettait d'extraire rapidement et facilement la granulométrie d'un aérosol à partir d'une mesure turbidimé-

rique.

## Références

- [1] M. Kerker. *The scattering of light and other electromagnetic radiation*. 1969. Academic Press.
- [2] G.M. Hale and M.R. Querry. Optical constants of water in the 200-nm to 200  $\mu\text{m}$  wavelength region. *Applied Optics*, 12: 555-563, 1973.
- [3] I. Thormahlen, J. Straub, and U. Grigul. Refractive index of water and its dependence on wavelength. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 14: 933-, 1985.
- [4] C.L. Lawson and R.J. Hanson. *Solving least squares problems*. 1974.

	$\delta_5 \cdot 10^{-2}$	$\delta_{10} 10^{-3}$	$\delta_{20} 10^{-3}$	$\delta_{40} 10^{-4}$	$\delta_{80} 10^{-4}$
5	.80	.65	.26	.69	.02
10	.57	.39	.15	.71	.51
20	.40	.25	.12	.69	.52
40	.28	.17	.09	.55	.37
80	.20	.01	.06	.41	.27

Table 2: Evolution de l'écart entre le spectre mesuré et le spectre reconstruit en fonction du nombre de points de mesure du spectre et de la distribution.

# MESURE DE TEMPÉRATURE DE GOUTTE EN VOL PAR FLUORESCENCE INDUITE PAR LASER

F. Hervy <sup>(1,2)</sup>, J.-Y. Lévêque <sup>(2)</sup>, F. Feuillebois <sup>(1)</sup>

<sup>(1)</sup> PMMH, ESPCI, 10 rue Vauquelin, 75231 Paris Cedex 05

<sup>(2)</sup> Centre d'Essais des Propulseurs, Saclay, 91895 Orsay Cedex

15<sup>e</sup> Congrès Français sur les Aérosols, Paris 8 et 9 Décembre 1999

## 1 Introduction

Jusqu'à présent, les essais de givrage étaient réalisés avec des gouttelettes d'un diamètre moyen d'environ 20  $\mu\text{m}$  dans des écoulements saturés en vapeur d'eau afin de limiter l'évaporation. Compte-tenu de la durée de transport des gouttes de la grille d'injection d'eau à l'obstacle par rapport au temps nécessaire pour les refroidir, l'hypothèse d'un équilibre thermique du nuage à la température statique de l'écoulement demeure plausible (mais toujours non vérifiable). Aujourd'hui, il semble que l'on s'oriente vers des essais de bruine givrante dont les diamètres atteignent quelques centaines de micromètres à des températures proches de 0 °C. Ces conditions givrantes produisent des captations verglacées dont les formes dépendent des échanges thermiques entre les gouttes impactées, l'obstacle et l'écoulement. Or les dimensions de ces gouttes sont telles qu'elles ne peuvent plus atteindre l'équilibre thermique avant impact. Par conséquent, l'incertitude sur la température du nuage peut conduire à la formation de captations non représentatives des conditions d'essais, voire remettre en question la reproductibilité de celles-ci.

Les premières techniques de mesures de température de goutte ont été développées pour des applications orientées vers le domaine de la combustion. Ces méthodes, non-intrusives, sont toutes des méthodes optiques utilisant une source laser. Elles ne mesurent pas directement la température mais l'indice de réfraction du liquide par diffusion élastique de la lumière. La nature du milieu, la granulométrie du nuage et les plages de températures étudiées déterminent la sensibilité de l'instrumentation, et il n'est pas possible de mesurer avec précision la température de gouttelettes d'eau avec de telles méthodes comme nous allons le voir.

## 2 Historique

La réfractométrie d'arc-en-ciel est une mesure de l'angle limite de rétro réflexion (réfraction d'ordre 2 ou supérieur). Cette position correspond à une zone de convergence des rayons lumineux réfléchis dans la goutte (effet de lentille) avec un maximum d'amplitude, c'est-à-dire un arc principal. Celui-ci est accompagné d'arcs surnuméraires d'amplitude plus faible produits par interférence. La position angulaire de ces arcs dépend de la longueur d'onde incidente, de l'indice de réfraction et du diamètre de la goutte ainsi que de sa sphéricité. L'optique géométrique ne prédit que l'existence et la position angulaire des arcs principaux uniquement en fonction de l'indice alors que les théories de Lorenz-Mie et d'Airy confirment la présence des arcs surnuméraires, donnent leurs amplitudes et montrent l'influence du diamètre et de la longueur d'onde incidente. Aussi la combinaison de ces théories permet-elle de déterminer simultanément l'indice de réfraction (température) avec une précision portant sur la quatrième décimale, et le diamètre de la goutte [1]. Par ailleurs, Sankar *et al.* [2] ont mesuré en complément la vitesse en couplant la vélocimétrie laser Doppler à la réfractométrie. Plus récemment, Van Beek et Riethmuller [3] ont montré que ces paramètres pouvaient être mesurés simultanément par réfractométrie arc-en-ciel en utilisant un photomultiplicateur comme récepteur au lieu d'une caméra CCD. Les études précédentes supposent que l'indice soit constant à l'intérieur de la goutte. Par conséquent, celle-ci est homogène en température. Cette hypothèse, valable seulement pour des particules en équilibre thermique, n'est pas toujours vérifiée dans les écoulements diphasiques. En effet, des gradients de température, donc d'indice, peuvent apparaître à l'intérieur des gouttes lors d'échanges thermique et massique avec l'écoulement. Le cas des gradients radiaux a été abordé par Anders *et al.* [4] dans le cadre de l'optique géométrique et Corbin *et al.* [1] dans celui de la théorie de Lorenz-Mie. D'après leurs résultats, les erreurs de mesure sont importantes pendant la phase transitoire à cause des forts gradients qui règnent dans la goutte [4], et plus particulièrement si ces derniers s'accroissent vers la surface [1]. Dans ce cas, la valeur mesurée est en dehors de la plage d'indice existant au

sein de la goutte. D'autres méthodes [5], dérivées de l'anémométrie phase Doppler (PDA) permettent la mesure simultanée de la vitesse, du diamètre, de l'indice de réfraction et pour l'une d'elles du coefficient d'absorption. Naqwi *et al.* [6] ont proposé une version "étendue" de l'anémomètre phase Doppler (EDPA) comportant deux unités de réception. Chaque unité enregistre une différence de phase, fonction du diamètre de la goutte et de l'indice de réfraction pour la lumière réfractée. Les auteurs montrent que le rapport des différences de phase n'est fonction que de l'indice de réfraction pour une particule réfractante. La sensibilité du système dépend principalement du positionnement des récepteurs. Il faut éviter la superposition de signaux réfractés avec des signaux réfléchis ou diffractés, ce qui limite les angles de réception et restreint la plage de mesure aux indices supérieurs à 1,27. La théorie de Lorenz-Mie montre que la précision ne peut descendre au dessous de 0,04. Par ailleurs, cette valeur, confirmée par des validations sur des jets mono et polydispersés, augmente lorsque le diamètre devient inférieur à 30  $\mu\text{m}$ . Sankar et Bachalo [7] et Gréhan *et al.* [8] ont simulé l'effet d'une goutte traversant un faisceau laser gaussien, et démontré que celle-ci peut diffuser, sous un même angle, de la lumière par réflexion et par réfraction. Cet effet de trajectoire conduit à des erreurs sur la mesure de diamètre. Parmi les solutions envisagées pour l'éliminer, la technique des deux bouffées (DBT) proposé en [9] offre la possibilité de mesurer simultanément la vitesse, le diamètre, l'indice de réfraction et le coefficient d'absorption d'une goutte avec une seule unité de réception. En diffusion avant, pour des gouttes au moins aussi larges que le faisceau, la lumière diffusée par réflexion est nettement distincte de celle par réfraction. Les signaux peuvent alors être analysés séparément. Le diamètre de la goutte est déduit de la différence de phase du signal réfléchi tandis que la vitesse et l'indice le sont du signal réfracté. En outre, le coefficient d'absorption est mesuré grâce au rapport des intensités des signaux. La précision sur la valeur de l'indice de réfraction atteint 1% pour des gouttes dont le diamètre est supérieur à 50  $\mu\text{m}$  et croît jusqu'à quelques pourcents pour des gouttes plus petites.

Parmi toutes les techniques présentées, la plus précise est la réfractométrie d'arc-en-ciel avec une incertitude sur la quatrième décimale. Cependant, elle ne peut atteindre une précision inférieure au degré en raison de la faible variation de l'indice de réfraction de l'eau avec la température, dont la valeur est proche de  $10^{-4} / \text{K}$  contre  $5 \cdot 10^{-4} - 10^{-3} / \text{K}$  pour des solvants organiques (alcools ou hydrocarbures) [10]. En outre, cette sensibilité diminue lorsque la température tend vers  $0^\circ \text{C}$ . Pour des gouttes en surfusion, il serait nécessaire de connaître la loi d'évolution de l'indice avec la température. Lorsque la goutte présente des gradients d'indice, l'erreur est encore plus importante et la précision devient de l'ordre de quelques degrés. Malgré leur médiocre précision, les méthodes dérivées de l'anémométrie phase Doppler sont plus adaptées à l'étude des nuages polydispersés que la réfractométrie. La dynamique de taille de cette dernière demeure limitée en raison de la dépendance de la position de l'arc, donc du récepteur, vis-à-vis du diamètre des gouttes.

La précision de ces techniques étant insuffisante, nous nous sommes tournés vers une méthode de mesure par diffusion inélastique de la lumière: la fluorescence.

### 3 Fluorescence induite par laser appliquée à une goutte sphérique: Théorie

D'une manière générale, la puissance fluorescée  $P_f$  d'un volume contenant un produit fluorescent soumis localement à un faisceau incident  $I_0$  et de longueur d'onde  $\lambda_i$  est définie par:

$$P_f = C_{abs} \eta_q \frac{\lambda_i}{\langle \lambda_f \rangle} I_0 \quad (1)$$

où  $C_{abs}$  est la section efficace d'absorption, détaillée au § 3.1,  $\eta_q$  est le rendement quantique de fluorescence précisé au § 3.2 et  $\langle \lambda_f \rangle$  est la longueur d'onde moyenne du spectre d'émission en fluorescence.

#### 3.1 Absorption

Dans le cas d'un faisceau laser gaussien (mode TEM<sub>00</sub>), l'intensité relative locale vaut:

$$i_0(x, y, z) = \frac{I_0(x)}{I_0} e^{-2(y^2+z^2)/w_0^2} \quad (2)$$

Si la goutte est petite par rapport au rayon  $w_0$  du faisceau incident, l'efficacité d'absorption peut s'écrire:

$$C_{abs} = 4\pi\varepsilon C_r r_p^3 i_0(x, y, z) \frac{1}{3m_0} (m_0^3 - (m_0^2 - 1)^{\frac{3}{2}}) \quad (3)$$

Le coefficient d'absorption  $\varepsilon(\lambda_i)$ , déterminé à partir du spectre d'émission fluorescente, varie en fonction de la température  $T$ . D'un point de vue quantique, seule la population moléculaire dans l'état fondamental  $E_1$  peut être activée en  $E_2$ .



### 3.2 Emission

De nombreuses substances peuvent fluorescer en phase gazeuse, liquide ou solide, si elles sont excitées par des photons d'énergie compatible avec leur spectre d'absorption, c'est-à-dire capables de provoquer une transition électronique (état activé). Les molécules dissipent une partie de l'énergie absorbée suites aux collisions avec d'autres molécules puis retombent dans leur état fondamental soit par émission d'un photon de plus faible énergie (fluorescence) soit par désactivation collisionnelle. Les nombreux chocs intermoléculaires induisent un élargissement des spectres d'absorption et d'émission allant même jusqu'à un chevauchement partiel des deux spectres.

Le rendement quantique  $\eta_q$  est le rapport entre le nombre de transitions radiatives (fluorescence) par unité de temps et le taux de désactivation par collisions. Le nombre de transitions radiatives est lui-même proportionnel au rendement (quantique) naturel de fluorescence  $\eta_{q0}$  et à la constante de désactivation par fluorescence  $k_f$ . Quant au taux de désactivation par collisions, il est proportionnel à une constante de désactivation collisionnelle  $k_c$  et de la concentration moléculaire  $M$  en espèce désactivante (solvant) qui est constante pour une solution diluée de molécules fluorescentes [12].

$$\eta_q = \frac{\eta_{q0} k_f}{k_c M} \quad (4)$$

La constante de désactivation collisionnelle  $k_c$  suit une loi de Boltzmann, où  $W$  est l'énergie d'activation collisionnelle et  $kT$  correspond à l'énergie d'agitation thermique:

$$k_c = k_{c0} e^{-\frac{W}{kT}} \quad (5)$$

### 3.3 Puissance fluorescée

Les résultats précédents conduisent à l'expression générale pour une goutte, homogène en température, faiblement absorbante ( $\epsilon C d_p < 0,1$ ) et de diamètre inférieur à  $0,6 w_0$ :

$$P_f = K_{opt} K_{spec} \epsilon C d_p^3 I_0(x, y, z) e^{\frac{\beta}{r}} e^{-(y^2+z^2)/w_0^2} \quad (6)$$

avec  $\beta = \frac{E_2 - E_1 + W}{k} > 0$ . Les coefficients  $K_{opt}$  et  $K_{spec}$  sont des constantes qui dépendent respectivement du montage optique et de la molécule fluorescente utilisée.

## 4 Validation expérimentale

Le colorant le plus adéquat pour des mesures de température en solution aqueuse est la rhodamine B dont l'intensité de fluorescence varie de 5%/K aux températures ambiantes [14]. Son spectre d'absorption centré sur 550 nm permet de l'exciter avec la composante verte d'un laser à Argon ionisé et le maximum d'émission se situe vers 600 nm.

Le banc (figure 2) est composé de deux rampes perpendiculaires dont l'une comprend une source laser à argon ionisé d'une puissance de 60 mW émettant de la lumière verte à 514,5 nm et une lentille de focalisation, et l'autre une lentille de réception, un filtre passe-bande centrée sur 600 nm (pic du spectre d'émission de la rhodamine B) et un photomultiplicateur (P.M.). L'intersection des glissières définit la position du volume de mesure. Au dessus de ce point, un injecteur monodisperse (Microdrop MD-K-140 H) a été fixé verticalement sur un système de déplacement micrométrique, mobile latéralement et verticalement. La position longitudinale du volume de mesure est ajustée en déplaçant la lentille de focalisation. Les signaux recueillis par le photomultiplicateur sont envoyés sur un oscilloscope dont l'entrée comporte un boîtier de résistances de charges pour l'amplification du signal en tension. Pour l'ensemble de cette série de mesures, le volume de mesure a été placé à une distance de 3 mm de l'injecteur. La vitesse initiale des gouttes est d'environ 3 m/s, et le temps de transport correspondant d'une milliseconde. Une estimation du temps caractéristique de refroidissement par le modèle proposé en [15] donne 25 ms pour un diamètre de 92  $\mu\text{m}$ . La température de la goutte est donc celle mesurée par la sonde incluse dans l'injecteur. A une telle distance, la position latérale du train de gouttes présente de faibles fluctuations comparée au diamètre du faisceau. Enfin, le rapport entre la distance parcourue et le diamètre de la goutte est suffisamment grand pour considérer qu'elle est sphérique.

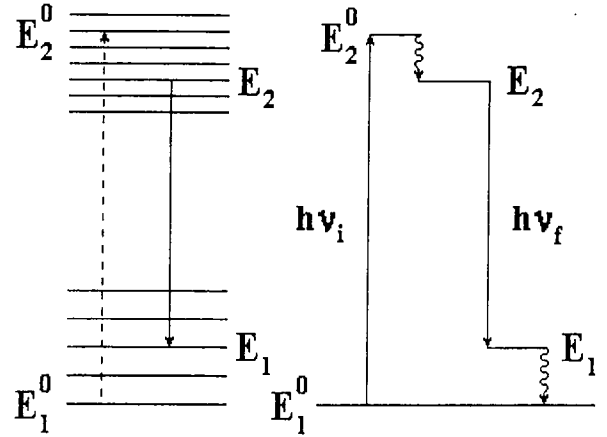


FIG. 1 - Mécanisme de la fluorescence

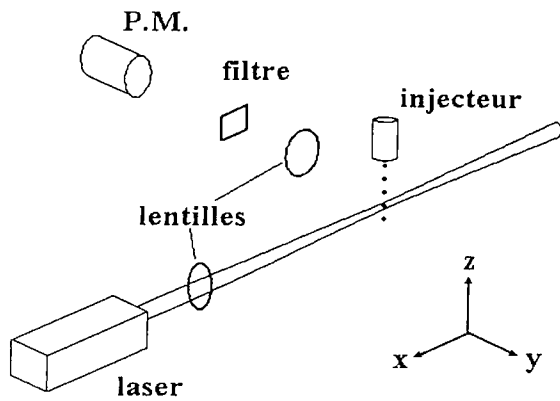


FIG. 2 - Montage

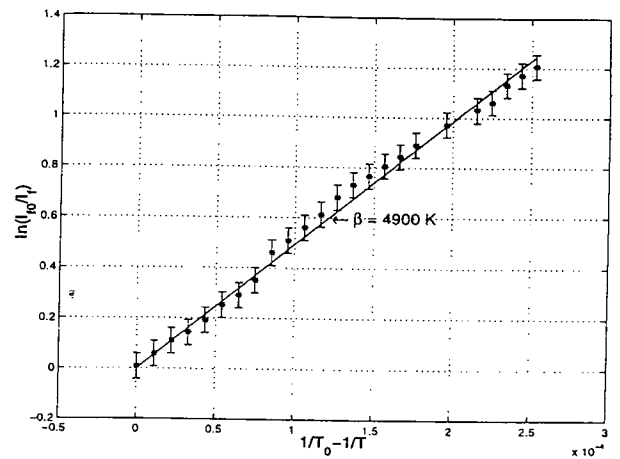


FIG. 3 - Influence de la température

#### 4.1 Température

Le comportement en température de l'intensité de fluorescence d'un train de gouttes monodisperses a été étudié entre 28 ° C et 60 ° C avec une précision de l'ordre de 0,5 ° C (figure 3). La condition de référence, indexée 0, coïncide avec le point de mesure à plus basse température. La pente, qui n'est autre que  $\beta$ , est sensiblement constante avec une valeur de 4900 K<sup>-1</sup>; Elle assure une sensibilité en température de 0,2 K au dispositif si l'on admet que l'incertitude sur  $I_0/I$  est de l'ordre de 1 %.

#### 4.2 Diamètre

L'injecteur Microdrop fonctionne selon la théorie de Rayleigh. Pour des conditions de fonctionnement particulières, les gouttes formées ne sont plus monodisperses. Généralement, le jet comprend deux ou plusieurs gouttes de diamètres différents dont le volume correspond à une goutte de diamètre nominal  $D_0$  (92  $\mu\text{m}$ ). Cette granulométrie simple peut s'étudier en diffusion élastique. L'optique géométrique montre que la lumière diffusée est proportionnelle à la surface de la particule sous un angle solide donné [16]. Cette mesure est effectuée en otant le filtre passe-bande. Le signal de fluorescence est donc superposé au signal de diffusion élastique, mais sa contribution est alors négligeable si l'on compare les efficacités de diffusion et de fluorescence. Un test préliminaire en régime monodisperse sert de référence pour éliminer les coefficients de proportionnalité. Le quotient entre l'intensité diffusée par une goutte et l'intensité nominale  $I_{f0}$  à la puissance 1,5 donne le rapport entre le volume de cette goutte et celui d'une goutte de diamètre nominal. Une fois le filtre remis en place, nous obtenons des températures comprises entre 30 ° C et 55 ° C . Les résultats ont été comparés au comportement théorique prévu par la théorie de Mie et l'optique géométrique. L'écart moyen avoisine 4 % sur l'intensité, soit 0,7 ° C sur la température de la goutte. L'hypothèse de linéarité entre la puissance émise et le volume est vérifiée puisque le rapport  $\frac{d_p}{2w_0}$  reste inférieur à 0,3.

#### 4.3 Effet de trajectoire

La distribution en intensité du faisceau laser affecte l'intensité émise par fluorescence selon la position relative de passage de la goutte par rapport à l'axe. Cet effet est à distinguer de l'effet de bord qui n'apparaît pas lorsque le rapport  $\frac{d_p}{2w_0}$  est faible. L'estimation du diamètre  $2w_0$  du faisceau au niveau de zone d'étranglement (beam waist), à partir des données optiques du montage expérimental, donne 300  $\mu\text{m}$ . Le profil du faisceau a été représenté sur la figure 5 avec les résultats expérimentaux pour un diamètre de goutte nominal (92  $\mu\text{m}$ ). L'injecteur a été déplacé par pas de 100  $\mu\text{m}$  minimum grâce au système micrométrique associé au support (voir figure 2).

### 5 Conclusion

Ce travail a permis de valider le principe de mesure de température par fluorescence induite par laser sur une phase dispersée constituée d'un nuage de gouttes polydispersées inférieures ou égales à 92  $\mu\text{m}$ , entre 28 ° C et 60 ° C , constituée d'une solution aqueuse diluée de rhodamine B. La précision atteint 0,5 ° C même si des

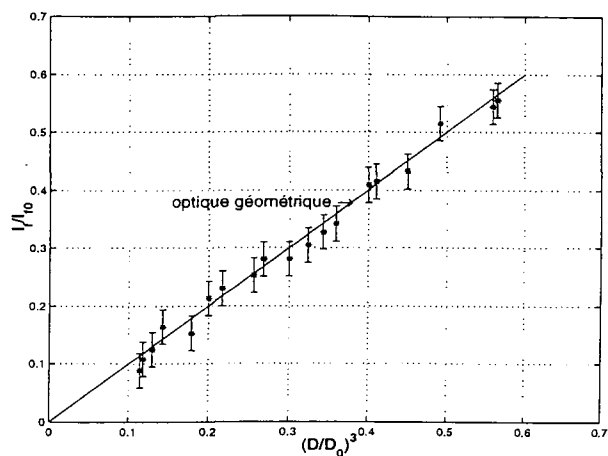


FIG. 4 - Influence du diamètre

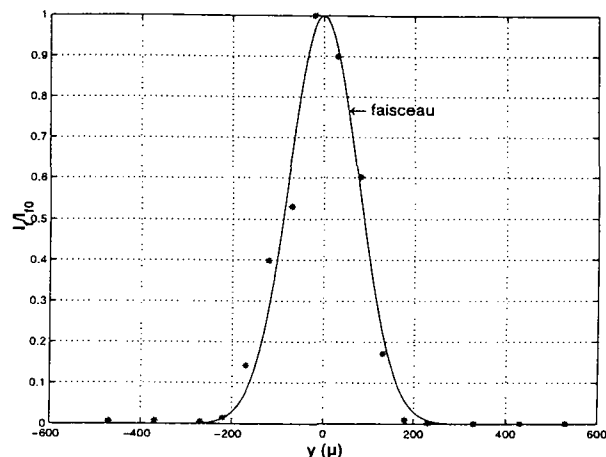


FIG. 5 - Effet de trajectoire

gradients de températures importants existent à l'intérieur des gouttes. Notre méthode pourra être intégrée à un anémomètre laser Doppler ce qui permettra de caractériser chaque goutte ayant traversé le volume de mesure et de connaître sa vitesse, son diamètre, sa hauteur de passage dans le volume de mesure et sa température simultanément. Notre objectif est d'appliquer cette technique à un nuage en surfusion. Les caractéristiques de l'eau (ou de solutions aqueuses) en surfusion sont peu connues, et cependant il semble admis que la présence de substances organiques en solution ne modifie pas la température moyenne de surfusion d'une goutte tant que leur concentration reste inférieure à 1 % [17]. Il sera donc nécessaire de vérifier si le coefficient  $\beta$  reste constant à  $T < 0^\circ \text{C}$ .

## Remerciements

Nous tenons à remercier Mademoiselle Magali SURIVET, stagiaire de l'Institut Supérieur d'Optique, qui a mené à bien la validation expérimentale. L'ensemble de ce travail a été réalisé dans le cadre d'une bourse DGA-CNRS.

## Références

- [1] Corbin (F.), Garo (A.), Gouesbet (G.) et Gréhan (G.). - Réfractométrie d'arc-en-ciel: application au diagnostic des gouttes avec gradient d'indice. In: *5<sup>e</sup> Congrès Francophone de Vélocimétrie laser, Rouen, France, 1996*.
- [2] Sankar (S. V.), Ibrahim (K. M.), Buermann (D. H.), Fidrich (M. J.) et Bachalo (W. D.). - An integrated phase Doppler/rainbow refractometer system for simultaneous measurements of droplet size, velocity and refractive index. In: *3<sup>rd</sup> Int. Congr. on Optical Particle Sizing, Yokohama, 1993*.
- [3] Van Beeck (J. P. A. J.) et Riethmuller (M. L.). - Détermination simultanée de la vitesse, de la température et du diamètre des gouttes par la méthode de l'arc-en-ciel. In: *5<sup>e</sup> Congrès Francophone de Vélocimétrie laser, Rouen, France, 1996*.
- [4] Anders (K.), Roth (N.) et Frohn (A.). - Influence of refractive index gradients within droplets on rainbow position and implications for rainbow refractometry. *Part. Part. Syst. Charact.*, vol. 13, 1996, pp. 125-129.
- [5] Riethmuller (M. L.). - Développements récents dans les techniques de granulométrie-laser. In: *4<sup>e</sup> Congrès Francophone de Vélocimétrie laser, Poitiers-Futuroscope, France, 1994*.
- [6] Naqwi (A.), Durst (F.) et Liu (X.). - Extended phase-Doppler system for characterization of multiphase flows. *Part. Part. Syst. Charact.*, vol. 8, 1991, pp. 16-22.
- [7] Sankar (V. S.) et Bachalo (W. D.). - Response characteristics of the phase Doppler particle analyzer for sizing spherical particles larger than the light wavelength. *Applied optics*, vol. 30, n° 12, 1991, pp. 1487-1496.

- [8] Gréhan (G.), Gouesbet (G.), Naqwi (A.) et Durst (F.). – Particle trajectory effects in phase Doppler systems: Computations and experiments. *Part. Part. Syst. Charact.*, vol. 10, 1993, pp. 332–338.
- [9] Onofri (F.), Girasole (T.), Gréhan (G.), Gouesbet (G.), Brenn (G.), Domnick (J.), Xu (T.-H.) et Tropea (C.). – Phase-Doppler anemometry with the dual burst technique for measurements of refractive index and absorption coefficient simultaneously with size and velocity. *Part. Part. Syst. Charact.*, vol. 13, 1996, pp. 112–124.
- [10] Drexhage (K. H.), Erikson (G. R.), Hawks (G. H.) et Reynolds (G. A.). – Water soluble coumarines dyes for flashlamp-pumped dye lasers. *Optics communications*, vol. 15, n° 3, 1975, pp. 399–403.
- [11] Herzberg (G.). – *Spectra of diatomic molecules*. – Van Nostrand Reinhold Company, 1950.
- [12] Lemoine (F.), Wolff (M.) et Lebouche (M.). – Sur la possibilité de mesurer simultanément la température et la concentration en écoulement turbulent. *C.R. Acad. Sci. Paris*, vol. 322, 1996, pp. 297–300.
- [13] Bruhat (G.). – *Optique*. – Paris, Masson, 1947.
- [14] Guilbault (G. G.). – *Practical fluorescence: theory, methods and techniques*. – New York, Marcel Dekker Inc., 1973.
- [15] Creismas (P.). – An Eulerian/Lagrangian modelling to calculate the evolution of a water droplets spray. *Int. J. Numerical Methods in Fluid*, vol. 20, 1995, pp. 135–155.
- [16] Bachalo (W. D.) et Houser (M. J.). – Phase-Doppler spray analyzer for simultaneous measurements of drop size and velocity distributions. *Optical engineering*, vol. 23, n° 5, 1984, pp. 583–590.
- [17] Pruppacher (H. R.) et Klett (J. D.). – *Microphysics of clouds and precipitation*. – New York, Reidel Publishing Company, 1978.

# ETUDE NUMERIQUE D'UN ECHANTILLONNEUR A FENTE ANNULAIRE DANS UN ECOULEMENT TURBULENT

F. Roger<sup>(1,2)</sup>, J.F. Fabriès<sup>(1)</sup>, P. Görner<sup>(1)</sup>, R. Wrobel<sup>(1)</sup>, A. Renoux<sup>(2)</sup>

<sup>(1)</sup>INRS, Laboratoire de Métrologie des Aérosols,  
BP 27, av. de Bourgogne, 54501 Vandœuvre les Nancy, France.

<sup>(2)</sup>Université Paris XII, Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations,  
Avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil cedex, France.

## ABSTRACT

In this paper the sampling characteristics of an annular aerosol sampling slot in a turbulent wind using a numerical approach are presented. The study was carried out for four configurations combining two external wind velocities ( $W = 1$  and  $3 \text{ m s}^{-1}$ ) and two aspiration slot velocities ( $U_s = 0.55$  and  $0.92 \text{ m s}^{-1}$ ).

The flow field and particle trajectories were investigated using computational fluid dynamics software (Fluent 4.0) based on the finite difference method. The numerical problem was solved in 3D geometry using unstructured solution adaptive grid. The Reynolds-averaged Navier-Stokes equations coupled to the standard k- $\epsilon$  model are solved to predict the turbulent mean fluid motion. The particle trajectories, tracked by Lagrangian approach, are calculated by integrating the particle equations of motion, taking into consideration the ultra-stokesian drag force and gravity. Particle rebound on the external surface of the sampler was studied, implying an elastic collision between particle and wall. The aspiration efficiency was calculated by the limiting particle trajectories method.

The flow approaching the blunt body is found to be divergent, and is mainly the algebraic sum of the external wind and aspiration velocity vectors inside the aspiration slot. A stagnation zone can be observed inside the slot. Its location depends on the velocity ratio  $R$  ( $R = W/U_s$ ). The calculation of aspiration efficiency for  $W = 3 \text{ m s}^{-1}$  failed because of the complexity of this configuration. In this case large particles hit the inner surface of the annular slot or can pass directly through the annular slot without being stopped by the aspiration process. The numerical results of the aspiration efficiency calculated for  $W = 1 \text{ m s}^{-1}$  exhibit a fair agreement with experimental data.

## RESUME

Le travail présenté ici correspond à une approche numérique du problème d'échantillonnage des particules à travers une fente d'aspiration annulaire. L'étude a été menée pour quatre configurations, en combinant deux valeurs de la vitesse de l'air extérieur ( $W = 1$  et  $3 \text{ m s}^{-1}$ ) à deux valeurs de la vitesse d'aspiration au niveau de la fente ( $U_s = 0,55$  et  $0,92 \text{ m s}^{-1}$ ). L'écoulement et les trajectoires des particules au voisinage et à l'intérieur de la fente annulaire ont été étudiés en utilisant un code de calcul basé sur la différence des volumes finis.

Le problème numérique a été résolu en trois dimensions, en utilisant une solution adaptée à un maillage tétraédrique non structuré. L'écoulement a été modélisé en résolvant les équations de Navier-Stokes, couplées au modèle de turbulence standard k- $\epsilon$ . Les trajectoires de particules ont été déterminées selon une approche Lagrangienne, par intégration des équations de transport des particules en tenant compte des forces de traînée et de gravité. Le rebond à la surface de l'échantillonneur a été étudié, en considérant la collision entre la particule et la paroi comme un choc élastique. Le calcul de l'efficacité d'aspiration en fonction du diamètre aérodynamique des particules a été établi à partir de la méthode des trajectoires limites des particules.

L'écoulement général à l'approche du corps de l'échantillonneur est divergent. La vitesse de l'air à l'intérieur de la fente annulaire est égale à la somme algébrique des vecteurs de la vitesse d'aspiration et de celle de l'air extérieur. L'ensemble des points de l'espace, pour lesquels la vitesse est nulle, est situé à l'intérieur de la fente annulaire. Leur position est une fonction du rapport des vitesses  $R = W/U_s$ . L'efficacité d'aspiration pour une vitesse de vent extérieur de  $3 \text{ m s}^{-1}$  n'a pas pu être calculée. Dans ces conditions d'écoulement, les particules traversent la fente annulaire sans être perturbées par le processus d'aspiration, ou bien s'impactent sur les parois internes, rendant difficile la détermination des trajectoires limites de particule. Les résultats d'efficacité d'aspiration pour  $W = 1 \text{ m s}^{-1}$  sont en bon accord avec les données expérimentales.

## INTRODUCTION

Le mesurage de la pollution particulaire dans l'air des locaux de travail s'effectue généralement à l'aide de dispositifs de prélèvement, destinés à collecter des échantillons d'air ambiant. Le captage des particules à travers l'orifice ou la fente d'aspiration d'un échantillonneur dépend de divers facteurs physiques tels que la taille des particules, la vitesse d'aspiration au niveau de l'orifice ( $U_s$ ) et la vitesse de l'écoulement de l'air extérieur ( $W$ ). Dans le cadre d'une étude expérimentale, l'efficacité de captage d'un échantillonneur à fente annulaire a été mesurée dans un écoulement d'air horizontal, pour plusieurs configurations géométriques de la tête de prélèvement [1] et pour deux vitesses d'air extérieur ( $W = 1$  et  $3 \text{ m s}^{-1}$ ). À l'aide d'une approche numérique, on se propose de déterminer l'écoulement et les trajectoires des particules au voisinage et à l'intérieur de l'échantillonneur à fente annulaire opérant dans un écoulement horizontal turbulent. L'étude a été menée pour une géométrie donnée de l'appareil de prélèvement, en combinant deux valeurs de la vitesse de l'air extérieur ( $W = 1$  et  $3 \text{ m s}^{-1}$ ) à deux valeurs de la vitesse d'aspiration ( $U_s = 0,55$  et  $0,92 \text{ m s}^{-1}$ ). Les résultats numériques de l'efficacité d'aspiration de l'échantillonneur ont été confrontés aux données expérimentales correspondantes.

## METHODE NUMERIQUE

Le problème numérique a été résolu à l'aide du code de calcul Fluent/Uns [2] où l'écoulement turbulent, considéré comme stationnaire et incompressible, a été simulé à l'aide du modèle standard  $k-\epsilon$  [3]. Les trajectoires des particules ont été calculées selon la formulation Lagrangienne, par intégration dans le temps de la résultante des forces appliquées à la particule. La traînée dynamique a été prise en compte dans le calcul des trajectoires des particules à l'aide de la relation de Morsi et Alexander [4]. Le rebond des particules à la surface externe de l'échantillonneur a été étudié en affectant à la paroi un coefficient de restitution de la conservation du moment de la particule après collision. Un coefficient de restitution égal à l'unité implique que le choc entre la particule et la paroi soit élastique.

Le problème a été résolu en trois dimensions, en utilisant une solution adaptée à un maillage triangulaire/ tétraédrique non structuré. Le maillage, constitué de 13426 nœuds est illustré sur la figure 1 suivant une coupe verticale du domaine. La densité de mailles est plus importante dans la région proche de l'échantillonneur où les gradients des vecteurs de la vitesse sont supposés importants. Le domaine est constitué d'une entrée et de deux sorties. La vitesse de l'air extérieur  $W$  est imposée uniforme sur la section d'entrée. La turbulence est simulée en introduisant les valeurs de deux grandeurs caractéristiques : une intensité de turbulence de 6 % et une échelle des longueurs de 0,6 cm. Ces valeurs correspondent à celles déterminées expérimentalement par Witschger *et al.* [5] dans le tunnel aéraulique. La vitesse d'aspiration  $U_i$  de l'échantillonneur à fente annulaire est imposée uniforme sur la section de sortie du conduit d'aspiration vertical. Sa valeur est ajustée de manière à obtenir la vitesse d'aspiration ( $U_s$ ) désirée au niveau de la fente annulaire. La pression atmosphérique est appliquée à la sortie du domaine.

## RESULTATS ET DISCUSSION

### 1. Composantes des vitesses

La figure 2 montre la composante horizontale de la vitesse de l'air ( $v_y$ ), calculée pour les quatre configurations étudiées, le long de l'axe  $y$ . Cet axe est parallèle à la direction de l'écoulement et passe à mi-hauteur de la fente annulaire. Les lignes en pointillées, tracées à  $\pm 15 \text{ mm}$  de part et d'autre de l'axe  $y$ , délimitent les bords externes de la fente d'aspiration. La

position du conduit d'aspiration vertical à l'intérieur de l'échantillonneur est symbolisée par  $D_i$ , le diamètre interne de l'orifice circulaire. L'écoulement à l'approche de la tête de prélèvement est caractérisé par une décélération de la vitesse horizontale, particulièrement observée pour  $W = 3 \text{ m s}^{-1}$ , puis une accélération quelques millimètres en amont de la fente annulaire. La valeur de la composante horizontale de la vitesse atteinte au niveau de la fente d'aspiration est égale approximativement à la somme algébrique de la vitesse de l'écoulement  $W$  et de celle de l'aspiration  $U_s$ . Les points de l'espace pour lesquels la vitesse est nulle, observés entre l'axe de symétrie du capteur et le bord arrière droit de la fente, sont indiqués par des flèches sur la figure 2. La position de cette zone de stagnation est dépendante de l'amplitude des vitesses  $W$  et  $U_s$ . Lorsque le rapport des vitesses  $R$  ( $R = W/U_s$ ) diminue, la région de stagnation se rapproche du bord arrière droit de la fente d'aspiration annulaire, situé en aval de l'écoulement principal.

La composante verticale de la vitesse le long de l'axe  $y$  est représentée sur la figure 3. En amont de l'échantillonneur, les vitesses sont accélérées et dirigées vers le haut pour atteindre des valeurs maximales quelques millimètres en amont de la fente annulaire. Cette composante est directement proportionnelle à la vitesse de l'air extérieur et est indépendante de la vitesse d'aspiration. Elle est induite par la divergence de l'écoulement à l'approche du corps de l'échantillonneur, provoquée par la présence du conduit d'aspiration vertical. A l'intérieur de la fente annulaire, la composante verticale de la vitesse est nulle entre les deux disques horizontaux.

## 2. Turbulence

La turbulence, considérée comme isotrope dans le modèle standard  $k-\varepsilon$ , est évaluée selon deux quantités : l'énergie cinétique turbulente  $k$  et le taux de dissipation de cette énergie  $\varepsilon$ . L'énergie cinétique turbulente  $k$  par unité de masse, calculée pour les quatre configurations étudiées, est représentée le long de l'axe  $y$  sur la figure 4. Pour  $W = 3 \text{ m s}^{-1}$ , l'énergie cinétique turbulente commence à croître 15 mm en amont de la fente annulaire. Ce phénomène est directement lié à la composante verticale de la vitesse engendrée par la présence du corps de l'échantillonneur. Puis l'énergie cinétique turbulente s'intensifie considérablement quelques millimètres en amont de la fente annulaire. Cette ascension est proportionnelle à l'accélération des vitesses horizontales le long de l'axe  $y$ . A l'intérieur de la fente annulaire, l'énergie cinétique turbulente devient plus faible à cause de l'influence des parois internes, puis se stabilise au-dessus de l'orifice d'aspiration. Un pic est observé entre l'axe de symétrie de l'échantillonneur et le bord arrière droit du tube vertical, dont la hauteur dépend de l'amplitude de la vitesse d'aspiration et de celle de l'air extérieur.

## 3. Efficacité d'aspiration

Les trajectoires des particules ont été calculées à partir du champ moyen de l'écoulement. Le modèle stochastique, permettant de prendre en compte les fluctuations des vitesses du fluide sur le mouvement des particules, n'a pas été utilisé. En effet, il est légitime de supposer que l'efficacité d'aspiration calculée à partir des trajectoires limites des particules résulte de la position moyenne de ces trajectoires limites. Par ailleurs, Ingham *et al.* [6] montrent que l'effet des fluctuations des vitesses du fluide sur le mouvement des particules devient négligeable devant l'inertie, qui reste le phénomène prédominant sur l'efficacité d'aspiration.

L'efficacité d'aspiration est définie par le rapport de la concentration en aérosol capté ( $C_a$ ), correspondant aux particules ayant traversé la fente d'aspiration, à la concentration réelle de l'aérosol ambiant ( $C_0$ ). Le calcul de l'efficacité d'aspiration est fondé sur la détermination de la surface des trajectoires limites des particules, qui contient toutes les particules captées au niveau de la fente d'aspiration. La concentration  $C_0$  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  $W$ . La concentration  $C_a$  est déterminée à partir du nombre de particules traversant par unité de temps l'aire de section droite de la fente  $A_s$  à la vitesse d'aspiration  $U_s$ . Par conséquent, le calcul de l'efficacité d'aspiration s'effectue à l'aide de l'expression suivante :

$$E_a = \frac{A_0 \cdot W}{A_s \cdot U_s} \quad (1)$$

La difficulté de déterminer la position exacte de toutes les trajectoires limites des particules à l'approche de la fente d'aspiration annulaire nous a conduits à supposer que l'aire de section droite de la surface des trajectoires limites des particules  $A_0$  prend la forme approximative d'un rectangle. L'évaluation de l'aire  $A_0$  passe par la détermination de la largeur et de la longueur de ce rectangle, en traçant les trajectoires des particules suivant un axe vertical, puis horizontal. La figure 5 montre les trajectoires limites des particules dans un plan vertical, pour deux conditions limites à la paroi (avec et sans rebond des particules à la paroi). La distance entre ces deux trajectoires limites de particules, notée  $d_z$ , représente ainsi la largeur du rectangle. Le rebond des particules, observé sur les bords externes de la fente d'aspiration annulaire, tend à augmenter la distance  $d_z$ , et ainsi l'efficacité d'aspiration. Une fois le segment  $d_z$  évalué, nous cherchons à déterminer la distance qui sépare deux trajectoires limites des particules sur un axe horizontal. La figure 6 montre les trajectoires des particules dans un plan horizontal passant à mi-hauteur de la fente annulaire. La distance  $d_x$  entre deux trajectoires limites selon l'axe horizontal représente ici la longueur du rectangle.

L'efficacité d'aspiration pour une vitesse d'air extérieur de  $3 \text{ m s}^{-1}$  n'a pas pu être calculée. Comme le montre la figure 7, les particules s'impactent directement à la surface interne du disque supérieur de l'échantillonneur, ou traversent la fente annulaire sans être perturbées par le processus d'aspiration. Expérimentalement, aucun dépôt de particules à la surface interne du disque supérieur de l'échantillonneur n'a été mis en évidence. Les gradients de vitesse élevés à l'entrée de la fente annulaire font que les particules rebondissent sur les parois. Par ailleurs, l'effet de la turbulence sur le mouvement des particules à l'intérieur de l'échantillonneur n'a pas été quantifiée. Ces observations nous amènent à supposer que les trajectoires des particules à l'intérieur de la fente annulaire sont complexes et sans doute affectées par des effets secondaires tels que le rebond ou encore la turbulence. Pour ces raisons, il a été difficile de déterminer les trajectoires limites des particules nécessaires au calcul de l'efficacité d'aspiration.

Les données numériques de l'efficacité d'aspiration de l'échantillonneur à fente annulaire dans l'air en mouvement, obtenues pour  $W = 1 \text{ m s}^{-1}$  et les deux vitesses d'aspiration  $U_s$  étudiées ( $U_s = 0,55$  et  $0,92 \text{ m s}^{-1}$ ), sont représentées sur les figures 8 et 9 respectivement, et sont confrontées aux résultats expérimentaux. Bien que la détermination de l'aire de section droite de la surface des trajectoires limites des particules  $A_0$  ait été approximative, on voit que les résultats numériques sont en très bon accord avec les données expérimentales. L'efficacité d'aspiration décroît de manière linéaire avec l'augmentation de la taille des particules (Roger *et al.* [7]). Le rebond des particules, observé à la surface du bord externe de la fente annulaire, tend à augmenter l'efficacité d'aspiration de manière constante sur la gamme des diamètres de particules étudiée. Ces résultats nous permettent de confirmer que la prise en compte des fluctuations des vitesses sur le mouvement des particules n'est pas nécessaire pour évaluer l'efficacité d'aspiration. Il semble que l'inertie domine le processus de captage au niveau de la fente d'aspiration annulaire.



## CONCLUSION

L'étude numérique nous a permis de caractériser l'écoulement au voisinage et à l'intérieur de la fente d'aspiration annulaire et de déterminer les trajectoires des particules. Les résultats montrent que la divergence de l'écoulement et l'accélération des vitesses en amont de la fente annulaire ont une influence considérable sur l'efficacité d'aspiration. En effet, pour une vitesse d'air extérieur élevée ( $W = 3 \text{ ms}^{-1}$ ), elles occasionnent l'impaction des particules à l'intérieur de l'échantillonneur.

Une amélioration potentielle consiste à modifier la géométrie externe de l'échantillonneur afin de diminuer la composante verticale de la vitesse, principale cause de l'impaction des particules à l'intérieur de l'échantillonneur. La réduction du diamètre externe du conduit d'aspiration vertical permettra sans doute d'accéder à un résultat satisfaisant. En revanche, il semble difficile de pouvoir intervenir sur l'amplitude des vitesses horizontales, qui sont conditionnées par la vitesse de l'air extérieur et de la vitesse d'aspiration. Toutefois, les vitesses d'air rencontrées sur les lieux de travail sont généralement faibles, souvent inférieures à  $0,3 \text{ m s}^{-1}$  [8].

## REFERENCES

- [1] **Witschger, O., Fabriès, J.F., Görner, P. (1997)** Particle entry efficiency of an annular slot aerosol sampler. *J. Aerosol Sci.*, **28** (Suppl. 1), S679-S680.
- [2] **Fluent/Uns**, Computational Fluid Dynamics Software, Release 4.0, Fluent Inc., April 1996.
- [3] **Launder, B.E., Spalding, D.B. (1972)** Lectures in mathematical models of turbulence. Academic press, London, England.
- [4] **Morsi, S.A., Alexander, A.J. (1972)** An investigation of particle trajectories in two-phase flow system. *J. Fluid Mech.*, **55** (2), 193-208.
- [5] **Witschger, O., Wrobel, R., Fabriès, J.F., Görner, P., Renoux, A. (1997)** A new experimental wind tunnel facility for aerosol sampling investigations. *J. Aerosol Sci.*, **28** (5), 833-851.
- [6] **Ingham, D.B., Wen, X., Dombrowski, N., Fomeny, E.A. (1995)** Aspiration efficiency of thin-walled shallow-tapered sampler rear-facing the wind. *J. Aerosol Sci.*, **26** (6), 933-944.
- [7] **Roger, F., Fabriès, J.F., Görner, P., Wrobel, R., Renoux, A. (1999)** Numerical study of the behaviour of an annular aerosol sampling slot in laminar and turbulent flow. *J. Aerosol Sci.*, **30** (Suppl. 1), S899-S900.
- [8] **Baldwin, P.E.J., Maynard, A.D. (1998)** A survey of wind speeds in indoor workplaces. *Ann. occup. Hyg.*, **42** (5), 303-313.

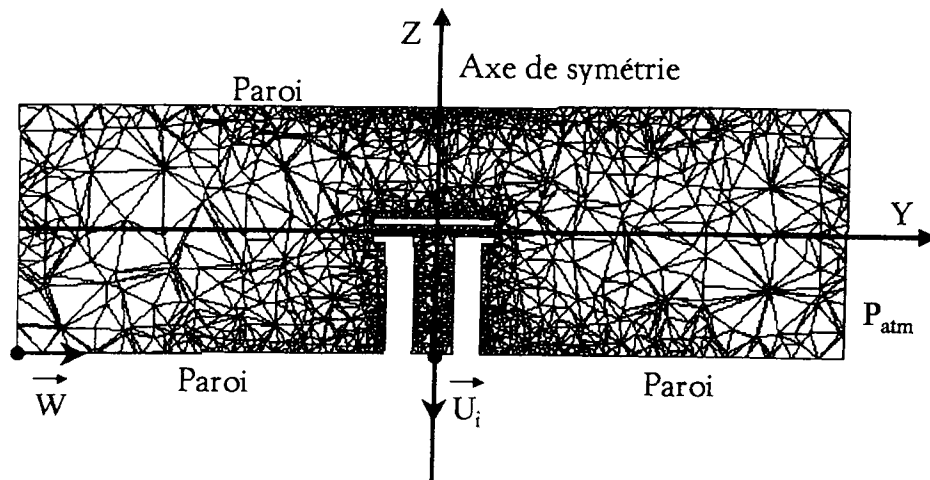


Figure 1 : Maillage non structuré à l'intérieur et à l'extérieur de la tête à fente annulaire ( $D_s = 30$  mm et  $h = 2,5$  mm) dans le plan YZ.

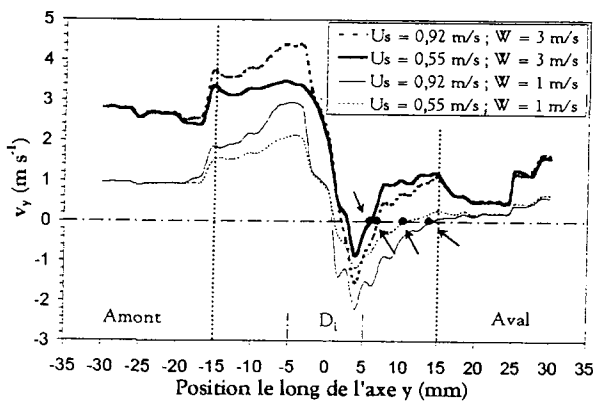


Figure 2 : Composante horizontale de la vitesse le long de l'axe y.

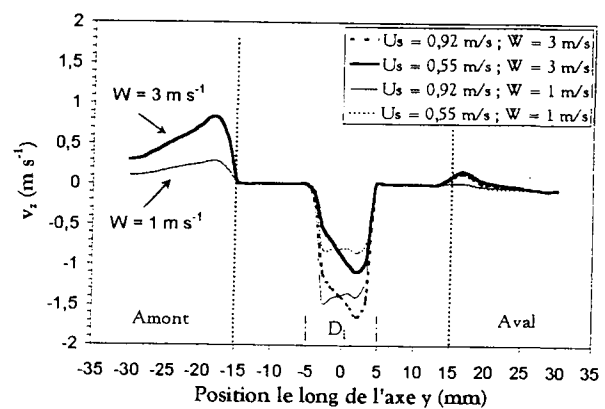


Figure 3 : Composante verticale de la vitesse le long de l'axe y.

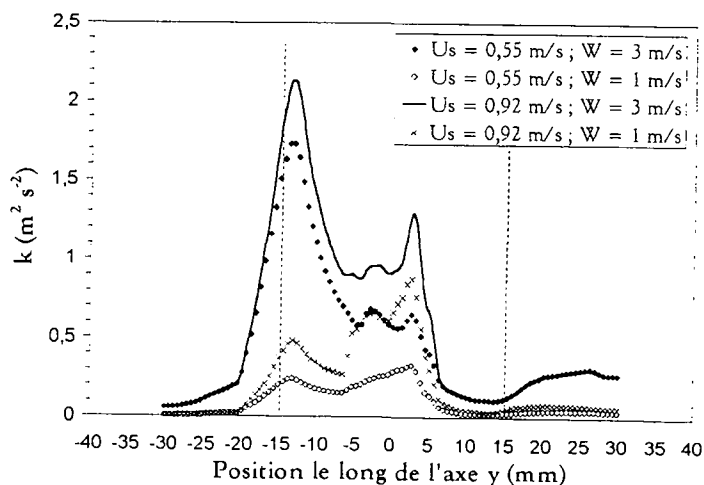
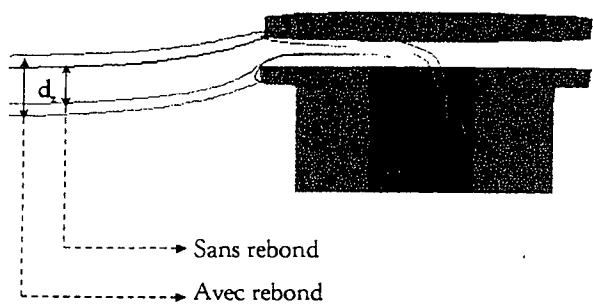
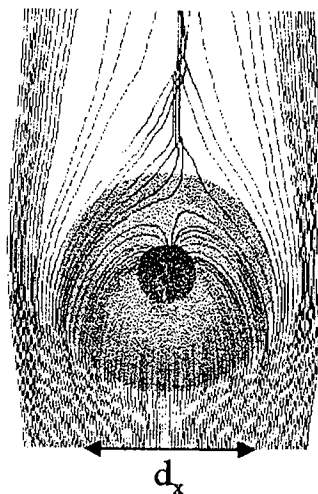


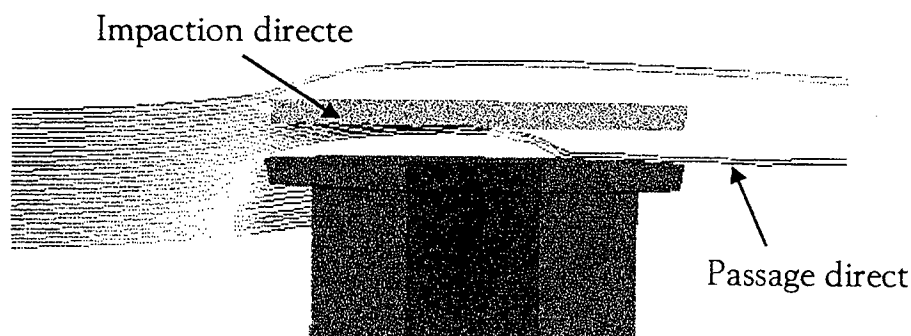
Figure 4 : Energie cinétique turbulente k le long de l'axe y.



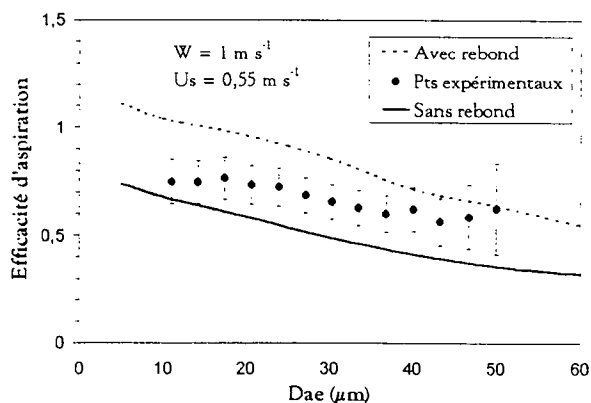
**Figure 5** : Trajectoires limites de particule de  $D_{ae} = 20 \mu\text{m}$  dans un plan vertical.  $W = 1 \text{ m s}^{-1}$  et  $U_s = 0,55 \text{ m s}^{-1}$ .



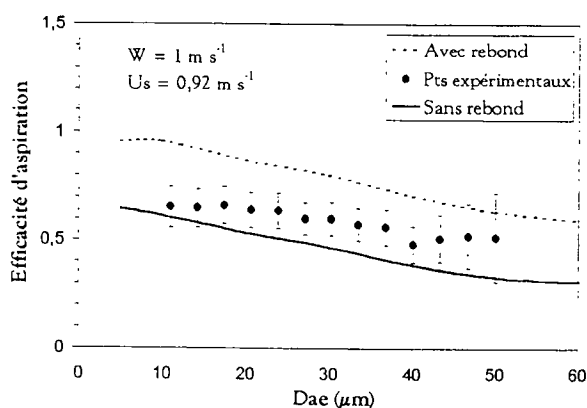
**Figure 6** : Trajectoires de particule de  $D_{ae} = 20 \mu\text{m}$  dans un plan horizontal.  $W = 1 \text{ m s}^{-1}$  et  $U_s = 0,55 \text{ m s}^{-1}$ .



**Figure 7** : Trajectoires des particules de  $D_{ae} = 30 \mu\text{m}$ .  $W = 3 \text{ m s}^{-1}$  et  $U_s = 0,55 \text{ m s}^{-1}$ .



**Figure 8** : Confrontation des données numériques et expérimentales.  $W = 1 \text{ m s}^{-1}$  et  $U_s = 0,55 \text{ m s}^{-1}$ .



**Figure 9** : Confrontation des données numériques et expérimentales.  $W = 1 \text{ m s}^{-1}$  et  $U_s = 0,92 \text{ m s}^{-1}$ .

# ECHANTILLONNAGE DES AEROSOLS EN AMBIANCE DE TRAVAIL : UNE NOUVELLE CHAMBRE EXPERIMENTALE

S.Fauvel et O.Witschger

Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN)  
Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols et du Confinement,  
DPEA/SERAC, CEA-Saclay, 91191 Gif sur Yvette Cedex  
sylvain.fauvel@ipsn.fr – olivier.witschger@ipsn.fr

## TITLE

A NEW EXPERIMENTAL FACILITY FOR STUDYING AEROSOL SAMPLING IN WORKPLACE ENVIRONMENTS

## ABSTRACT

The european council directive 96/29/EURATOM requires its implementation into national regulations. This directive lays down basic safety standards for the protection of the health of workers and the general public against the dangers arising from ionizing radiations. This directive allows to use aerosol characteristics (particle size distribution, airborne concentration, morphology and chemical composition) measured in workplace to assess the effective radiation dose of workers resulting from the intake by inhalation of airborne radionuclides.

Tests of performances of instruments used for the health-related sampling of particles in workplace are usually carried out in a wind tunnel or a calm air chamber. In these test conditions, instruments are exposed to uniform wind and steady homogenous aerosol. In a real workplace situation, these instruments are usually exposed to highly non-uniform airflows and local emissions of particles. Moreover, it is not clear how differences in airflow pattern, proximity of the localised contamination source, worker location or activity would affect the personal/static measurement ratio.

The objective of our experimental work is to investigate the relevant parameters that affect the aerosol characteristics in the microenvironment of a worker (including breathing zone) and in the workplace. The first part of that study was to design and built an experimental room CEPIA (french acronym for room for studying personal and area samplers). The ventilated chamber (volume 36 m<sup>3</sup>) is equipped with an air delivery system to insure different ventilation patterns and flowrates. The CEPIA chamber should offer possibilities for performing experiments in situations representing a workplace environment, with airflows and aerosol parameters well controlled and characterised.

## RESUME

La directive européenne n°96/29/EURATOM (Journal officiel des Communautés européennes, 1996) doit être transposée en une réglementation française au cours de l'année 2000. Cette directive fixe les normes de bases relatives à la protection sanitaire de la population et des travailleurs contre les dangers résultant des rayonnements ionisants. Cette directive prévoit notamment que l'estimation de la fraction de dose efficace pour un opérateur à son poste de travail, qui résulterait d'une irradiation interne par inhalation, puisse être déterminée à partir de résultats de mesures d'aérosols en ambiance de travail (concentration, distribution granulométrique, nature physico-chimique).

Jusqu'à présent, le développement et l'évaluation des performances des préleveurs d'aérosols sont effectués principalement dans des installations spécifiques (tunnel, cellule d'air calme...) où les caractéristiques de l'écoulement d'air et de l'aérosol d'essai sont stables et uniformes, et ainsi peu représentatives d'une zone de travail où la source de contamination est généralement localisée. Par ailleurs, il apparaît clairement le besoin de conduire des études sur l'influence des paramètres liés aux écoulements, à la source de contamination et à l'opérateur sur la représentativité d'un prélèvement individuel et d'un prélèvement d'ambiance.

L'objectif de notre étude est d'apporter des arguments scientifiques quant à la stratégie d'échantillonnage des aérosols aux postes de travail en vue de l'estimation de l'exposition d'un opérateur. On présente ici l'installation CEPIA (Chambre d'Etude sur les Préleveurs Individuels et d'Ambiance), qui a été conçue et réalisée dans notre laboratoire.

## Introduction

L'inhalation des aérosols et l'exposition qu'elle induit est la principale source potentielle de nuisances pour la santé des travailleurs et sa connaissance est donc d'un intérêt majeur pour les hygiénistes. En fait, c'est une source de désagréments pour la population toute entière, puisqu'on trouve des aérosols aussi bien dans les habitations, dans les lieux publics ou dans l'environnement que sur les lieux de travail. Le cadre de cette étude concerne plus particulièrement le milieu nucléaire, mais ce qui est décrit touche de nombreux autres domaines. La nature et l'importance de ces nuisances dépendent de combinaisons complexes de plusieurs facteurs, parmi lesquels nous pouvons noter pour ceux concernant plus directement l'aérosol :

- la distribution granulométrique (caractérisée par le diamètre aérodynamique médian en activité et l'écart-type géométrique), qui détermine de quelle façon l'aérosol a pénétré puis s'est déposé dans l'arbre respiratoire,
- la concentration (caractérisée par sa valeur mais également sa stabilité dans le temps et son homogénéité dans l'espace), qui détermine combien s'est déposé dans l'arbre respiratoire,
- la nature physico-chimique (caractérisée par la morphologie, la forme cristallographique, la composition chimique, la solubilité, les propriétés surfaciques...), qui détermine le devenir des particules dans l'organisme et la réponse biologique à leur présence.

Dans le domaine nucléaire, la fraction de la dose efficace engagée par inhalation d'un radionucléide est donnée pour un individu du groupe d'âge (g) par la relation :

$$E_{j, \text{inhalation}} = h(g)_{j, \text{inhalation}} \cdot J_{j, \text{inhalation}}$$

où :

$h(g)_{j, \text{inhalation}}$  est la dose efficace engagée par unité d'incorporation (DPUI) d'un radionucléide j inhalé par un individu du groupe d'âge (g), exprimée en Sievert/Becquerel,

$J_{j, \text{inhalation}}$  est l'activité incorporée par inhalation d'un radionucléide j, exprimée en Becquerel.

La dose efficace est la dose absorbée doublement pondérée par les facteurs de pondération du rayonnement et des organes, afin de tenir compte de la qualité du rayonnement et de la sensibilité au rayonnement de chaque organe.

La dose efficace engagée est l'intégrale dans le temps de la dose efficace par unité de temps. Ce temps d'intégration est implicitement de 50 ans (Perrin, 1999).

La nouvelle directive européenne EURATOM 96/29, applicable en France à partir de mai 2000, permet l'évaluation de la DPUI et de l'activité incorporée par inhalation à partir de mesures faites au poste de travail. En utilisant les modèles de dépôt et de transfert dans l'organisme qui sont décrits par la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR 66, 1994), on peut alors estimer la dose reçue par un opérateur à partir de ce qu'il a inhalé. La directive entraîne également une révision à la baisse des normes en vigueur, ce qui implique d'aboutir à une estimation qui soit réaliste plutôt que pessimiste. On voit donc tout l'intérêt de parvenir à une connaissance la plus fine possible de l'aérosol inhalé, à partir d'un prélèvement adapté.

L'objectif de notre étude est d'apporter des arguments scientifiques quant à la stratégie d'échantillonnage des aérosols aux postes de travail en vue d'estimer l'exposition d'un opérateur. On présente ici l'installation CEPIA (Chambre d'Etude sur les Préleveurs Individuels et d'Ambiance), qui a été conçue et réalisée dans notre laboratoire.

## Problématique de l'échantillonnage des aérosols en environnement de travail

Dans un cadre de surveillance des opérateurs vis à vis d'une contamination particulaire, un dispositif de prélèvement "idéal" devrait échantillonner selon l'une des trois fractions conventionnelles (inhalable, thoracique ou alvéolaire) adoptées par le Comité Européen de Normalisation (CEN, 1993), l'International Organization for Standardization (ISO, 1995), et l'American Conference of Governmental Industrial Hygienist (ACGIH, 1996). Le prélèvement "idéal" effectué est alors représentatif soit de ce qui a été inhalé par un opérateur, soit de la fraction qui pénètre dans la région thoracique, soit enfin de la fraction qui pénètre dans la région alvéolaire. Rappelons que les fractions thoracique et alvéolaire sont des sous-fractions de la fraction inhalable. Dans la pratique, l'échantillonnage est un phénomène physique complexe et de nombreux paramètres liés aux écoulements, à l'aérosol, au dispositif de prélèvement et à l'opérateur entrent en jeu. Ainsi, les performances des préleveurs s'écartent bien souvent des conventions d'échantillonnage qui ont été définies.

La Figure 1 illustre différents transferts de la contamination particulaire dans un environnement de travail à partir d'une source localisée vers les dispositifs de prélèvement, l'opérateur et le système de ventilation. Dans l'industrie nucléaire, deux types de surveillance sont utilisés, la surveillance individuelle et la surveillance à poste fixe.

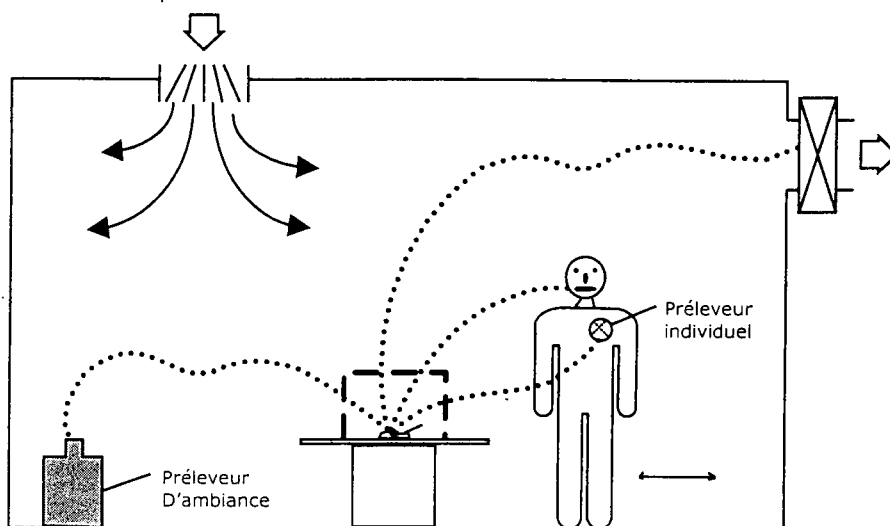


Figure 1 : Illustration de différents transferts de la contamination particulaire en suspension dans un environnement de travail. (Witschger, 1999)

La surveillance individuelle s'effectue à l'aide d'un dispositif de prélèvement individuel (ou personnel). Un tel dispositif est positionné directement sur l'opérateur dont on souhaite déterminer l'exposition et porté de façon continue durant le travail. Ce préleveur est placé le plus près possible du nez et de la bouche, dans la zone dite "respiratoire" de l'opérateur (Norme expérimentale XP X 43-298). Le prélèvement, effectué généralement à un débit faible et réglable (1 à 5 l/min), autorise dans la grande majorité des cas une mesure globale, c'est à dire de la concentration de l'aérosol (par opposition à une mesure de la granulométrie). Ce mode de surveillance nécessite un investissement important en coût et en gestion. De plus, la coopération de l'opérateur liée à la gêne du dispositif est requise. Néanmoins, la surveillance individuelle est considérée par la communauté des hygiénistes comme la seule véritablement fiable. Les raisons qui conduisent au choix de ce mode de surveillance sont basées sur :

- la variation des caractéristiques (granulométrie et concentration) de la contamination d'un point à un autre de l'environnement de travail,
- la mobilité de l'opérateur dans cet environnement,
- la représentativité du prélèvement individuel en regard de ce qui est réellement inhalé.

Les deux premiers points reposent sur des faits conduisant à la variation de l'exposition d'une personne en fonction de ses déplacements. Le dernier point relève du concept de proximité. Celui-ci fait l'hypothèse de l'uniformité des caractéristiques de la contamination dans la zone "respiratoire" et donc de l'équivalence des transferts entre la source et la bouche et/ou le nez de l'opérateur d'une part, et entre la source et l'orifice de captage du préleveur d'autre part. Les paramètres influant sur l'uniformité de l'aérosol font que cette hypothèse peut se révéler fautive et qu'il est inexact de considérer qu'un préleveur individuel échantillonne correctement ce que l'opérateur inhale simplement parce qu'il est situé dans la zone respiratoire.

La surveillance d'ambiance s'effectue à l'aide d'un dispositif de prélèvement d'ambiance (ou à poste fixe). Il est positionné dans le local de travail et fournit une mesure de la contamination que l'on suppose représentative de l'environnement du point de prélèvement. Cette mesure est soit de type globale, soit elle fournit des informations sur la granulométrie de l'aérosol.

L'avantage principal de ce type de dispositif est son débit de prélèvement élevé (jusqu'à 100 l/min) permettant une limite de détection plus basse qu'avec un préleveur individuel. L'inconvénient majeur réside dans la difficulté du choix de son emplacement pour assurer la surveillance individuelle du ou des opérateurs présents.

Les arguments mis en avant pour utiliser ce mode de surveillance concernant son coût moindre et une gestion simplifiée par rapport à l'emploi d'échantillonneurs individuels, parfois le fait que le volume d'air échantillonné soit plus important. Cependant il est inexact de considérer qu'un prélèvement à poste fixe conduit à un résultat qui soit représentatif de l'ensemble de l'environnement de travail simplement parce que le débit de prélèvement est élevé.

La Figure 2 montre, pour différents environnements de travail, des rapports K entre des mesures par prélèvement individuel et des mesures par prélèvement à poste fixe. A notre connaissance, ces études sont les seules dédiées spécifiquement à cette comparaison entre les deux types de prélèvement. La majorité sont des études de terrain (site minier, atelier de peinture, industrie nucléaire), mais il y a aussi deux études de laboratoire. Le graphe indique l'étendue des rapports et la valeur médiane. Un rapport supérieur à 1 indique que le prélèvement individuel donne une réponse supérieure à celle donnée par le prélèvement d'ambiance. L'observation de ce graphe montre qu'il n'existe pas de rapport universel entre un prélèvement individuel et un prélèvement d'ambiance. Mieux, au sein d'un même environnement, le rapport peut varier de deux ordres de grandeur.

On constate aussi que l'hypothèse souvent admise que le prélèvement individuel donne une réponse supérieure d'un facteur 3 à 10 au prélèvement à poste fixe est inexacte, ce facteur étant inférieur à l'unité dans de nombreuses situations.

Il est probable que l'inhomogénéité de l'environnement est une cause majeure de ces disparités.

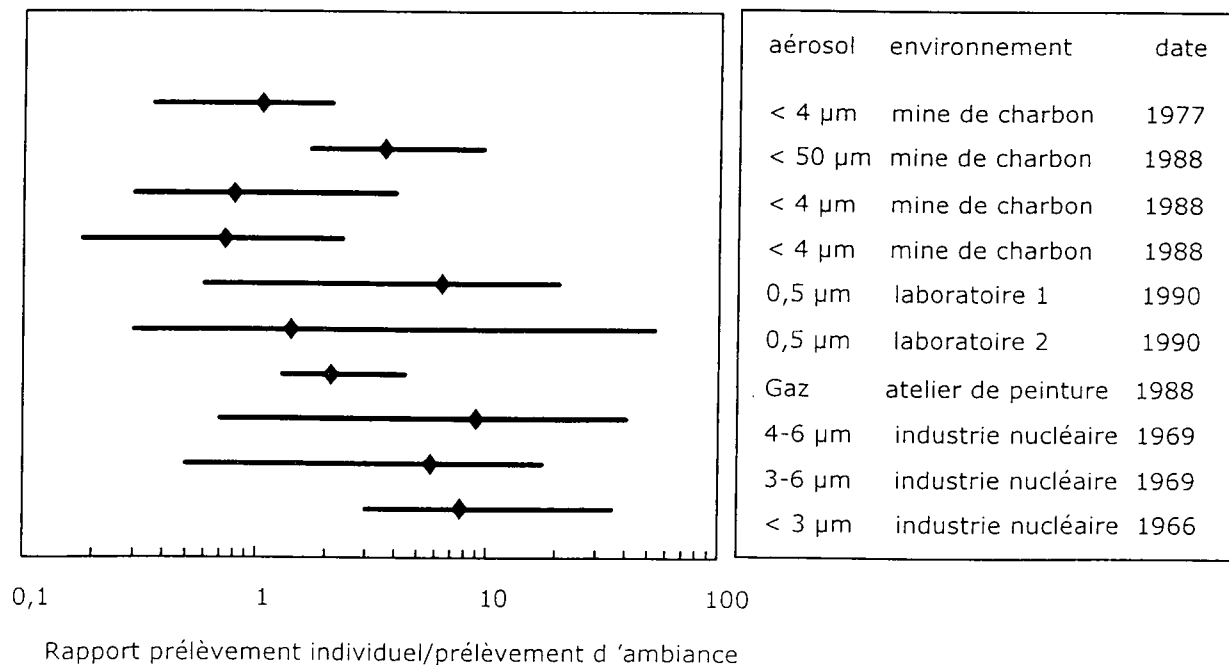


Figure 2 : Rapports entre des mesures effectuées par prélèvement individuel et par prélèvement à poste fixe relevés dans la littérature. (Witschger, 1999)

Un autre point concerne les difficultés liées aux performances réelles de chaque échantillonneur. La mesure de l'efficacité d'échantillonnage des préleveurs est réalisée dans des installations de type tunnel aéraulique. Celle-ci est mesurée en fonction de la granulométrie utilisée et de l'écoulement d'air. On peut ainsi comparer la courbe d'efficacité du dispositif testé aux conventions d'échantillonnage (inhalable, thoracique et alvéolaire) décrites par le CEN, l'ISO et l'ACGIH. Les conditions expérimentales de ces installations (flux d'air homogène et de vitesse assez élevée, aérosol mono-dispersé) sont très différentes des conditions réelles où une contamination localisée a lieu dans un environnement quelconque mais où la vitesse d'air est plutôt faible. La réponse des dispositifs de prélèvement variera donc entre les conditions dans lesquelles s'effectuent les essais de performances et les conditions réelles d'utilisation. Des expérimentations ont eu lieu pour tester sur le terrain des préleveurs en conditions réelles, mais bien souvent les paramètres environnementaux influents n'ont pas été suffisamment caractérisés, parce que difficilement maîtrisables. Si ces études in situ restent nécessaires pour une validation sur le terrain du mode de surveillance à appliquer, il apparaît clairement le besoin d'y associer une étude en laboratoire à caractère plus analytique mais restant proche d'un cas réel. C'est pourquoi nous avons conçu et réalisé une installation représentative d'un environnement de travail dont les paramètres environnementaux (ventilation, flux d'air) et de contamination particulaire (aérosols poly-dispersés) sont maîtrisés, afin d'y tester entre autres l'efficacité des différents appareils en conditions proches de la réalité des lieux de travail.

### **Description de l'installation expérimentale CEPIA**

L'installation expérimentale CEPIA (Chambre d'Etude des Préleveurs Individuels et d'Ambiance) représentée sur la Figure 3 est implantée à l'intérieur de notre laboratoire. C'est un volume étanche de 36 m<sup>3</sup> dont les dimensions (longueur 4m x largeur 3m x hauteur 3m ), imposées par l'espace disponible, en font une pièce représentative d'un environnement de travail classique. Les cloisons et le plafond sont constitués de panneaux double peau en tôle galvanisée, d'épaisseur 80 mm, remplis de mousse rigide de polyuréthane. Cette structure permet un montage et un démontage aisés, une étanchéité de classe B et une faible sensibilité de l'installation aux variations thermiques extérieures. La chambre est surélevée pour un passage aisé du câblage de l'instrumentation dans des fourreaux pré-installés pour ne pas dégrader l'étanchéité.

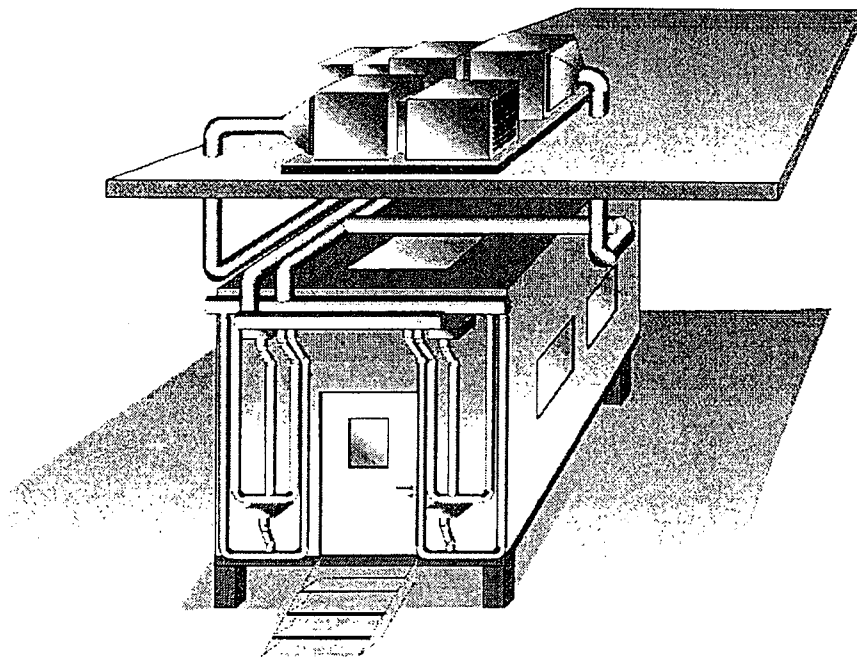


Figure 3 : Vue d'ensemble de l'installation CEPIA (Chambre d'Etude sur les Préleveurs Individuels et d'Ambiance) implantée dans le laboratoire.



L'installation CEPIA est munie d'une ventilation modulable, permettant plusieurs types de configurations grâce à huit bouches mixtes fonctionnant aussi bien en soufflage qu'en extraction. Cette ventilation est assurée par deux ventilateurs (ROSENBERG, EHAD 225.2) à débit variable (0 à 450 m<sup>3</sup>/h). Un filtre (CAMFIL, SOFILAIR) de très haute efficacité (H13) protégé par un préfiltre (CAMFIL, CAMPLIS GDA PG) placés en aval du ventilateur de soufflage assurent que l'air introduit dans l'installation est exempt de particules. L'environnement est protégé par un filtre (CAMFIL, OPAKFIL) d'efficacité F7, situé derrière le ventilateur d'extraction.

Les ventilateurs de soufflage et d'extraction sont situés sur le toit du laboratoire pour un gain de place. Toutefois, l'air insufflé dans CEPIA est prélevé dans le laboratoire qui est climatisé.

Le réseau de gaines est constitué de deux gaines principales, une pour le soufflage et une pour l'extraction, et de gaines secondaires. Les gaines secondaires relient les gaines principales aux huit bouches mixtes. Les huit bouches sont réparties de part et d'autre de l'installation, de manière à obtenir une symétrie (verticale et horizontale) dans leur emplacement. Cette option a été choisie afin de faciliter la modélisation ultérieure des conditions aérauliques. Les bouches basses sont situées à 55 cm du sol, les bouches hautes à 40 cm du plafond. La distance inter-bouche est de 2 m. Une bouche supplémentaire de soufflage a été installée sur le plafond de l'installation. Toutes ces bouches sont de formes rectangulaires (longueur 30 cm X largeur 10 cm) et sont équipées d'ailettes réglables horizontalement et verticalement. Ce système à double déflexion permet une variation de la portée et de la chute du jet d'air.

Grâce à un volet d'isolement étanche (STRULIK, VGE) placé sur chaque gaine secondaire, on peut décider bouche par bouche de sa fonction, en soufflage, en extraction ou inopérante. Différents types de ventilation sont ainsi réalisables dans CEPIA (soufflage haut-extraction basse, soufflage bas-extraction haute, soufflage d'un côté-extraction de l'autre ...), en gardant la liberté du nombre de bouches utilisées.

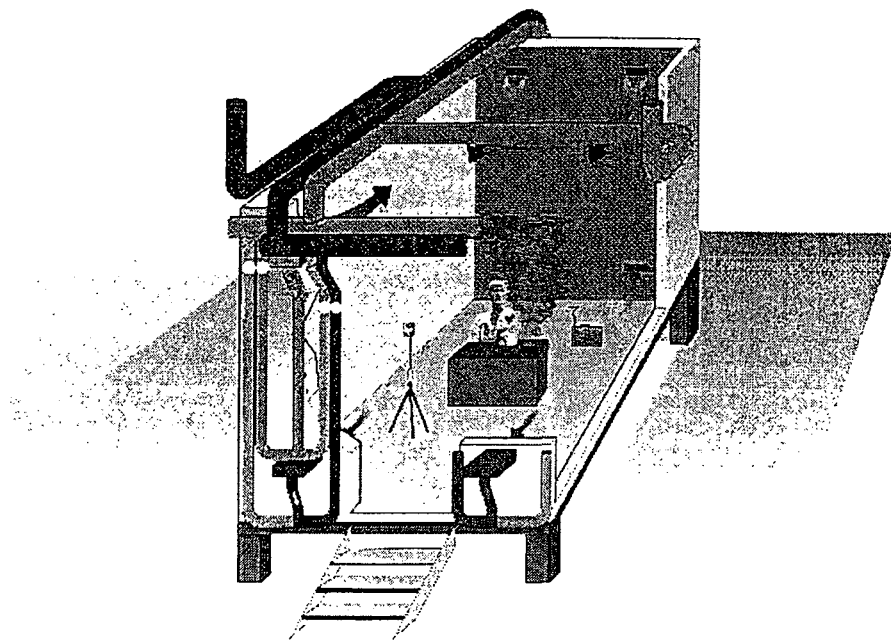


Figure 4 : Représentation schématique d'une expérience en ligne dans l'installation expérimentale CEPIA (configuration soufflage haut-extraction basse).

Chaque gaine secondaire est munie d'un régulateur de débit de type IRIS associé à un manomètre afin d'équilibrer et de contrôler les débits. Chaque gaine (principale et secondaire) est équipée de deux points de mesure de vitesse placés à 90° pour exploration du champ de vitesse sur les deux diamètres à l'aide d'un anémomètre à fil chaud. Les longueurs droites suffisantes existent de part et d'autre des points de mesures et des régulateurs de débit, ceci afin d'assurer un réglage et un mesurage satisfaisants.

Les paramètres aérauliques (vitesse d'air, turbulence) à l'intérieur de CEPIA sont mesurés à l'aide d'anémomètres omnidirectionnels à film chaud (DANTEC, 54T21) adaptés à l'environnement en air calme (quelques cm/s). L'hygrométrie et la température à l'intérieur de CEPIA sont mesurées.

A titre d'exemple, la Figure 4 montre l'installation CEPIA en mode de ventilation soufflage haut-extraction basse à l'aide des huit bouches rectangulaires. L'opérateur, ici simulé par un mannequin, est équipé d'un préleveur individuel. Un échantillonneur à poste fixe permet la comparaison entre les deux modes de prélèvement.

A l'heure actuelle, l'installation CEPIA est en phase de qualification aéraulique.

## Conclusion

Ce travail de recherche a pour objectif principal d'apporter des arguments scientifiques quant à la stratégie d'échantillonnage des aérosols aux postes de travail en vue de l'estimation de l'exposition d'un opérateur. Pour y répondre, il est apparu nécessaire de conduire une étude en laboratoire pour compléter celles menées sur le terrain. Pour ce faire, une installation expérimentale nommée CEPIA a été conçue et réalisée.

Les différentes études qui seront conduites dans CEPIA consisteront principalement à étudier les relations existant entre une mesure individuelle et une mesure d'ambiance en fonction des différents paramètres liés aux écoulement d'air, à la contamination particulaire et à l'opérateur. Ces études doivent prendre en compte les performances des dispositifs de prélèvement qui seront utilisés.

Par ailleurs, l'installation CEPIA peut être utilisée pour étudier et comparer les dispositifs de prélèvement individuels ou à poste fixe qui sont disponibles dans le commerce et utilisés sur site, et ceux en développement.

Enfin, l'installation CEPIA doit permettre de conduire des études sur l'inhalabilité des aérosols dans un environnement en air calme et pour une source de contamination localisée.

## Références

ACGIH (1996) Threshold Limit Values for Chemical Substances and Physical Agents and Biological Exposure Indices. *American Conference of Governmental Industrial Hygienist, ACGIH, Cincinnati, Ohio.*

CEN (1993) Workplaces atmospheres: Size fraction definitions for measurements of airborne particles in the workplace. *CEN standard EN 481, CEN, Bruxelles, Belgique.*

CIPR 66 (1994) Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection. *Annals of the ICRP, Volume 24, n°s 1-3, 1994.*

ISO (1995) Air quality-Particle size fraction definitions for health-related sampling. *International Organization for Standardization, ISO standard 7708, ISO, Geneve, Suisse.*

Journal officiel des Communautés européennes, (1996) Directive 96/29 Euratom fixant les normes de base relatives à la protection sanitaire de la population et des travailleurs contre les dangers résultant des rayonnements ionisants. *L159, 39e année, 29 juin 1996.*

Perrin, M.L. (1999) Directive européenne n°96/29/Euratom : conséquence sur l'analyse et l'expertise des calculs dosimétriques dans les rapports de sûreté. *Note Technique SEGR/SAER/99-12 - indice 1. Mars 1999.*

Witschger, O. (1999) Sampling of airborne dust in workplaces. 3<sup>rd</sup> European ALARA network. Managing Internal Exposure. *Federal German Radiation Protection Office. Oberschleissheim, Germany. 15-18 Novembre 1999. Publié dans actes.*

# ETUDE DE L'EFFICACITE D'UN GENERATEUR D'IONS A EFFET COURONNE. APPLICATION A LA CHARGE ET A LA NEUTRALISATION D'UN NUAGE D'AEROSOLS.

M. B. ATTOUI

Laboratoire de Physique des Aérosols, Transferts des Contaminations  
Université Paris XII 94010 Créteil  
[Attoui@univ-paris12.fr](mailto:Attoui@univ-paris12.fr)

## Résumé :

La connaissance de la charge électrique des aérosols est un élément essentiel en science des aérosols. Cette charge confère aux aérosols qui la portent des propriétés qui sont utilisées en filtration, en détection, en transport et échantillonnage, en granulométrie etc... Les aérosols acquièrent une charge électrique soit lors de leurs générations soit en présence de milieux ionisés. En métrologie, on utilise en général des sources radioactives pour produire des milieux ionisés. La réglementation de plus en plus sévère pour l'utilisation et la possession de sources radioactives nous a poussé à mettre au point un générateur d'ions par effet couronne. Cette étude décrit et donne les premiers résultats expérimentaux sur la charge électrique des aérosols obtenue avec ce générateur. En effet, nous donnons l'efficacité de charge des aérosols en fonction des tensions couronnes. Le signe, la forme des tensions et la pression d'utilisation de l'air à ioniser sont étudiés avec un aérosol de NaCl de 70 nm.

## 1/ Introduction

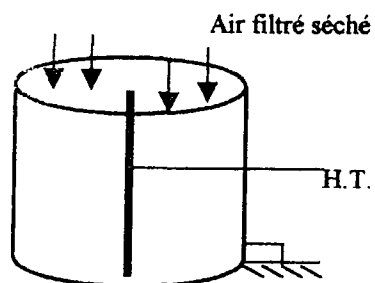
La charge ou la distribution de charges des aérosols est l'un des domaines divers de la science des aérosols. En effet un aérosol possède un comportement directement lié à la charge électrique (signe et quantité de charges) qu'il porte. Cette charge lui confère des propriétés électriques qui sont utilisées pour la détection (électromètre par exemple), la génération (par classification électrostatique entre autres), la captation (filtration électrostatique), le transport (pertes par dépôt électrostatique), granulométrie (mesure de la mobilité électrique dans un champ électrostatique), etc....

Dans la majorité des cas les aérosols générés sont électriquement très chargés. La charge portée par ces aérosols est cependant aléatoire. Elle n'est ni reproductible ni constante dans le temps. Suivant les besoins, l'aérosol généré doit être porté à un état de charge donné en général bas (jamais plus de 3 à 4 charges unitaires par particule) ou « neutralisé », c'est-à-dire porté à un état de charge électrique neutre. Pour éviter les pertes par dépôt électrostatique par exemple, l'aérosol est neutralisé. Pour une granulométrie d'aérosols submicroniques, l'aérosol est porté à l'équilibre électrique de Boltzman par exemple. Dans le cas de génération d'aérosols submicroniques par sélection électrostatique l'aérosol doit être à l'équilibre de Boltzman ou chargé (d'un signe donné) pour l'aérosol nanométrique notamment. Dans le domaine de l'échantillonnage et du transport des aérosols, il est préférable d'avoir un aérosol électriquement neutre pour limiter les pertes. En science des aérosols les méthodes les plus répandues utilisent des sources radioactives pour générer des ions bipolaires ou unipolaires. Ces méthodes sont relativement simples d'utilisation, efficaces, fidèles, fiables et relativement pas chères. Elles présentent cependant un certain nombre d'inconvénients. En effet, la réglementation est de plus en plus dure. De plus la quantité d'ions produite n'est pas suffisante pour charger des particules nanométriques.

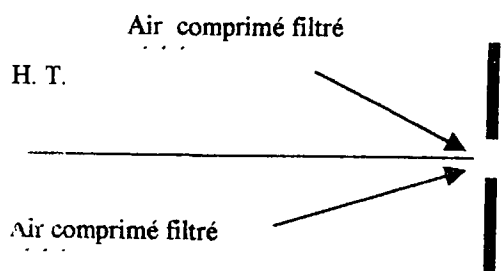
Pour contourner ces problèmes, nous avons travaillé au Laboratoire à la mise au point d'un générateur d'ions à effet couronne. La présente communication donne le principe retenu ainsi que l'étude sur le rendement du chargeur ainsi que son efficacité de neutralisation.

## 2/ Principe des générateurs à effet couronne:

Il existe deux dispositifs qui sont capables de produire des ions par effet couronne. Ils sont représentés par les figures 1 et 2. La figure 1 représente le dispositif du fil entouré d'un cylindre métallique. Le fil est porté à haute tension (autour de 6 kilovolts) et le cylindre est au potentiel zéro. De l'air filtré et séché passe dans le cylindre pour y être ionisé. Le premier chargeur de ce type a été mis au point par Hewitt en 1957. La figure 2 représente le cas d'une aiguille en face d'une plaque percée d'un trou. L'aiguille est portée à une haute tension pendant que la plaque est à la masse. Comme précédemment de l'air filtré séché passe dans l'orifice de la plaque. Contrairement au fil dans un cylindre, dans ce cas l'air doit être sous pression et la production d'ions n'est observable qu'à partir d'une certaine pression. Whitby a été le premier en 1961 à utiliser ce principe. Il lui a donné le nom de « jet sonique ».



*Figure 1*  
*Dispositif fil-cylindre utilisé pour produire des ions par effet couronne*

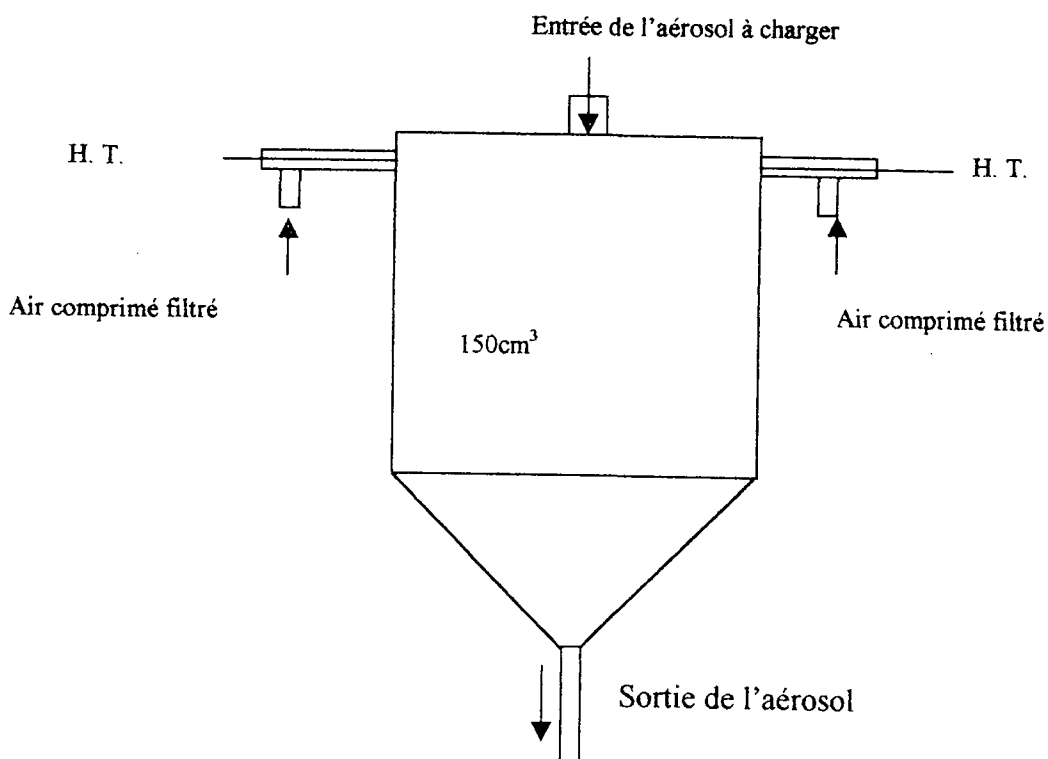


*Figure 2*  
*Dispositif aiguille plaque perforée*

Pour notre étude nous avons retenu la deuxième solution c'est à dire celle de Whitby.

### 3°/ Principe de réalisation de notre du chargeur.

Le schéma du chargeur est donné sur la figure 3. Nous avons retenu le principe du jet sonique de Whitby mais en utilisant deux aiguilles portées à haute tension. Ces aiguilles sont placées face à face et l'aérosol à charger passe entre les deux dans une chambre d'ionisation, où se mélangent les aérosols et les ions produits par effet couronne, de  $150\text{ cm}^3$



*Figure 3*  
*Schéma de principe du chargeur à jet sonique*

Le corps du chargeur est en aluminium poli. Les portes électrodes disposés sur les cotés du chargeur sont des tubes par lesquels arrivent l'air comprimé filtré. Ils sont vissés chacun sur son siège au centre duquel est disposé un orifice de 1 mm de diamètre. Des orifices calibrés de différents diamètres peuvent être disposés au fond de ce siège, afin de faire varier la pression de l'air comprimé tout en gardant le débit constant comme indiqué sur la figure 4. L'aiguille électrode est disposée au centre du tube grâce à des picots en téflon troués pour permettre le passage de l'air filtré. A l'extrémité de ce tube un bouchon en téflon assure l'étanchéité du tube et permet aussi ( par vissage dévissage) de faire varier la distance aiguille - orifice comme nous pouvons le voir sur la figure 5. Nous pouvons ainsi à l'aide de cet ingénieux dispositif faire varier la distance aiguille plaque ainsi que la pression de l'air comprimé qui passe dans l'orifice au cours de nos expériences de manière rapide et facile.

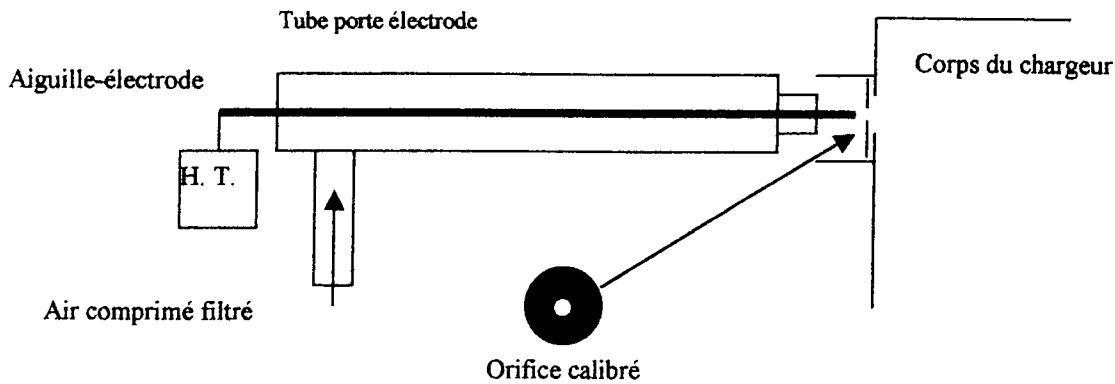


Figure - 4 -  
Dispositif permettant de faire varier la pression d'étude à l'aide de différents orifices calibrés

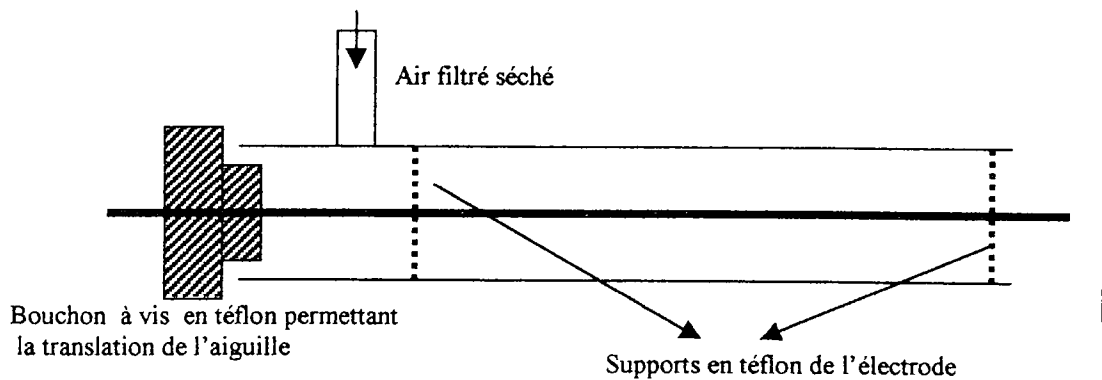
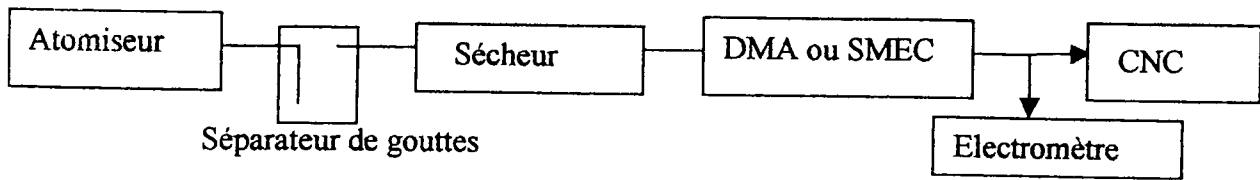


Figure 5  
Dispositif permettant de faire varier la distance aiguille - plaque

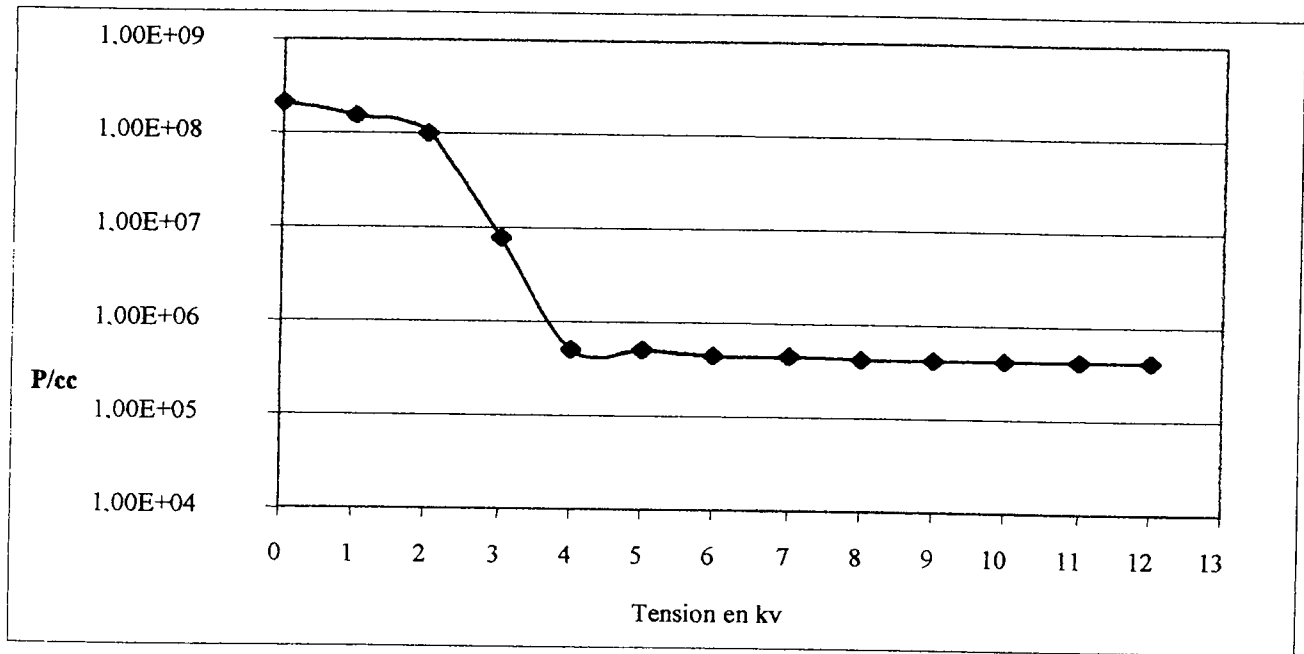
#### 4°/ Génération d'aérosols submicroniques électriquement neutres :

Nous commençons dans cette partie par décrire le dispositif qui nous permet de générer des aérosols neutres qui, par la suite nous servirons à tester notre chargeur. Le dispositif utilisé représenté par la figure 6, est constitué d'un atomiseur pneumatique d'aérosols type Collison couplé à un analyseur de mobilité électrique cylindrique type DMA (Knutson et Whitby 1975), et circulaire type SMEC (Mesbah 1994). Les analyseurs de mobilités électriques DMA sont utilisés en précipitateurs électrostatiques. En effet, l'entrée d'air filtré et la sortie d'air en excès sont fermées. Nous ne gardons que l'entrée et la sortie aérosol. Nous utilisons un aérosol de NaCl de diamètre centré sur 70 nm environ. L'aérosol produit à la sortie de l'atomiseur est envoyé dans une bouteille séparatrice de gouttes avant d'être séché. Le chargeur est testé avec la totalité du débit de l'atomiseur c'est à dire 3 l/mn auxquels viennent s'ajouter les débits des deux aiguilles qui sont chacun de 1l/mn. Soit au total un débit de 5 l/mn qui passe dans le précipitateur



*Figure 6*  
*Dispositif de génération d'aérosols submicroniques neutres*

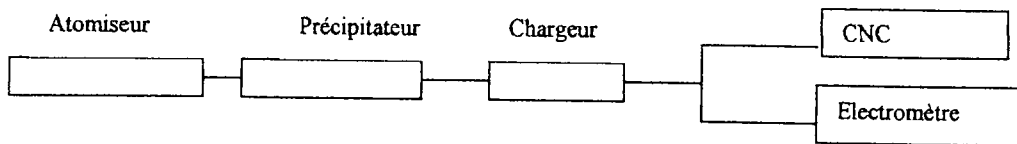
**6°/ Résultats des mesures en fonction de la tension appliquée aux bornes du précipitateur**



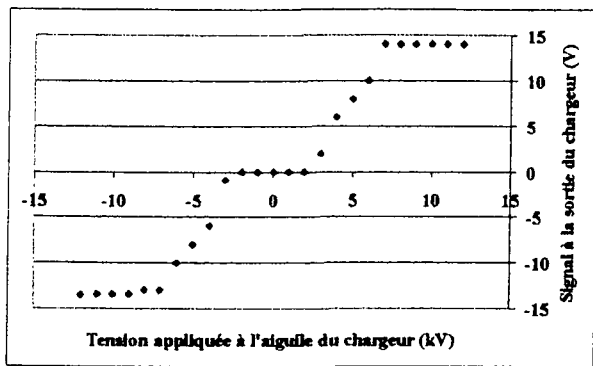
*Figure 6*  
*Variation de la concentration en fonction de la tension appliquée au précipitateur*

**7°/ Etude du générateur d'ions en fonction de la tension appliquée à l'électrode**

L'aérosol neutre sortant du précipitateur est envoyé dans le chargeur comme indiqué sur la figure 7. Le CNC permet de vérifier que la concentration de cet aérosol ne varie pas. L'électromètre indiquera une tension proportionnelle à la charge portée par l'aérosol qui le traverse. Le CNC aspire à 0.3 l/mn tandis que le reste du débit, ce est-à-dire 4.7 l/mn passe dans l'électromètre.



*Figure 7*  
*Dispositif expérimental de mesure de la charge électrique de l'aérosol à la sortie du chargeur*



**Figure 8**  
*Tension donnée par l'électromètre en fonction de la tension appliquée aux électrodes*

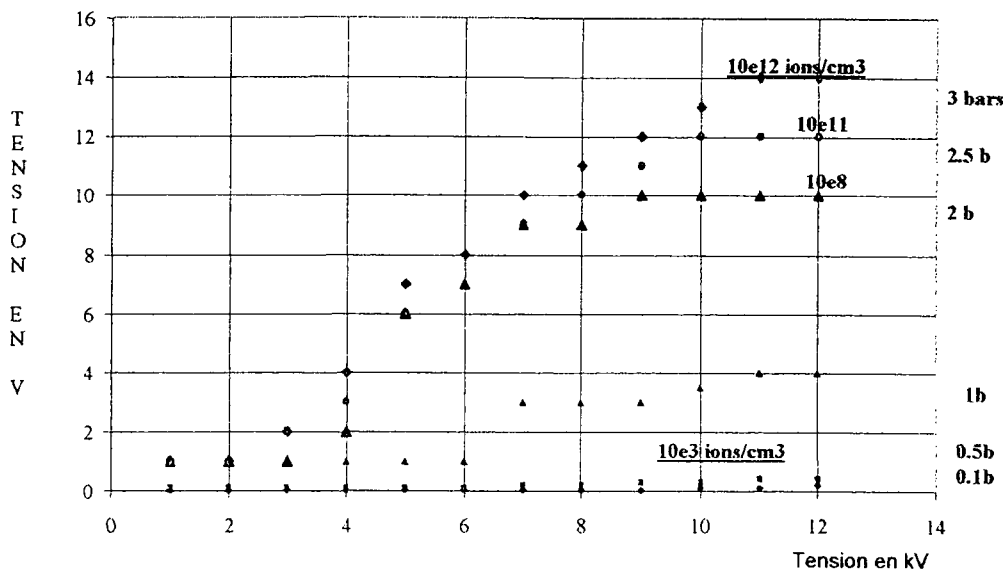
L'électromètre délivre un courant  $I$  donné par la relation suivante :

$I = neCQv$ .  $N$  est le nombre de charges portées par les particules,  $e$  est la charge élémentaire de l'électron,  $C$  est la concentration en particules par centimètre cube et  $Qv$  est le débit volumique qui traverse l'électromètre. Ce courant (très faible) à travers une résistance de forte valeur (quelque  $10^{11}$  Ohms se transforme en une tension indiquée par l'électromètre d'aérosols. Les électrodes du chargeur sont portées toutes les deux à la même tension continue variable de 0 à 15 kV positive ou négative. La figure 7 donne la valeur du signal donné par l'électromètre, à la sortie du chargeur en fonction de la tension appliquée aux électrodes. La distance plaque électrode est de 0.5 mm et la pression de l'air est de 2.5 bars. L'aérosol utilisé est du NaCl de 70 nm environ.

Nous pouvons remarquer que la charge des aérosols ne commence qu'à partir de 4 kV environ pour se stabiliser à partir de 7 kV quelque soit le signe de la haute tension. La tension obtenue correspondant au courant mesuré par l'électromètre atteint presque 15 Volts. Cela fait un courant de 150 pA.

### 8°/ Efficacité du chargeur en fonction de la pression

Le même dispositif expérimental (figure 7) nous permet de mesurer la quantité de charges acquise par les aérosols en fonction de la pression de l'air dans l'orifice de la plaque en face de l'électrode. Les résultats de mesure sont donnés dans la figure 9. Comme nous pouvons le voir le maximum du signal ( autour de 14 volts) est obtenu pour 3 bars . Cela correspond à quelque  $10^{12}$  ions par centimètre cube pour une tension relativement élevée qui dépasse 10 kV.



**Figure 9**  
*Efficacité du chargeur en fonction de la pression.*

L'utilisation de ce chargeur se fera dans la suite de nos travaux avec une tension de 7 kV et une pression de 3 bars maximum pour des besoins de sécurité du manipulateur.

#### 9°/ Efficacité du chargeur pour une tension sinusoïdale appliquée aux électrodes:

Nous n'avons pas obtenu de résultats probants pour la neutralisation d'aérosols avec notre tension sinusoïdale. En effet il est beaucoup plus difficile de générer une tension sinusoïdale d'amplitude élevée et de fréquence variable.

#### 10°/ Conclusion

Notre générateur d'aérosols par effet couronne fonctionne très bien comme chargeur d'aérosols dans un domaine de pressions et de tensions continues relativement raisonnables et sans grand danger pour l'utilisateur. Il présente comme tous les chargeurs à effet couronne un certain nombre d'inconvénients. En effet il est physiquement encombrant, il a besoin d'une source d'air comprimé ce qui a pour conséquence directe une dilution de la concentration d'aérosols à charger.

#### 11°/ Perspectives

Nous envisageons de mesurer l'efficacité de ce chargeur pour des diamètres d'aérosols nanométriques d'une part. D'autre part, nous étudierons les différents moyens d'augmenter l'efficacité de neutralisation soit en utilisant deux tensions continues de signes contraires, soit une tension sinusoïdale d'amplitude et de fréquence variable. D'autres types de tensions seront aussi étudiées telles les tensions carrées, triangulaires,...

#### Bibliographie

Hewitt, G. W. (1957) : The charging of Small Particles for Electrostatic Precipitation. *Trans. Amer. Inst. Elect. Engr.* 76 p 300-306

Knutson, E. O., Whitby, K., T. (1975) : Aerosol Classification by Electric Mobility : Apparatus, Theory and Application. *J. Aerosol Sci.* 6 p 443-451

Mesbah, B. (1994): Le Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire. Thèse de l'Université Paris 12. Rapport CEA R 5693

Whitby, K. T. (1961). "Generator of Producing High concentrations of Small Ions". *Rev. Sci. Instrum.* 32 p 351-355



# Diffusion de la lumière par des particules complexes : Imagerie aux grands angles.

S. Meunier-Guttin-Cluzel, T. Girasole, G. Gouesbet et G. Gréhan  
LESP,

UMR 6614-CORIA  
INSA et Université de Rouen,  
76 130 Mont Saint Aignan

3 janvier 2000

## Résumé

L'imagerie cohérente de particules complexes est abordée dans cet article par deux approches complémentaires (a) une approche rigoureuse, basée sur la théorie de Lorenz-Mie généralisée et l'intégrale de Huygens-Fresnel mais qui engendre des temps de calcul conséquents et (b) une approche plus intuitive, basée sur le tracé du parcours des rayons, en accord avec les lois de Descartes et de Fresnel, qui permet un calcul instantané. Les prédictions obtenues à partir de la théorie de Lorenz-Mie généralisée servent à quantifier les limites de l'approche par tracé de rayons.

## 1 Introduction

Les techniques granulométriques actuelles permettent une bonne caractérisation des

nuages constitués de particules sphériques homogènes. Cependant, dans de nombreuses situations industrielles, les milieux sont constitués de particules plus complexes (gouttes et/ou jets avec bulles de cavitation ou liquides transportant une phase solide comme les peintures).

Pouvoir caractériser de tels milieux est actuellement un défi. Pour relever ce défi, la démarche suivante est entreprise au LESP :

1. Modéliser les particules complexes comme des sphères avec des inclusions sphériques.

2. Etudier les champs internes en optique géométrique et dans le cadre de l'électromagnétisme.

3. Caractériser le champ interne par certaines de ces propriétés dans un cadre de mécanique hamiltonienne (diagrammes de KAM, recherche de résonances) .

4. Relier ces résonances à des signatures

observables en champ lointain (" image " de particules).

Dans ce cadre général, le but de cette présentation est la comparaison des images à  $90^\circ$  prédites pour des gouttes multicouches concentriques par une approche rigoureuse (théorie de Lorenz-Mie généralisée) et un modèle de tracé de rayons (optique géométrique). Une attention particulière sera dédiée aux dimensions du faisceau d'éclairage. Puis, le modèle de tracé de rayons étant validé, des configurations simulées pour des particules non concentriques seront abordées.

Cet article est organisé de la manière suivante. La section 2 présente les outils théoriques et numériques utilisés dans cet article: théorie de Lorenz-Mie généralisée associée à la formation d'images par intégrale de Huygens-Fresnel, et tracé de rayons dans le cadre de l'optique géométrique (lois de Descartes et Fresnel). La section 3 est dédiée à la présentation et à la discussion "d'images" pour des particules concentriques et non-concentriques, complètement ou partiellement éclairées. La section 4 est une conclusion où certaines perspectives sont soulignées.

## 2 Outils

### 2.1 GLMT

Les théories de Lorenz-Mie généralisées sont basées sur la résolution analytique des équations de Maxwell. Elles permettent de décrire avec une grande précision l'interaction entre un faisceau et une particule (champ in-

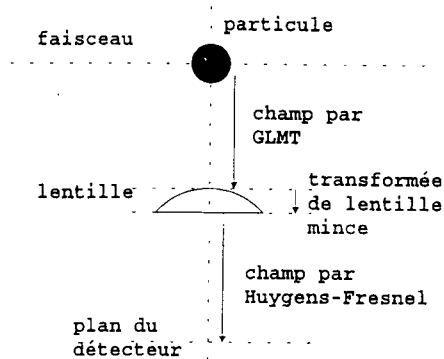


Figure 1: Schéma de principe de l'algorithme de calcul d'une image à partir de la GLMT

terne, champ externe et effets mécaniques). Cependant, les contraintes liées à la séparation des variables limitent les formes de particules solubles. En particulier les cas suivants peuvent être traités: la sphère homogène, la sphère multicouches concentriques, le cylindre circulaire infini, le cylindre elliptique infini, les agrégats de sphères, les sphères avec inclusions sphériques. De plus, des contraintes d'ordre numérique font que, pour des tailles caractéristiques supérieures à la dizaine de microns, les calculs ne sont possibles que pour la sphère uniforme, la sphère multicouches concentriques et le cylindre circulaire infini (à l'heure actuelle).

La figure 1 présente le schéma de calcul, relativement classique, utilisé dans cet article[1]. Il est basé sur la théorie de Lorenz-Mie Généralisée [2][3] [4], associée avec l'approximation localisée [5] pour calculer le champ diffusé incident sur la surface d'entrée de la lentille. La transformation de lentille

mince [6] est alors introduite pour exprimer le champ sur la surface de sortie de la lentille, en fonction du champ sur sa surface d'entrée, puis une intégrale de Huygens-Fresnel[7] permet de calculer le champ dans le plan du détecteur en fonction du champ sur la surface de sortie de la lentille. Pour calculer numériquement l'intégrale de Huygens-Fresnel, un schéma de Hopkins est utilisé [8]. Le code a été validé et largement exploité lorsque la particule diffusante est une sphère homogène [9][10]. Dans cet article, les prédictions par GLMT concerneront la sphère homogène et la sphère multicouches concentriques. Pour une particule de  $80 \mu\text{m}$ , un calcul complet (GLMT et Huygens-Fresnel) nécessite environ 2 heures de CPU sur Silicon Graphic O2000. Ces calculs sont utilisés comme référence pour discuter les prédictions obtenues par tracé de rayons.

## 2.2 Tracé de rayons.

Le principe d'une approche par tracé de rayons est simple (figure 2). Un ensemble de rayons se propageant en ligne droite impacte sur l'objet diffusant. A chaque interface, les lois de Snell-Descartes sont utilisées pour calculer la nouvelle direction de propagation (réflexion ou réfraction), et les lois (coefficients) de Fresnel pour calculer l'intensité relative de chaque rayon. Le nombre d'interactions avec un interface (ici l'interface la plus externe) est un paramètre de l'étude. Le rôle de la lentille dans la formation de l'image est simulée en ne conservant que les rayons qui quittent la particule diffusante dans l'angle solide défini par la lentille. La répartition d'intensité dans

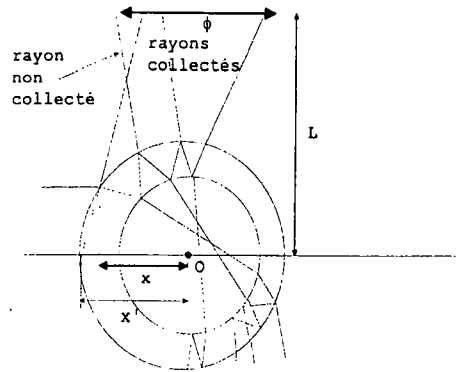


Figure 2: Principe de l'outil tracé de rayons pour le parcours dans la goutte et la formation d'images.

l'image est obtenue en supposant que, sans perte de généralité, l'image est d'une taille identique à celle de la particule (grandissement 1), et que l'intersection  $x'$  du rayon sortant avec l'axe des abscisses est assimilée au point image (voir figure 1). Dans cette approche, l'intensité associée à un interval  $x-x+dx$  est définie comme la somme de tous les rayons issus de cette direction, chacun de ces rayons ayant un poids résultant des produits de coefficients de Fresnel. Cette intensité est arbitraire et ne peut pas être directement comparée à celle de l'approche GLMT.

Ces approches permettent des calculs très rapides: une image pour 100 000 rayons en quelques secondes sur un PC.

## 3 Prédictions

Les deux approches présentées ci-dessus sont appliquées pour décrire l'image d'un objet de

section circulaire (sphère ou cylindre circulaire). La géométrie étudiée correspond à une lentille de focale 50 mm et d'un diamètre  $\Phi$  de 17.50 mm, située à  $90^\circ$  du faisceau d'éclairage et à une distance  $L$  de 100 mm de l'axe de ce dernier (angle de collection entre  $85^\circ$  et  $95^\circ$ ). La particule est supposée avoir un diamètre extérieur de  $80 \mu\text{m}$  et être située à 100 mm de la lentille. Le détecteur est supposé être linéaire et situé à 100 mm de la lentille.

### 3.1 Particules concentriques

#### 3.1.1 Eclairage uniforme

**GLMT.** La figure 3 présente la distribution d'intensité prédite sur le détecteur. L'objet diffusant a un diamètre de  $80 \mu\text{m}$ , il est supposé être homogène, constitué d'eau ( $m=1.331-0.0i$ ), être éclairé par un faisceau laser d'un diamètre de 20 mm (éclairage uniforme de l'objet) et d'une longueur d'onde de  $0.5 \mu\text{m}$ . Ainsi, l'angle limite de diffusion de la lumière purement réfractée ( $p=1$ ) étant de  $82.59^\circ$ , seule la lumière réfléchie sur la surface externe ou ayant subi plusieurs réflexions internes peut être collectée. Trois courbes sont tracées sur cette figure. Pour les deux courbes avec des symboles ( $\bullet$  et  $\star$ ), le détecteur linéaire est dans le plan défini par la direction principale du faisceau et l'axe optique. Le paramètre de l'étude, pour ces deux courbes, est la polarisation du faisceau d'éclairage qui est parallèle ( $\star$ ) ou perpendiculaire ( $\bullet$ ) au plan défini par l'axe du faisceau et l'axe de l'optique d'imagerie. Sur cette figure les deux lignes verticales matérialisent les limites géométriques de la particule.

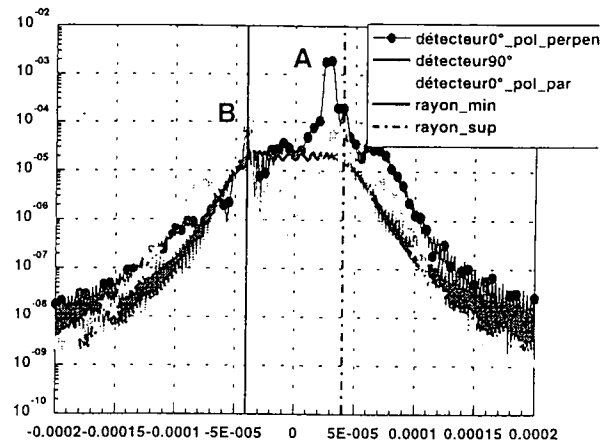


Figure 3: Sensibilité de l'image à la polarisation incidente et à l'orientation du détecteur.

Nous constatons que ces images se caractérisent par deux points brillants, appelés points chauds ("glare spots" en anglais[11]). L'un de ces points est créé par la lumière réfléchie à la surface de la particule (A) tandis que l'autre est créé par la lumière ayant voyagé dans la particule (B). Lorsque la polarisation du faisceau incident est perpendiculaire au plan défini par l'axe optique et l'axe du faisceau, la différence d'intensité entre ces deux spots est environ d'un facteur 35. Par contre, pour une polarisation parallèle, ces spots sont d'intensités comparables. Nous pouvons également souligner que la position du point A correspond à celle prédite par l'optique géométrique pour un rayon incident dévié de  $90^\circ$  par réflexion sur la surface externe de la particule ([12], p 204). La troisième courbe (continue) correspond à un détecteur tourné de  $90^\circ$ . Cette courbe met en évidence que le fond de l'image de l'objet (courbe continue

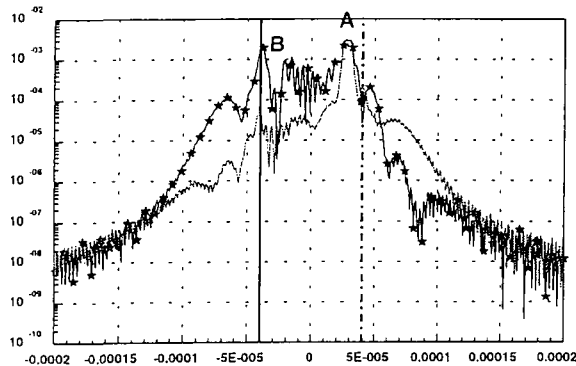


Figure 4: Comparaison entre l'image d'un objet plein et d'un objet creux.

sans oscillations) est environ 500 fois moins lumineux que le spot le plus brillant de réflexion.

La figure 4 compare les images prédites, pour un détecteur dans le plan formé par l'axe du faisceau et l'axe de l'optique d'imagerie, pour un objet homogène (identique à celui du paragraphe précédent) et un objet dont la section correspond à une couronne d'eau d'un diamètre externe de  $80 \mu\text{m}$  et d'un diamètre interne de  $60 \mu\text{m}$  (★). Une première remarque est que le fait d'avoir une inclusion accroît la quantité de lumière collectée. Les pics de réflexion externe et interne restent les plus brillants et inchangés en position. Cependant l'intensité du pic créé par la lumière ayant pénétré dans le diffuseur a été accrue d'un facteur 50 dans le cas de l'objet avec inclusion. Le fond moyen a, quand à lui, lui été accru d'un facteur 20 pour la particule avec inclusion.

La sensibilité de l'image à de faibles variations du diamètre interne est étudiée sur la

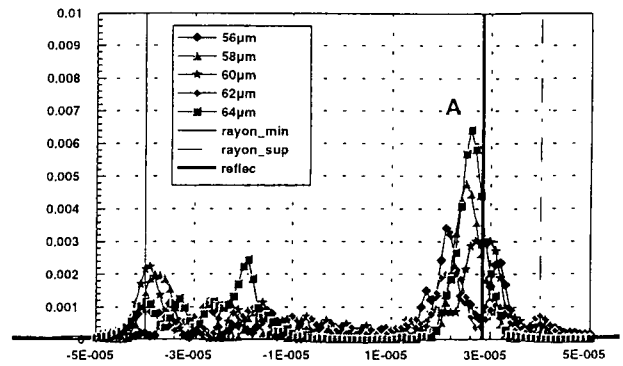


Figure 5: Sensibilité de l'image à la dimension de la cavité.

figure 5. Sur cette figure sont tracés les diagrammes correspondant à une particule d'un diamètre externe de  $80 \mu\text{m}$ , avec comme paramètre le diamètre interne, qui varie de  $56 \mu\text{m}$  à  $64 \mu\text{m}$  par pas de  $2 \mu\text{m}$ . Il convient de remarquer que l'échelle des intensités est linéaire pour cette figure. La discussion est d'abord focalisée sur la lumière réfléchie.

D'après l'optique géométrique, le pic de lumière réfléchi par la surface externe de la particule doit se situer à  $28.28 \mu\text{m}$  (trait épais continu). A une telle abscisse, pour une inclusion de  $56 \mu\text{m}$ , nous obtenons un minimum de lumière diffusée, entouré de deux pics de coordonnées ( $21.15 \mu\text{m}$ ,  $0.0034$ ) et ( $34.6 \mu\text{m}$ ,  $0.0023$ ). Pour une inclusion de  $58 \mu\text{m}$ , nous obtenons un seul pic de coordonnées ( $25.1$ ,  $0.0049$ ), de même pour une inclusion de  $60 \mu\text{m}$  ( $28.2$ ,  $0.003$ ). Pour une inclusion de  $62 \mu\text{m}$ , la lumière collectée est répartie presque uniformément, mais un pic est cependant détectable à ( $21.8$ ,  $0.002$ ). Pour une inclusion de  $64 \mu\text{m}$ , un pic important apparaît

à (26.4, 0.0065). Un tel comportement s'interprète comme la signature d'interférences (destructives et constructives) entre la lumière réfléchie sur la surface externe de l'objet et celle ayant pénétré dans l'objet.

Pour la lumière ayant exclusivement voyagé dans l'objet diffusant, les constatations suivantes sont faites:

- pour une inclusion de  $56 \mu\text{m}$ , trois pics sont présents de coordonnées  $(-34.2, 0.001)$ ,  $(-27, 0.001)$  et  $(-15.2, 0.001)$
- pour une inclusion de  $58 \mu\text{m}$ , un pic est présent de coordonnées  $(-38.2, 0.002)$
- pour une inclusion de  $60 \mu\text{m}$ , un pic est présent de coordonnées  $(-39.5, 0.002)$
- pour une inclusion de  $62 \mu\text{m}$ , pas de pic net
- pour une inclusion de  $64 \mu\text{m}$ , trois pics de coordonnées  $(-40, 0.0011)$ ,  $(-32.9, 0.0013)$  et  $(-19.2, 0.0025)$ .

Ici encore les effets d'interférences sont mis en évidence.

**Tracé de rayons.** Les configurations précédentes sont maintenant étudiées en utilisant l'outil tracé de rayons présenté en section 2.2. La figure 6 correspond à la figure 3. Il s'agit de l'étude de l'image d'une section circulaire pleine. Le paramètre est le type de coefficients de Fresnel utilisé pour calculer l'évolution d'intensité d'un rayon. Les pics de réflexion directe (A) et de lumière transmise (B) sont bien obtenus, à la même abscisse

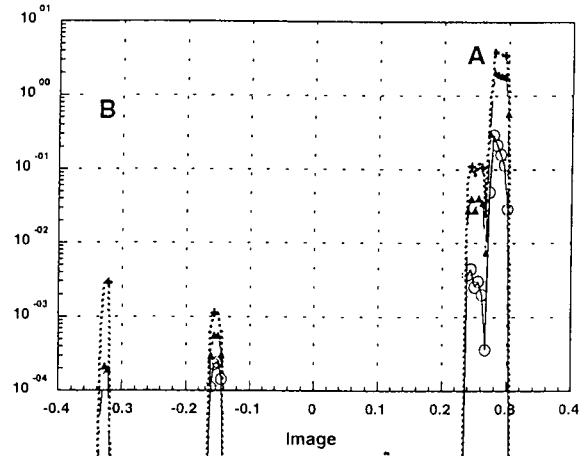


Figure 6: Sensibilité à la polarisation de l'image obtenue par tracé de rayons.

pour le pic de réflexion, tandis que le pic de lumière transmise est décalé vers le centre de la particule, donnant l'impression d'un objet de plus faible taille que par GLMT. La distance entre les pics A et B est maintenant de  $60 \mu\text{m}$ . De plus le rapport d'intensité entre les pics A et B (pour la polarisation perpendiculaire, par exemple) est d'environ 44, du même ordre de grandeur mais sensiblement plus important que la prédiction GLMT.

La figure 7 décrit le parcours des rayons participant à la création de l'image obtenue pour la polarisation perpendiculaire dans la figure 6. Cette image met en évidence la complexité des trajets des rayons participant à l'image. Un maximum de 7 réflexions sur l'interface externe est imposé.

La figure 8 correspond à la figure 5. Les images d'une section circulaire avec une inclusion centrée y sont tracées. Le paramètre est le diamètre de l'inclusion. Cette série

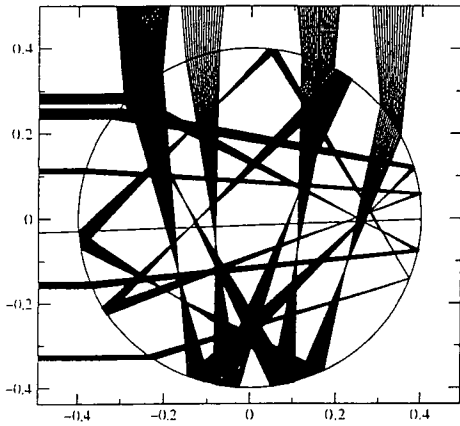


Figure 7: Visualisation du parcours des rayons collectés dans une section circulaire homogène pour la polarisation perpendiculaire.

d'images se caractérise par un pic indépendant du diamètre de l'inclusion (A), à la différence de la figure 5. La non prise en compte des interférences est à l'origine de ce désaccord entre les figures 5 et 8.

La figure 9 visualise le parcours des rayons collectés pour une particule avec une inclusion circulaire centrée. Elle est à comparer avec la figure 7. Le tracé est ici limité aux rayons ayant subi 7 impacts avec une interface quelconque (inclusion ou manteau). Ils convient de remarquer la superposition des rayons directement réfléchis par l'interface externe et l'interface interne (ordonnée d'impact 0.2-0.3). L'examen de la figure 9 permet d'attribuer le pic B de la figure 8 aux rayons d'ordonnée voisine de -0.2 qui subissent une réflexion dans l'inclusion, tandis que le pic voisin (B') correspond à des rayons (d'ordonnée d'impact -0.25) qui subissent une ré-

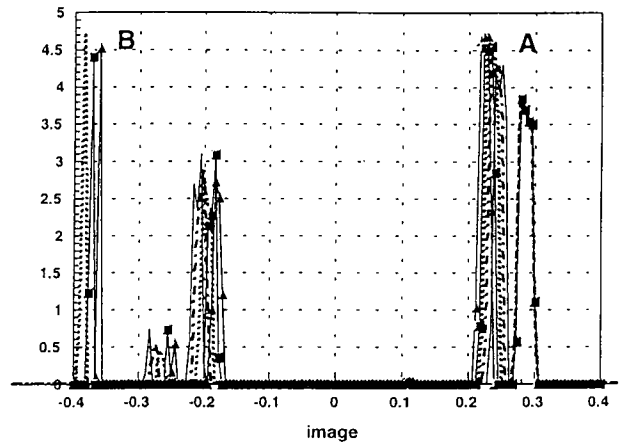


Figure 8: Sensibilité de l'image à la dimension de l'inclusion. Approche par tracé de rayons

flexion interne dans la particule incluante est uniquement des réfractions dans l'inclusions. Pour ces deux familles de rayons, à un accroissement du rayon de l'inclusion de 0.28 à 0.32  $\mu\text{m}$  correspondent des translations des pics B et B' de 2.6 et 4.2  $\mu\text{m}$ , respectivement

### 3.1.2 Eclairage partiel

**GLMT.** La figure 10 correspond au même objet diffusant que celui de la figure 3 mais pour un éclairage partiel. Ainsi, les trois courbes de la figure 10 correspondent à: un éclairage uniforme (identifié par des cercles pleins, courbe a identique à celle de la figure 3), un éclairage favorisant la lumière réfléchie (courbe b avec des triangles), et un éclairage favorisant la lumière voyageant dans la particule (courbe c avec des étoiles). L'éclairage partiel est réalisé par un faisceau laser gaus-

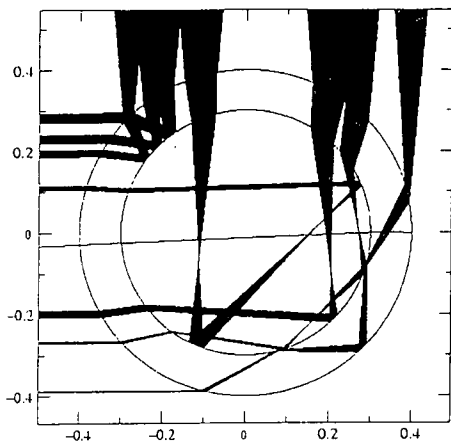


Figure 9: Visualisation du parcours des rayons collectés dans une section circulaire homogène avec une inclusion circulaire centrée.

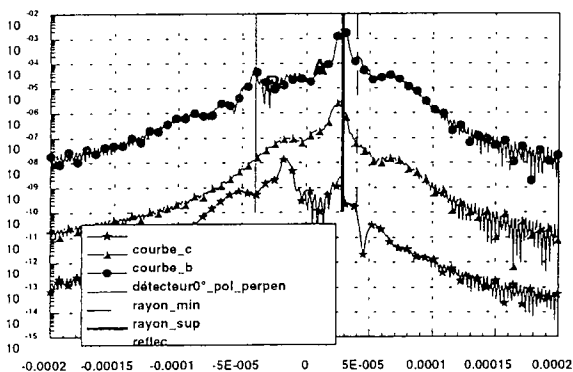


Figure 10: Sensibilité de l'image à un gradient d'éclairement de l'objet diffusant.

sien circulaire, d'un diamètre au col de  $8 \mu\text{m}$  et d'une longueur d'onde de  $0.5 \mu\text{m}$ . Le centre du col du faisceau laser est localisé dans la particule, sur l'axe optique, et à une distance de  $20 \mu\text{m}$  du centre de la particule. Pour favoriser la réflexion, l'excentrement du faisceau est réalisé vers la lentille, tandis que pour favoriser la lumière voyageant dans la particule l'excentrement est réalisé à l'opposé de la lentille.

Une première remarque concerne la grande variation de la quantité de lumière collectée. Une deuxième concerne la sensibilité de l'image aux conditions d'éclairement. Ainsi pour un éclairement uniforme deux pics sont visibles dont la distance correspond à 86% du diamètre de la particule étudiée. Lorsque la lumière réfléchie est favorisée, seul un pic de réflexion subsiste. Lorsque la lumière voyageant dans la particule est favorisée, pour ce paramètre d'impact du faisceau, le pic de lumière directement réfractée de la courbe (a) est devenu un minimum, courbe (c), et un nouveau pic, correspondant à de la lumière ayant subi plusieurs réflexions internes dans la particule apparaît. La distance entre ce pic et celui localisé sur la ligne matérialisant la réflexion correspond à 50% du diamètre de la particule diffusante. Cependant, il faut remarquer que le rapport entre les intensités des deux pics les plus intenses de la courbe (c) est d'environ 6 et que le rapport entre les pics localisés sur la droite de réflexion courbes, (b) et (c), est de 1100. De plus, le rapport des intensités incidentes sur la particule au paramètre d'impact correspondant à la réflexion est de  $10^{80}$ . Ainsi les pics visibles sur la courbe (c) ne correspon-



dent plus à de la lumière directement réfléchiée ou directement réfractée mais à de la lumière ayant subi plusieurs réflexions internes.

### 3.2 Particules non concentriques

Avec le tracé de rayons, il est possible d'étudier la sensibilité de l'image à un excentrement de l'inclusion (aux interférences près). Ainsi les figures 11 et 12 correspondent à une particule de rayon 0.4 avec une inclusion de rayon 0.3, où le paramètre d'étude est l'excentrement  $x$ , figure 11, et  $y$ , figure 12. Les excentrement étudiés sont de -0.02, -0.01, 0.01 et 0.02 pour ces deux figures. On constate que le pic de réflexion (A) est stable, comme prévisible à partir de la discussion de la figure 8, mais que le pic de lumière transmise (B) est sensible à un déplacement suivant  $x$  et insensible à un déplacement suivant  $y$ . En outre, pour l'excentrement suivant  $x$ , le déplacement du pic B, ainsi que du pic intermédiaire d'abscisse voisine de 0.1, est linéaire et du même ordre de grandeur que l'excentrement.

## 4 Conclusion

La formation de l'image d'une particule complexe, simulée comme une section circulaire avec une inclusion circulaire, a été analysée à l'aide de deux outils théoriques complémentaires: la théorie de Lorenz-Mie généralisée et l'optique géométrique. La théorie de Lorenz-Mie généralisée, combinée avec l'intégrale de Huygens-Fresnel pour décrire la formation de

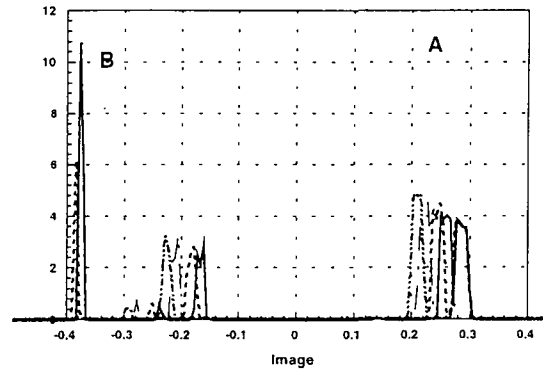


Figure 11: Sensibilité de l'image à un déplacement de l'inclusion suivant  $x$ .

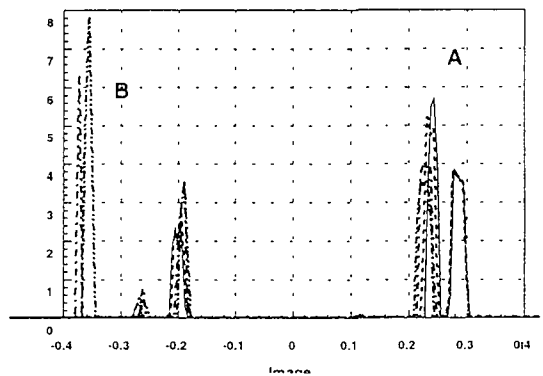


Figure 12: Sensibilité de l'image à un déplacement de l'inclusion suivant  $y$ .

l'image, permet de prendre en compte les interférences créées par les multiples réflexions internes et la taille de l'objet vis à vis de la longueur d'onde mais nécessite des temps de calcul conséquents et est limitée à des géométries sphériques parfaitement concentriques (à l'heure actuelle, mais voir Ref [13]). La méthode de tracé de rayons permet des calculs instantanés et la prise en compte des géométries de formes arbitraires mais ne peut pas prendre en compte la divergence du faisceau incident, la taille relative de l'objet vis à vis de la longueur d'onde ainsi que les interférences entre les différentes réflexions internes.

Les quelques résultats présentés dans cet article illustrent le fait que la méthode de tracé de rayons permet, pour des particules de géométries complexes, d'obtenir un squelette de la structure de diffusion relativement précis, mais que la non prise en compte des effets d'interférence peut conduire à de fortes erreurs sur l'intensité en certains points de l'image. Ainsi sur une image à  $90^\circ$  d'un jet liquide creux, une succession de points brillants peut s'interpréter comme une évolution continue des diamètres et non comme la présence d'une chaîne de bulles.

Cette validation des potentiels et limitations de notre code de tracé de rayons nous permet d'aborder l'étude des particules avec plusieurs inclusions, dans l'attente de codes numériques performants pour des agrégats et inclusions non centrées rigoureux [14][13].

## Références

- [1] S.A. Schaub, D.R. Alexander, and J.P. Barton. Theoretical model of laser imaging of small aerosols: application to aerosol sizing. *Appl. Optics*, 30(33): 4777-4784, 1991.
- [2] G. Gouesbet, B. Maheu, and G. Gréhan. Light scattering from a sphere arbitrarily located in a Gaussian beam, using a Bromwich formulation. *J. Opt. Soc. Amer. A.*, 5(9): 1427-1443, 1988.
- [3] F. Onofri, G. Gréhan, and G. Gouesbet. Electromagnetic scattering from a multilayered sphere located in an arbitrary beam. *Appl. Optics*, 34(30): 7113-7124, 1995.
- [4] Z.S. Wu, L.X. Guo, K.F. Ren, G. Gouesbet, and G. Gréhan. Improved algorithms for electromagnetic scattering of plane waves and shaped beams by multilayered spheres. *Applied Optics*, 36(21): 5188-5198, 1997.
- [5] G. Gouesbet, G. Gréhan, and B. Maheu. A localized interpretation to compute all the coefficients  $g_n^m$  in the generalized Lorenz-Mie theory. *J. Opt. Soc. Amer. A*, 7(6): 998-1007, 1990.
- [6] J.M. Goodman. *Introduction à l'optique de Fourier et à l'Holographie*. 1972. Traduit par C. Durou et J.P. Pérez de: Introduction to Fourier Optics, McGraw Hill Company, New York 1968.

- [7] J.J. Stamnes. *Wave in focal regions*. 1986.
- [8] H.H. Hopkins. The numerical evaluation of the frequency response of optical systems. *Proc. Phys. Soc. B.*, 70: 1002–1005, 1957.
- [9] K.F. Ren, D. Lebrun, C. Özkul, A. Kleitz, G. Gouesbet, and G. Gréhan. On the measurement of particles by imaging methods: theoretical and experimental aspects. *Part. Part. Syst. Character.*, 13: 156–164, 1996.
- [10] T. Girasole, K.F. Ren, D. Lebrun, S. Belaid, G. Gouesbet, and G. Gréhan. Generalized Lorenz-Mie theory: an application to imaging of off-axis and defocused droplets. To be published, *J. of visualization* (Visualization Society of Japan).
- [11] H.C. van de Hulst and R.T. Wang. Glare points. In D. Hirleman, editor, *Proceedings of the 2nd International Symposium on Optical Particle Sizing*, (see [Hir90]), pages 40–49. Arizona State University, 1990.
- [12] H.C. van de Hulst. *Light scattering by small particles*. Dover Publications, Inc, New York, 1957.
- [13] G. Gouesbet and G. Gréhan. Generalized Lorenz-Mie theory for a sphere with an eccentrically located spherical inclusion. To be published by *J. Mod. Optics*.
- [14] G. Gouesbet and G. Gréhan. Generalized Lorenz-Mie theory for assemblies of spheres and aggregates. *J. of Optics A: Pure and Applied Optics*, 1: 706–712, 1999.

# Interaction entre des pulses de lumière et des particules 3D

G. Gouesbet et G. Gréhan  
LESP,  
UMR 6614/CORIA,  
CNRS/INSA et Université de Rouen  
76 130 Mont saint Aignan

8 novembre 1999

## Résumé

Les théories de Lorenz-Mie généralisées, développées essentiellement au cours des 20 dernières années, décrivent, de manière analytique et rigoureuse, les interactions entre des faisceaux laser continus et des particules régulières permettant l'utilisation de la méthode de séparation des variables pour la résolution des équations de Maxwell.

Le développement des technologies de lasers pulsés (jusqu'à des pulses de l'ordre de quelques femtosecondes) ouvre de nouvelles possibilités pour la caractérisation de particules, et nécessite la construction de théories adaptées. Cet article présente une théorie de Lorenz-Mie généralisée générique pour le cas de particules éclairées par des pulses laser. Le mot générique signifie que la formulation ne dépend pas de la nature du diffuseur. Cette théorie est illustrée par l'étude d'un cas (di-

fuseur de Rayleigh) qui ne nécessite pas d'évaluations numériques.

## 1 Introduction

Au cours des vingt dernières années, plusieurs théories de Lorenz-Mie généralisées, décrivant de manière analytique et rigoureuse, les interactions entre des faisceaux laser continus et des particules régulières ont été développées et appliquées. Les particules considérées sont la sphère homogène, la sphère multicouches, l'ellipsoïde, le cylindre infini (à section circulaire ou elliptique), la sphère contenant une inclusion sphérique, et l'ensemble de sphères disjointes ou/et tangentes. Le lecteur peut se référer aux articles [1][2][3], entre autres. En particulier, l'article [1] est un article de revue contenant 350 références.

Le développement des technologies de lasers pulsés, en particulier des lasers femtosecondes, ouvre de nouvelles possibilités pour la caractérisation de particules [4][5][6]. Il nécessite la construction de nouvelles théories de Lorenz-Mie généralisées, un problème abordé dans la référence [7] pour des particules sphériques. Dans cet article, nous proposons une théorie de Lorenz-Mie généralisée pour des particules éclairées par des pulses laser sous une forme générique, c'est à dire ne dépendant pas de la forme de la particule. Naturellement, les applications les plus directes concerneront des particules pour lesquelles une théorie de Lorenz-Mie généralisée à laser continu existe déjà (cf le recensement fourni plus haut).

## 2 Formulation de la théorie

On considère une onde électromagnétique pulsée de la forme:

$$X_i(\mathbf{r}, \tau) = X_0 X_i^s(\mathbf{r}) \exp(2i\pi\nu_0\tau) g(\tau) \quad (1)$$

où  $X$  désigne  $E$  (champ électrique) ou  $H$  (champ magnétique),  $i$  est un indice de composante (dans un système de coordonnées adapté à la particule),  $\mathbf{r}$  désigne un point de l'espace,  $X_i^s(\mathbf{r})$  appelé le support spatial de l'onde décrit l'aspect laser,  $\nu_0$  est la fréquence porteuse,  $g(\tau)$  décrit l'enveloppe du pulse (fonction réelle) et:

$$\tau = t - z/c \quad (2)$$

où  $t$  est le temps,  $z$  l'axe de propagation du faisceau. et  $c$  la vitesse de la lumière. Cette

forme est générale et s'obtient en multipliant la description générale d'un faisceau électromagnétique continu [8] par l'enveloppe  $g(\tau)$ . L'onde se propage dans un milieu transparent et, pour commodité dans cet article, nous supposons que  $g(\tau)$  représente un pulse unique.

Nous supposons que nous pouvons introduire une paire de transformées de Fourier sous la forme:

$$G(\nu) = \int_{-\infty}^{+\infty} g(\tau) \exp(-2i\pi\nu\tau) d\tau \quad (3)$$

$$g(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} G(\nu) \exp(2i\pi\nu\tau) d\nu \quad (4)$$

où  $G(\nu)$  est le spectre de l'enveloppe du pulse. Remarquons que, par souci de concision, nous ne précisons pas nécessairement les conditions d'existence requises. En particulier, nous verrons dans la section 3 que, dans le cas le plus général, la transformée de Fourier doit être interprétée au sens de la théorie mathématique des distributions [9][10]. L'enveloppe  $g(\tau)$  étant réelle, on montre alors que  $G(\nu)$  est hermitien:

$$G(\nu) = G(-\nu)^* \quad (5)$$

En insérant (5) dans (4), on obtient:

$$g(\tau) = \int_0^{+\infty} G(\nu) \exp(2i\pi\nu\tau) d\nu + \int_0^{+\infty} G(\nu)^* \exp(-2i\pi\nu\tau) d\nu \quad (6)$$

A partir des équations (6) et (1), il vient:

$$\begin{aligned}
X_i(\mathbf{r}, \tau) = & X_0 X_i^s(\mathbf{r}) \\
& \left[ \int_0^{+\infty} G(\nu - \nu_0) \right. \\
& \exp(2i\pi\nu\tau) d\nu \\
& + \int_0^{+\infty} G(\nu + \nu_0)^* \\
& \left. \exp(-2i\pi\nu\tau) d\nu \right]
\end{aligned} \tag{7}$$

Cette équation montre que l'illumination pulsée peut être décomposée en une somme (intégrale) d'ondes électromagnétiques monochromatiques élémentaires. La réponse de chaque onde monochromatique est supposée connue (en principe "triviale" lorsqu'une théorie de Lorenz-Mie généralisée correspondante, pour laser continu, existe). La réponse du diffuseur à une excitation de la forme  $X_0 X_i^s(\mathbf{r}) \exp(\pm 2i\pi\nu\tau)$  peut alors être calculée et s'écrit  $X_i^{cw}(\mathbf{r}, \pm\nu) \exp(\pm 2i\pi\nu t)$ . La réponse du diffuseur à un pulse s'écrit alors:

$$\begin{aligned}
X_i^p(\mathbf{r}, t) = & \\
& \int_0^{+\infty} G(\nu - \nu_0) X_i^{cw}(\mathbf{r}, \nu) \\
& \exp(2i\pi\nu t) d\nu \\
& + \int_0^{+\infty} G(\nu + \nu_0)^* X_i^{cw}(\mathbf{r}, -\nu) \\
& \exp(-2i\pi\nu t) d\nu
\end{aligned} \tag{8}$$

À partir de l'équation hermitienne (5), l'équation (8) peut se récrire sous la forme:

$$X_i^p(\mathbf{r}, t) = \tilde{\mathcal{F}}^{-1} [G(\nu - \nu_0) X_i^{cw}(\mathbf{r}, \nu)] \tag{9}$$

où  $\tilde{\mathcal{F}}^{-1}$  désigne une transformation de Fourier inverse et le "tilde" signifie que la variable conjuguée à  $\nu$  est le temps  $t$  (au lieu de  $\tau$ ).

Le principe physique de la théorie de Lorenz-Mie généralisée pour illumination pulsée est alors claire et peut se décomposer en trois étapes (1) décomposer le pulse en ondes monochromatiques par une transformée de Fourier directe (2) appliquer une théorie de la diffusion de la lumière, avec un privilège pour les cas où des approches rigoureuses à laser continu existent et (3) reconstituer le signal à l'aide d'une transformée de Fourier inverse. Selon la valeur de  $\mathbf{r}$ , la réponse obtenue concernera un signal diffusé ou un signal décrivant les champs internes à la particule. Cette approche peut "aisément" se généraliser au cas où  $g(\tau)$  représente un train fini, ou infini, de pulses uniques élémentaires.

### 3 Cas particulier

Pour illustrer le fonctionnement de la théorie, nous choisissons un exemple qui puisse être résolu analytiquement. Plus spécifiquement, nous considérons un dipôle de Rayleigh illuminé par un pulse ayant le support spatial d'une onde plane. Le support "onde plane" se propage le long de l'axe  $z$  et le champ électrique oscille parallèlement à l'axe  $x$ . L'équation (1) est alors spécifiée sous la forme:

$$E_1(\mathbf{r}, \tau) = E_0 \exp(2i\pi\nu_0\tau) g(\tau) \tag{10}$$

et l'enveloppe est choisie comme une fonction porte de la forme:

$$g(\tau) = \Pi \left( \frac{\tau - L/\nu_0}{M/\nu_0} \right), L, M > 0, L > M/2 \tag{11}$$

représentée dans la figure 1, pour  $t = 0$ . À cet instant, le front avant du pulse se trouve

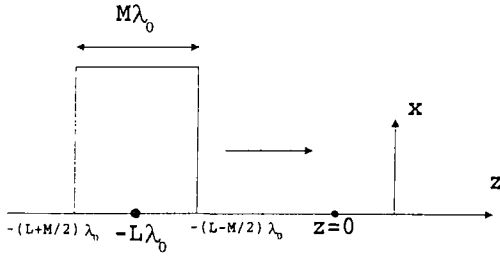


Figure 1: Représentation de l'enveloppe du pulse à  $t = 0$ .

à  $z = -(L - M/2) \lambda_0$  et n'a pas atteint la position  $z = 0$ .

À  $z = 0$ , nous plaçons un dipôle de Rayleigh. L'excitation du pulse atteint le dipôle au temps  $t_{at} = (L - M/2) \lambda_0/c$  et le quitte au temps  $t_{qui} = (L + M/2) \lambda_0/c$ . En utilisant des propriétés "classiques" des distributions [9], on établit:

$$\Pi\left(\frac{\tau - L/\nu_0}{M/\nu_0}\right) = \frac{M}{\nu_0} \Pi\left(\frac{\tau}{M/\nu_0}\right) * \delta(\tau - L/\nu_0) \quad (12)$$

où  $\delta$  est la distribution de Dirac et  $(*)$  désigne un produit de convolution. L'étape suivante consiste à évaluer le spectre  $G(\nu)$  où on utilise (11), (12) et [9]:

$$\mathcal{F}[S * T] = \mathcal{F}[S] \mathcal{F}[T] \quad (13)$$

$$\mathcal{F}\left[\Pi\left(\frac{\tau}{NT}\right)\right] = \frac{\sin \pi \nu NT}{\pi \nu} \quad (14)$$

où  $S$  et  $T$  sont des distributions,  $\mathcal{F}$  désigne une transformée de Fourier directe, et:

$$\mathcal{F}[\delta(\tau - L/\nu_0)] = \exp(-2i\pi\nu L/\nu_0) \quad (15)$$

pour obtenir:

$$G(\nu) = \frac{M \sin \pi \nu M/\nu_0}{\nu_0 \pi \nu} \exp(-2i\pi\nu L/\nu_0) \quad (16)$$

La réponse d'un dipôle de Rayleigh à une excitation de la forme  $E_0 \exp(i2\pi\nu\tau)$ , pour le champ électrique diffusé oscillant selon l'axe  $x$ , se propageant vers les  $z$  positifs, dans le cas où l'indice complexe de réfraction du diffuseur est supposé constant, s'écrit sous la forme[11]:

$$E_0 \frac{K}{z} \nu^2 \exp(2i\pi\nu t) \exp(-2i\pi\nu z/c) \quad (17)$$

nous permettant d'exprimer  $X_i^{cw}(\mathbf{r}, \nu)$  dans l'Eq (9), et avec l'Eq (16), le champ électrique diffusé par la particule, s'écrit (en utilisant une propriété classique des transformées de Fourier des distributions [9]):

$$E_1^p(z, t) = E_0 \frac{KM}{z\nu_0} \tilde{\mathcal{F}}^{-1}[\nu^2] * \tilde{\mathcal{F}}^{-1}[\exp(-2i\pi\nu z/c)] \quad (18)$$

$$* \tilde{\mathcal{F}}^{-1}\left[\frac{\sin \pi(\nu - \nu_0)M/\nu_0}{\pi(\nu - \nu_0)} \exp(-2i\pi(\nu - \nu_0)L/\nu_0)\right]$$

On peut vérifier [9] que cette équation a un sens, et dès lors procéder à son évaluation. Chaque transformée de Fourier inverse de l'Eq(18) peut être évaluée séparément à l'aide d'outils classiques, quoique spécifiques [9], sous la forme:

$$\tilde{\mathcal{F}}^{-1}[\nu^2] = -\frac{\delta''(t)}{4\pi^2} \quad (19)$$

$$\tilde{\mathcal{F}}^{-1}[\exp(-2i\pi\nu z/c)] = \delta(t - z/c) \quad (20)$$

$$\begin{aligned} \tilde{\mathcal{F}}^{-1}[*] &= \tilde{\mathcal{F}}^{-1}\left[\left(\frac{\sin \pi\nu M/\nu_0}{\pi\nu}\right) \right. \\ &\quad \left. \exp(-2i\pi L/\nu_0) * \delta(\nu - \nu_0)\right] \\ &= \frac{\nu_0}{M}\Pi\left(\frac{t - L/\nu_0}{M/\nu_0}\right) \exp(2i\pi\nu_0 t) \end{aligned} \quad (21)$$

où (\*) désigne une notation abrégée évidente. Des manipulations classiques dans le cadre des distributions, en particulier [9]:

$$\delta'' * T = T'' \quad (22)$$

permettent alors d'établir:

$$E_1^p(z, t) = -\frac{KE_0\nu_0}{4\pi^2 z M} \frac{d^2}{dt^2} \left[ \Pi\left(\frac{t - z/c - L/\nu_0}{M/\nu_0}\right) \exp(2i\pi\nu_0(t - z/c)) \right] \quad (23)$$

L'évaluation de la dérivée seconde s'obtient en exploitant les ingrédients suivants [9]:

1. La dérivée d'un produit de convolution de deux distributions s'obtient en dérivant une seule des distributions.

2. On a:

$$\Pi(x) = \mathcal{H}(x + 1/2) - \mathcal{H}(x - 1/2) \quad (24)$$

où  $\mathcal{H}$  désigne la distribution de Heaviside.

3. On a:

$$\mathcal{H}'(x) = \delta(x) \quad (25)$$

On obtient alors:

$$\begin{aligned} E_1^p(z, t) &= \frac{-KE_0}{4\pi^2 z} \left\{ -\frac{4\pi^2\nu_0^3}{M}\Pi\left(\frac{t - z/c - L/\nu_0}{M/\nu_0}\right) \right. \\ &\quad \exp(2i\pi\nu_0(t - z/c)) \\ &\quad + \exp(2i\pi(L - M/2)) \\ &\quad [4i\pi\nu_0\delta(t - z/c - L/\nu_0 + M/2\nu_0) \\ &\quad + \delta'(t - z/c - L/\nu_0 + M/2\nu_0)] \\ &\quad - \exp(2i\pi(L + M/2)) \\ &\quad [4i\pi\nu_0\delta(t - z/c - L/\nu_0 - M/2\nu_0) \\ &\quad \left. + \delta'(t - z/c - L/\nu_0 - M/2\nu_0)] \right\} \end{aligned} \quad (26)$$

Cette équation montre que, à la position  $z$  ( $z > 0$ ), des singularités de Dirac apparaissent pour:

$$t_1 = \frac{z}{c} + \frac{1}{\nu_0} \left( L - \frac{M}{2} \right) = \frac{z}{c} + t_{at} \quad (27)$$

$$t_2 = \frac{z}{c} + \frac{1}{\nu_0} \left( L + \frac{M}{2} \right) = \frac{z}{c} + t_{qui} \quad (28)$$

où  $t_{at}$  et  $t_{qui}$  sont les temps où le pulse atteint et quitte le dipôle de Rayleigh à  $z = 0$ . Les temps  $t_1$  et  $t_2$  correspondent alors, de manière naturelle, à l'arrivée et au départ du



signal diffusé à la position  $z > 0$  considérée. Un dipôle de Rayleigh ne possédant ni inertie, ni amortissement, ce résultat satisfait le principe de causalité et illustre la cohérence du formalisme. En fait, cette illustration n'est pas triviale. Historiquement, il a été reproché à la transformée de Fourier, moyennant l'utilisation de filtres spectraux, de permettre à un récepteur de détecter un signal avant qu'il n'ait été émis. Il a été nécessaire, dans une étape ultérieure, pour consolider l'utilisation de la transformée de Fourier, de démontrer que ces filtres non-causaux n'étaient pas physiquement réalisables [9].

## 4 Conclusion

Nous avons présenté une théorie de Lorenz-Mie généralisée décrivant l'interaction de pulses laser avec des particules diffusantes. Cette théorie a été illustrée dans le cas d'un diffuseur de Rayleigh, illuminé par un pulse dont le support spatial est une onde plane, permettant une résolution complètement analytique du problème. Cette théorie est en cours d'implantation numérique pour l'étude de situations plus réalistes. Elle doit ouvrir la voie à des méthodes nouvelles (quoique expérimentalement sophistiquées) de caractérisation de particules. Par exemple, il est clair qu'un pulse de 5 femtosecondes (correspondant à un trajet lumineux, dans le visible, de l'ordre du micron) éclairant une particule de 50 microns, engendrera une série de pulses diffusés correspondant, dans le langage de l'optique géométrique, à une série de réflexions et de réfractions associées

à la particule. Ces pulses diffusés devraient permettre une analyse fine de l'état interne de la particule diffusante.

## Références

- [1] G. Gouesbet and G. Gréhan. Generalized Lorenz-Mie theories, from past to future. Invited lecture to ICLASS 2000, to be published in *Atomization and Sprays*.
- [2] G. Gouesbet and G. Gréhan. Generalized Lorenz-Mie theory for a sphere with an eccentrically located spherical inclusion. To be published by *J. Mod. Optics*.
- [3] G. Gouesbet and G. Gréhan. Generalized Lorenz-Mie theory for assemblies of spheres and aggregates. To be published by *J. of Optics A: Pure and Applied Optics*.
- [4] C. Fabre and J.P. Pocholle. *Les lasers et leurs applications scientifiques et médicales*. Les Editions de Physique, 1996.
- [5] C. Rullière (ed). *Femtosecond laser pulses: Principles and Experiments*. Springer, 1998.
- [6] R.K. Chang and A.J. Campillo. eds. *Optical processes in microcavities. Advanced series in Applied Physics, vol 3*. 1996. World Scientific.
- [7] E.E.M. Khaled, D.Q. Chowdhury, S.C. Hill, and P.W. Barber. Internal and scattered time-dependent intensity of a dielectric sphere illuminated with a pulsed

Gaussian beam. *J. Opt. Soc. Amer. A*, 11(7): 2065–2071, 1994.

- [8] G. Gouesbet. Exact description of arbitrary shaped beams for use in light scattering theories. *J. Opt. Soc. Am. A*, 13(12): 2434–2440, 1996.
- [9] F. Roddier. *Distributions et transformations de Fourier*. 1978. McGraw-Hill.
- [10] G. Gouesbet. Theory of distributions and its application to beam parametrization in light scattering. 16: 147–159, 1999.
- [11] L.P. Bayvel and A.R. Jones. *Electromagnetic scattering and its applications*. 1981. Applied Science Publishers.

# Utilisation et étude d'un générateur d'aérosol pour la synthèse de poudres céramiques nanométriques

M. MAYNE, N. ALLAIN, X. ARMAND, N. HERLIN-BOIME, M. CAUCHETIER  
CEA Saclay, DRECAM-SPAM, Batiment 522, 91191 Gif sur Yvette Cedex.

## INTRODUCTION

Depuis ces quinze dernières années, les poudres céramiques nanométriques sont utilisées pour l'élaboration de nanomatériaux. L'intérêt de telles poudres provient essentiellement de la faible taille des grains. En effet, la taille des défauts, qui régit en partie et éventuellement limite les propriétés du matériau, étant étroitement liée à celle des grains, il est aisé d'imaginer une utilisation bénéfique des poudres nanométriques. En particulier, des nanocomposites  $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{SiC}$  élaborés à partir de nanopoudres  $\text{SiCN}$  présentent un bon comportement mécanique<sup>[1]</sup>, et sont également prometteurs pour la fabrication de pièces céramiques par formage à chaud<sup>[2, 3]</sup>. C'est dans ce contexte que se situe une partie de l'activité de notre laboratoire qui consiste à synthétiser des poudres nanométriques  $\text{SiCN}$  par pyrolyse laser pour l'élaboration de nanocomposites  $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{SiC}$  aptes à être mis en forme à haute température.

La synthèse de ces poudres ultrafines est effectuée par pyrolyse laser de précurseurs gazeux ou liquides. Les premières synthèses ont été effectuées à partir d'un précurseur gazeux, le silane ( $\text{SiH}_4$ )<sup>[4]</sup>. Cependant, le silane reste cher et d'emploi trop dangereux (inflammable au contact de l'air). C'est pourquoi, des synthèses à l'aide d'un précurseur liquide, l'hexaméthylidisilazane ( $(\text{CH}_3)_3\text{Si}_2\text{NH}-(\text{CH}_3)_3$ ), ont été réalisées<sup>[5, 6]</sup>. Dans ce cas, un aérosol a été généré par nébulisation du précurseur liquide et a été transporté vers le faisceau laser par un mélange gazeux inerte ou partiellement réactif afin de permettre l'interaction de ce précurseur avec le faisceau laser. Dans le cadre des synthèses de poudres  $\text{SiCN}$ , le rendement de nébulisation du générateur d'aérosol est un des paramètres importants parmi ceux qui influencent les caractéristiques physico-chimiques des poudres obtenues. De plus, actuellement, une de nos motivations est de pouvoir introduire, au sein du système  $\text{SiCN}$ , des éléments métalliques tels que Al et Y utiles pour l'élaboration ultérieure des nanomatériaux.

Ce travail présente d'une part, une étude paramétrique de l'influence des paramètres liés au générateur d'aérosol sur le rendement de nébulisation, et d'autre part des résultats d'expériences de nébulisation de mélanges du précurseur liquide HMDS avec un précurseur solide contenant de l'aluminium.

## LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Le principe de la pyrolyse laser repose sur la résonance dans l'infrarouge entre l'émission du laser et l'absorption au niveau d'une liaison d'au moins un réactant<sup>[4, 5, 6]</sup>. Le dispositif expérimental de synthèse est composé de quatre parties (figure 1) : le laser  $\text{CO}_2$ , le réacteur, le collecteur de poudre et le générateur d'aérosol.

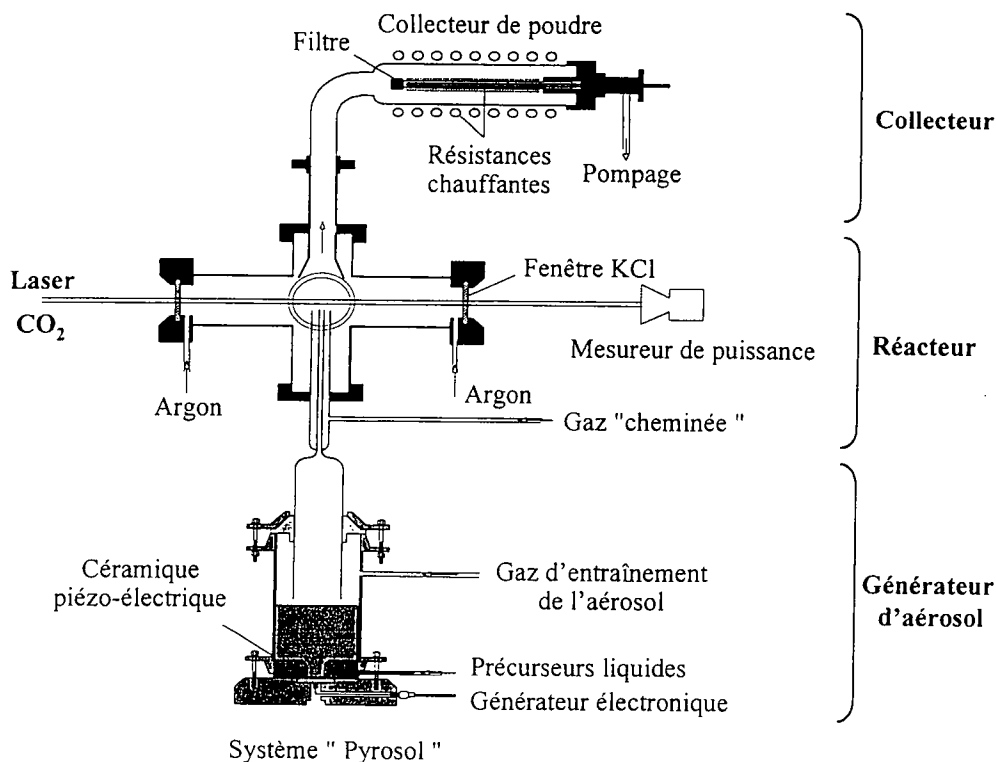


Figure 1 : dispositif expérimental de synthèse par pyrolyse laser (couplage aérosol/laser)

La pyrolyse laser est mise en œuvre dans un réacteur photochimique où le faisceau laser croise orthogonalement un flux de réactants dans une zone très confinée, sans effet de parois (figure 1). Ceci induit une réaction se produisant avec une rapide montée en température, apparition d'une flamme et formation de grains fins par nucléation homogène. Les faibles temps de séjour dans la zone réactionnelle ainsi que la trempe que subissent les grains en sortie de flamme induisent une faible croissance de ces derniers. Les poudres ainsi formées sont entraînées par un courant gazeux et par pompage, vers un collecteur en verre muni d'un filtre métallique (figure 1).

Le laser CO<sub>2</sub> (modèle PRC-Oerlikon) est un laser continu de puissance (puissance maximale : 1500 W) accordable en longueur d'onde (9.3 à 11.6 μm). Pour les expériences de synthèse de nanopoudres SiCN, le laser est accordé sur la raie d'émission 10P20 de longueur d'onde 10.6 μm correspondant à une des bandes d'absorption infra-rouge du précurseur HMDS. La puissance est le plus souvent ajustée autour de 300 W.

Le générateur d'aérosol (système Pyrosol, commercialisé par RBI) est composé d'une enceinte en verre contenant le liquide précurseur à nébuliser, et d'un générateur électronique assurant l'excitation d'un transducteur piézo-électrique placé sous le liquide (figure 1). Le transducteur piézo-électrique transforme l'onde électrique délivrée par le générateur électronique, en onde acoustique ultrasonore. En focalisant les ultrasons ainsi créés au voisinage de la surface du liquide, une "fontaine ultrasonore" se forme et génère un aérosol dont les caractéristiques dépendent essentiellement de la nature du liquide, de la fréquence et de l'intensité ultrasonore délivrées par le générateur électronique. Le brouillard de gouttelettes du précurseur ainsi formé est alors entraîné vers le faisceau laser par un mélange de gaz dont la nature et le débit peuvent varier.

Afin de réaliser l'étude paramétrique concernant l'influence des paramètres de fonctionnement du générateur d'aérosol sur le rendement de nébulisation, le générateur d'aérosol a été désolidarisé de l'installation de synthèse. Le protocole opératoire consiste à introduire une quantité connue de liquide, et à mesurer après nébulisation et entraînement par un gaz, la quantité de liquide restante. La quantité de liquide entraînée est obtenue par différence entre ces deux valeurs, et l'entraînement qui représente la masse de liquide entraînée par unité de temps peut être évalué.

Ainsi en utilisant ce mode opératoire, différents paramètres ont été étudiés pour connaître leur influence sur la quantité de liquide entraînée : fréquence et puissance délivrées par le générateur électronique, durée de nébulisation, débit et nature du gaz d'entraînement, nature du liquide.

Les différents liquides choisis pour cette étude sont d'une part l'hexaméthylsilazane ((CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>-Si<sub>2</sub>NH-(CH<sub>3</sub>)<sub>3</sub>), précurseur des poudres SiCN, et d'autre part le toluène et le butanol dont la viscosité encadre celle de HMDS (tableau 1). La viscosité joue un rôle sur le rendement de nébulisation puisque le taux de production d'aérosol est inversement proportionnel à la viscosité [7].

	Viscosité (cP)
Toluène	0.59
HMDS	0.69
Butanol	0.95

Tableau 1 : viscosité des liquides.

## RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION

### Influence des paramètres de fonctionnement du générateur d'aérosol sur l'entraînement du liquide

#### *Rôle de la fréquence et de la puissance*

Le générateur électronique délivre des fréquences comprises entre 750 et 850 kHz et une puissance maximale de 150W. La fréquence et la puissance sont réglées à l'aide d'un potentiomètre variant de 0 à 100%. Pour cette étude, seule la fréquence est variable, tous les autres paramètres étant fixes. Ainsi le volume de liquide initial est fixé à 250 ml, le gaz d'entraînement choisi est l'argon à raison de 2 l/min et le temps de nébulisation est de 20 min.

Dans le cas du toluène, les courbes représentant la masse de liquide entraînée en fonction de la fréquence pour deux puissances différentes ont des allures identiques (figure 2).

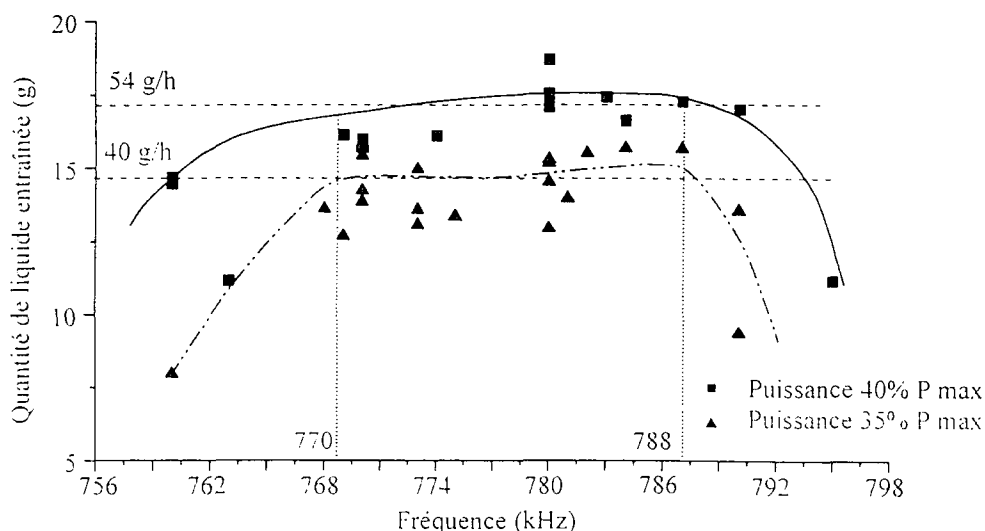


Figure 2 : évolution de l'entraînement en fonction de la fréquence dans le cas du toluène.

(Les courbes tracées servent uniquement de guides visuels)

Quelle que soit la puissance, il existe un domaine de fréquence où l'entraînement est maximal et quasi constant. Pour les deux puissances étudiées, ce domaine de fréquence s'étend sur une même plage de fréquence [770 - 788 kHz] qui correspond au domaine de fréquence "d'accord" (gamme de fréquence qui permet d'obtenir une production maximale d'aérosol).

De plus, ces courbes mettent en évidence une augmentation de l'entraînement lorsque la puissance délivrée par le générateur électronique augmente. Ainsi, dans le domaine de fréquence d'accord, la valeur moyenne de l'entraînement est de 40g/h pour une puissance de 52 W, alors qu'elle atteint 54 g/h pour une puissance de 60 W.

Dans le cas de l'hexamethyldisilazane et du butanol, les courbes (figure 3) représentant la masse de liquide entraînée en fonction de la fréquence ont une allure différente comparé au toluène. Bien qu'il soit plus difficile de déterminer un domaine de fréquence d'accord pour ces deux liquides, il semble toutefois que celui-ci soit plus resserré que dans le cas du toluène ([778 - 780 kHz] pour le butanol). De plus, l'entraînement de HMDS est supérieur à celui du butanol ce qui peut s'expliquer par la viscosité de HMDS inférieure à celle du butanol.

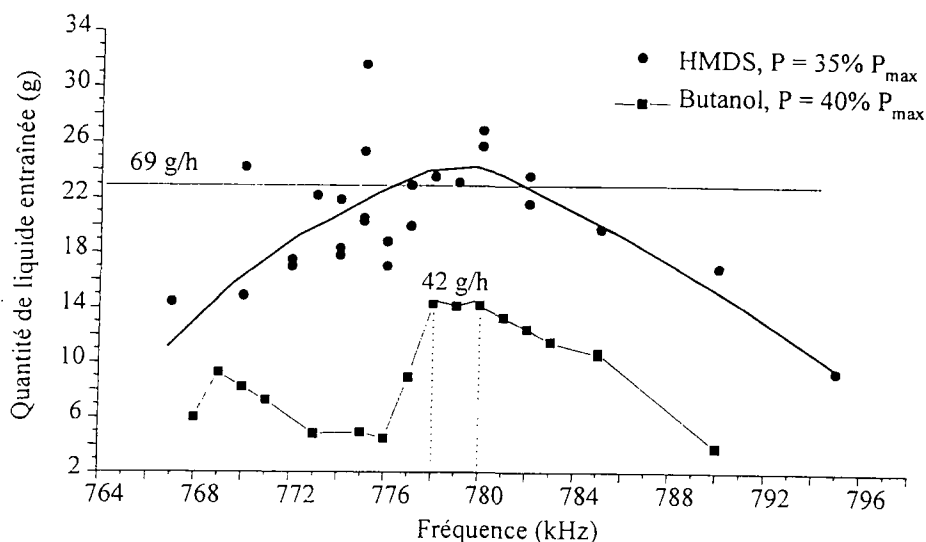


Figure 3 : évolution de l'entraînement en fonction de la fréquence dans le cas du butanol et d'HMDS (les courbes tracées servent uniquement de guides visuels).

La fréquence et la puissance jouent donc un rôle important sur l'entraînement. Quel que soit le liquide, il existe un domaine de fréquence d'accord dont l'étendue varie fortement avec la nature du liquide.

#### Rôle de la durée de nébulisation

Pour cette étude, le volume de liquide introduit est fixé à 250 ml, et le gaz d'entraînement est l'argon à raison de 2 l/min. La fréquence est réglée sur une valeur comprise dans le domaine de fréquence d'accord pour chacun des trois liquides (52 W pour le toluène et 60 W pour le butanol).

L'évolution de la quantité de liquide entraîné en fonction de la durée de nébulisation est représentée sur la figure 4 pour les trois liquides.

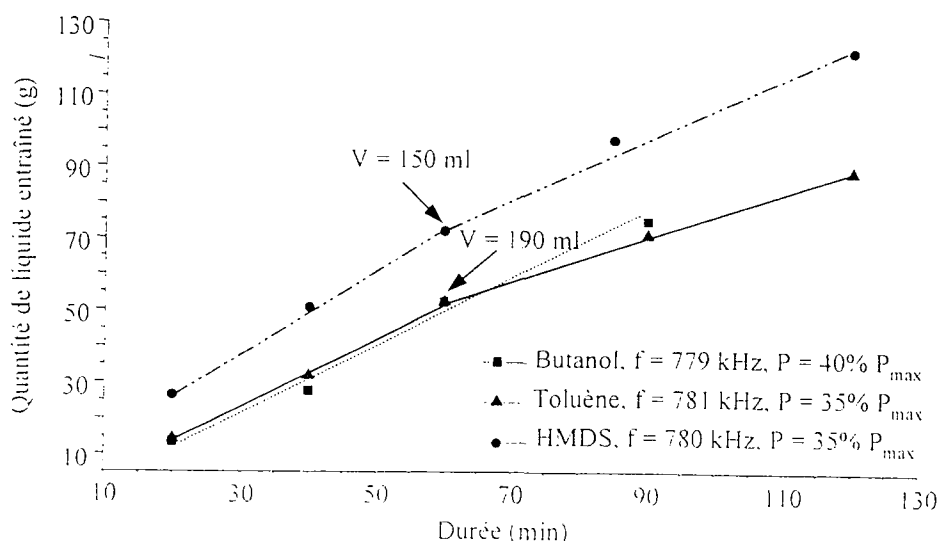


Figure 4 : évolution de l'entraînement en fonction de la durée de nébulisation.

Quel que soit le liquide, la quantité de liquide entraînée augmente linéairement avec la durée de nébulisation. L'entraînement représenté par la pente des droites reste donc constant dans le temps. Néanmoins, dans le cas de HMDS et du toluène, il existe une transition située à une durée de 60 min à partir de laquelle l'entraînement devient différent. Ce phénomène pourrait être lié à la variation du volume dans l'enceinte en verre au cours de la nébulisation, conduisant à une variation de la hauteur de liquide au dessus de la céramique piézo-électrique et induisant une défocalisation des ultrasons à la surface du liquide. Il en résulte, pour une fréquence constante, une modification de l'entraînement à partir d'un certain "volume" critique évalué à 150 ml pour HMDS et à 190 ml pour le toluène.

#### *Rôle de la nature et du débit de gaz d'entraînement*

La nébulisation est effectuée sur un volume de 250 ml pendant une durée de 20 min. La puissance est réglée à 60 W et la fréquence à 785 kHz. Les différents gaz ont été choisis en fonction de leur densité proche de celle des gaz réactifs utilisés en synthèse (ammoniac et hydrogène), et de leur inertie (tableau 2). Il s'agit de l'argon, l'azote et l'hélium, azote et hélium ayant respectivement des densités proches de celles de l'ammoniac et de l'hydrogène.

Gaz	Densité
Hélium (Hydrogène)	0.041 0.031
Azote (Ammoniac)	0.314 0.234
Argon	0.536

Tableau 2 : densité des gaz d'entraînement.

La figure 5 représente l'évolution de la quantité de liquide entraînée en fonction du débit de gaz dans le cas du toluène.

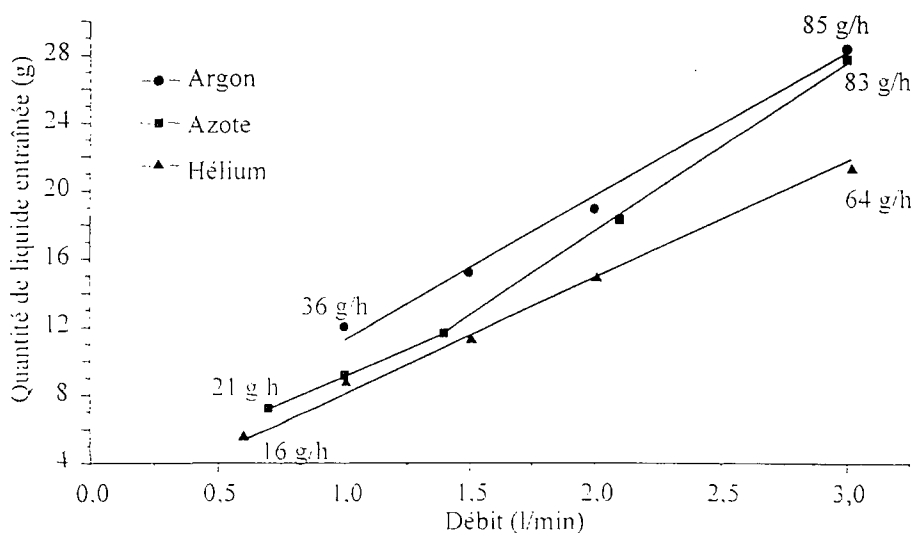


Figure 5 : évolution de l'entraînement en fonction du débit de gaz dans le cas du toluène.

Quel que soit le gaz, la quantité de liquide entraînée augmente proportionnellement au débit de gaz. De plus, la nature du gaz joue un rôle sur l'entraînement : pour un même débit, l'entraînement croît dans le sens He, N<sub>2</sub>, Ar. Ce phénomène est associé à la densité des gaz (cf tableau 2) qui augmente dans le même sens.

## Nébulisation de mélanges du précurseur liquide HMDS avec un précurseur solide contenant de l'aluminium

Ces expériences ont été réalisées de façon à introduire dans les poudres SiCN des éléments métalliques tel que Al<sup>8</sup>. Pour cela, l'isopropoxyde d'aluminium ( $[(CH_3)_2CHO]_3Al$ ), précurseur contenant de l'aluminium, est préalablement dissout dans HMDS, et la solution obtenue est nébulisée. Afin de contrôler la quantité d'aluminium introduite dans la poudre obtenue lors des étapes successives de nébulisation et de pyrolyse laser, le rapport atomique Al/Si est calculé dans la poudre à partir des résultats d'analyse élémentaire et est comparé à celui de la solution initiale. Les résultats sont reportés dans le tableau 3.

	Solution de précurseurs	Poudre
Al/Si (rapport atomique)	0.02	0.02
	0.04	0.04
	0.1	0.07

Tableau 3 : rapport atomique dans les solutions de précurseurs et dans les poudres obtenues.

Pour des rapports Al/Si inférieurs à 0.1 dans la solution initiale, les rapports Al/Si restent inchangés dans la poudre obtenue. En revanche, lorsque le rapport Al/Si atteint 0.1 dans la solution initiale, il se trouve diminué dans la poudre obtenue (0.07). Ce phénomène montre qu'à partir d'une certaine concentration en Al dans la solution initiale, il se produit un "entraînement préférentiel" du composé à base de silicium c'est à dire du précurseur HMDS.

## CONCLUSION

L'ensemble de cette étude montre que le comportement du générateur d'aérosol (Pyrosol) évolue fortement avec la nature du liquide utilisé. En particulier, une importante variation du domaine de fréquence d'accord est constatée. De plus, la durée de nébulisation influe peu sur l'entraînement, bien qu'il existe un seuil en durée à partir duquel l'entraînement est modifié. Ce seuil correspond à un "volume critique" de liquide dans l'enceinte du pyrosol qui dépend de la nature du liquide. L'entraînement dépend également de la nature du gaz : il augmente lorsque la densité du gaz augmente.

Par ailleurs, le générateur Pyrosol permet de nébuliser des solutions de précurseurs. Néanmoins, à partir d'une certaine concentration en précurseur solide, la composition élémentaire dans la poudre est différente de celle de la solution initiale.

Au vu de ces résultats, une perspective envisagée est la recherche d'un générateur d'aérosol permettant la nébulisation homogène d'une solution de précurseurs plus concentrée.

## REFERENCES

- <sup>1</sup> : A. Sawagushi, K. Toda, K. Niihara, Mechanical and electrical properties of silicon nitride - silicon carbide nanocomposite material, *J. Am. Cer. Soc.*, 1991, 74, 1142-1144.
- <sup>2</sup> : F. Wakai, Y. Kodama, S. Sakaguchi, N. Murayama, K. Izaki, K. Niihara, A superplastic covalent crystal composite, *Lett. to Nature*, 1990, 344, 421-423.
- <sup>3</sup> : M. Mayne, T. Rouxel, D. Bahloul-Hourlier, J-L Besson,  $Si_3N_4/SiCN$  nanocomposites : tensile ductility and rupture behaviour, 1998, 18, 1985-1994.
- <sup>4</sup> : M. Cauchetier, O. Croix, M. Luce, M. I. Baraton, T. Merle, P. Quintard, Nanometric  $Si_3C_2N$  composite powders : laser synthesis and IR characterization, *J. Eur. Cer. Soc.*, 1191, 8 215-219.
- <sup>5</sup> : N. Herlin, O. Croix, M. Cauchetier, M. Luce, E. Musset, Nanosized  $Si_3C_2N$  composite powders formed by laser-aerosol coupling, *J. Phys. IV*, 1993, 3, 1481-1484.
- <sup>6</sup> : M. Cauchetier, O. Croix, N. Herlin, M. Luce, Nanocomposite  $Si_3C_2N$  powder production by laser-aerosol interaction, *J. Am. Cer. Soc.*, 1994, 77, 4, 993-998.
- <sup>7</sup> : O.K. Eknadiosyants, E.L. Gershenzon, *Soviet Physics Acoustics*, vol. 10, n°2, 1964.
- <sup>8</sup> : M. Cauchetier, X. Armand, N. Herlin, M. Mayne, S. Fusil, E. Lefèvre,  $Si_3C_2N$  nanocomposite powders with Al (and Y) additives obtained by laser spray pyrolysis of organometallic compounds, *J. Mater. Sci.*, 1999, 34, 5257-5264.



# La surveillance des particules dans l'environnement en France

A.REBOURS

Air Pays de la Loire, réseau de surveillance de la qualité de l'air des Pays de la Loire,  
2, rue Alfred Kastler BP 30723 44 307 NANTES cedex 3

## Résumé:

L'objectif principal de la surveillance opérationnelle est de déterminer et d'informer sur les concentrations moyennes et de pointe de plusieurs indicateurs de la pollution atmosphérique. La métrologie des particules en suspension est basée exclusivement sur la pesée de la matière collectée. L'application des directives européennes impose l'accroissement du nombre de polluants à surveiller: PM10, PM2,5, métaux lourds, HAP et benzène. La cohérence du dispositif national doit donc être renforcée. Les compétences au sein des réseaux de surveillance doivent accompagner ce développement.

## Introduction:

La surveillance de la qualité de l'air en France a pris un second essor depuis la Loi sur l'Air du 30 décembre 1996. La LAURE a contribué fortement au renforcement du dispositif d'analyse et d'expertise de la pollution atmosphérique, au profit de la surveillance en milieu urbain. Les moyens de mesure en temps réel des particules en suspension se sont réellement développés en France depuis cette date.

## Le dispositif de surveillance de la qualité de l'air : des organismes nationaux à l'échelle locale

La surveillance de la qualité de l'air en France est organisée au plan national par plusieurs acteurs relayés au niveau local par une quarantaine d'associations agréées de surveillance chargées de l'application opérationnelle.

Le Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement est chargé de définir la politique de surveillance et de mettre en place les actions réglementaires. L'ADEME assure la coordination technique du réseau de surveillance. L'Agence est impliquée au niveau de ses organismes centraux et de ses délégations régionales. Le Laboratoire de Surveillance de la Qualité de l'Air est composé de trois entités : l'Ecole des Mines de Douai, le Laboratoire National d'Essais et l'INERIS. Le LCSQA est maître d'oeuvre en matière d'assurance qualité métrologie.

A l'heure actuelle, il existe environ une quarantaine d'associations de surveillance. Ces organismes ont des compétences communales, départementales ou régionales. Elles sont composées de représentants de l'Etat, des Collectivités locales, des Industriels, d'Associations de protection de l'Environnement et de personnalités qualifiées. Leurs rôles est de développer et de mettre en oeuvre les moyens de mesure de la pollution atmosphérique. L'information constitue le second axe prioritaire.

## Réglementation de la surveillance : impulsion de l'Union Européenne depuis 1980

Le Conseil de l'Europe a émis une directive en date du 19 septembre 1996 concernant l'évaluation de la qualité de l'air dans l'air ambiant. Cette directive avait pour principal objectif d'établir des objectifs de qualité et d'harmoniser les procédures d'évaluation dans les états membres.

Un certain nombre de directives filles doivent suivre cette directive cadre. Concernant la pollution d'origine particulaire, une directive a pour l'instant été publiée, celle du 22 avril 1999. Elle recommande la surveillance des particules en suspension et celle du plomb. Dans ce cadre, les PM10 constituent pour la première fois la coupure granulométrique de référence. La mesure des PM2.5 n'est pas encore imposée puisque la Commission Européenne considère que la surveillance dans ce domaine est encore trop peu développée et qu'il n'existe pas encore de méthode de prélèvement et de mesure de référence. Cette directive préconise, dans certains cas, de façon alternative à la mesure automatique des mesures de type indicatif, la modélisation ou bien l'estimation objective.

Les valeurs limites réglementaires pour les PM10 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) de la directive du 22 avril 1999 sont récapitulées dans le tableau suivant:

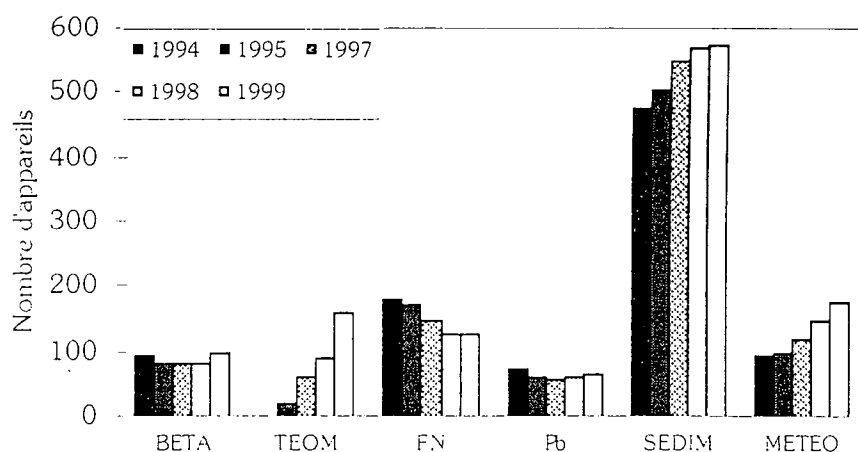
<b>40</b>	Moyenne annuelle	application au 1 janvier 2005
<b>50</b> , à ne pas dépasser plus de 35 j par année civile	Moyenne journalière	
<b>20</b>	Moyenne annuelle	application au 1 janvier 2010
<b>50</b> , à ne pas dépasser plus de 7 j par année civile	Moyenne journalière	

En France, il n'existe qu'un objectif de qualité réglementaire pour les PM10 fixé à  $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne annuelle. Par ailleurs, les recommandations suivantes ont été émises en 1996 par le Conseil Supérieur d'Hygiène Publique de France: un seuil de précaution à  $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$  et un seuil d'alerte à  $125 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne sur 24 heures.

Divers groupes de travail européens travaillent à l'élaboration de "positions papers" qui serviront de base à la rédaction de directives relatives aux métaux lourds (cadmium, nickel, arsenic) et aux HAP.

### La métrologie opérationnelle dans les réseaux : une mesure massique en temps réel, des analyses chimiques

Evolution du parc métrologique entre 1994 et 1999



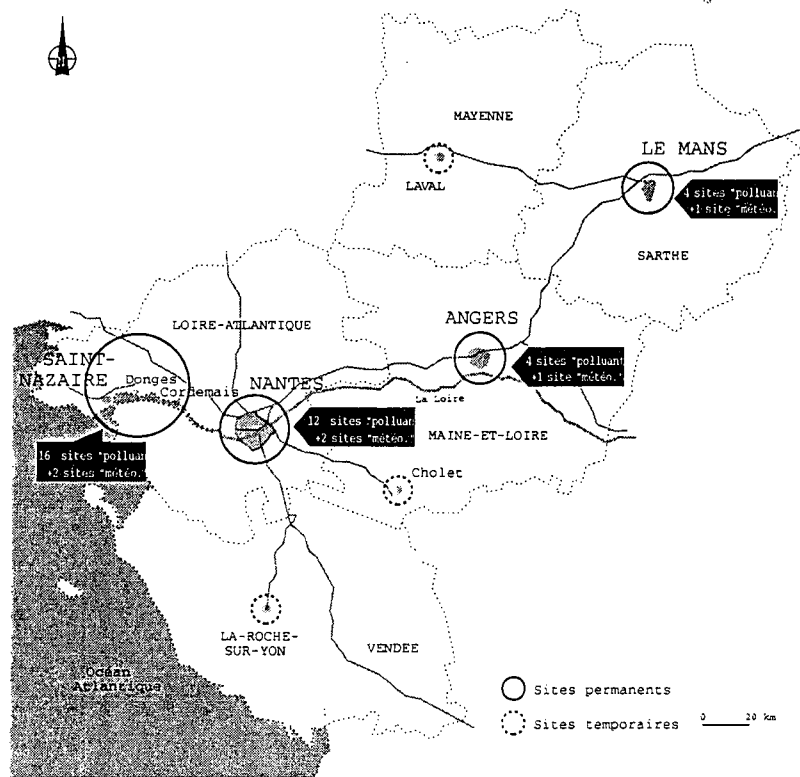
Source: EMD - réseaux

BETA: jauges Beta. TEOM: analyseurs microbalance. FN: analyseurs des fumées noires. Pb: préleveurs de plomb. SEDIM: préleveurs de particules sédimentables

Les préleveurs de poussières sédimentables représentent encore 56 % du parc total en 1999 mais reflètent mal la réalité puisque ce type de système de mesure est principalement réparti entre 3 réseaux de surveillance. Les méthodes de mesure par réflectométrie (fumées noires) sont en diminution constante depuis 1994 au profit des analyseurs TEOM qui représentent maintenant environ 16 % du parc d'appareils. Les TEOM sont équipés majoritairement de têtes PM10.

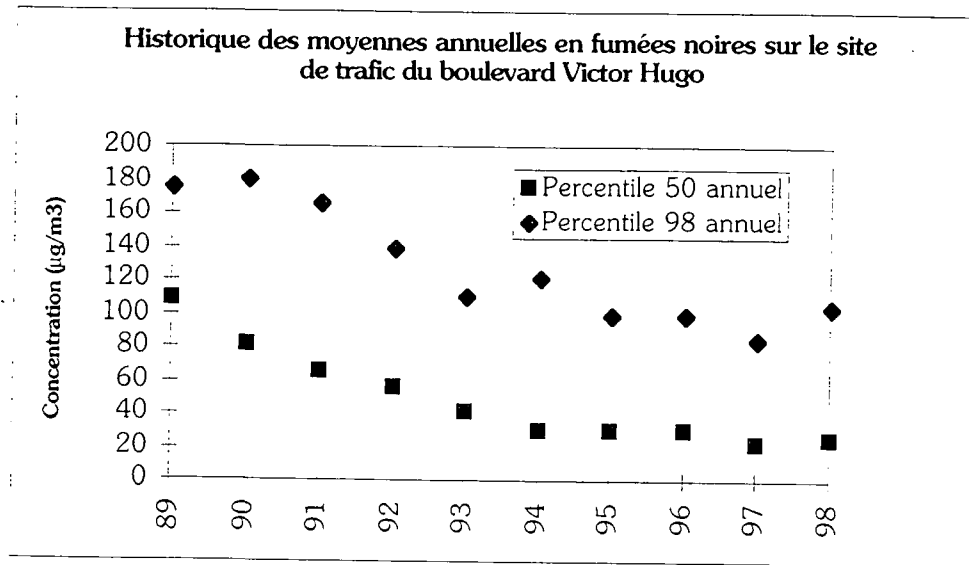
## De l'outil métrologique au réseau : exemple d'Air pays de la Loire

Air Pays de la Loire est un organisme régional depuis mars 1999. Les quatre principales agglomérations sont actuellement équipées de sites de mesure. Les analyseurs TEOM équipent actuellement six stations de mesure.



Air Pays de la Loire participera également à la gestion du réseau MERA en assurant courant 2000 l'exploitation du site de la Tardière en Sud-Vendée. L'objectif de ce réseau est de déterminer les niveaux de fond en précipitations, gaz et aérosols (soufre particulaire).

**Pollution atmosphérique particulaire dans les Pays de la Loire : un long historique pour les fumées noires, des résultats depuis 1998 pour les PM10**

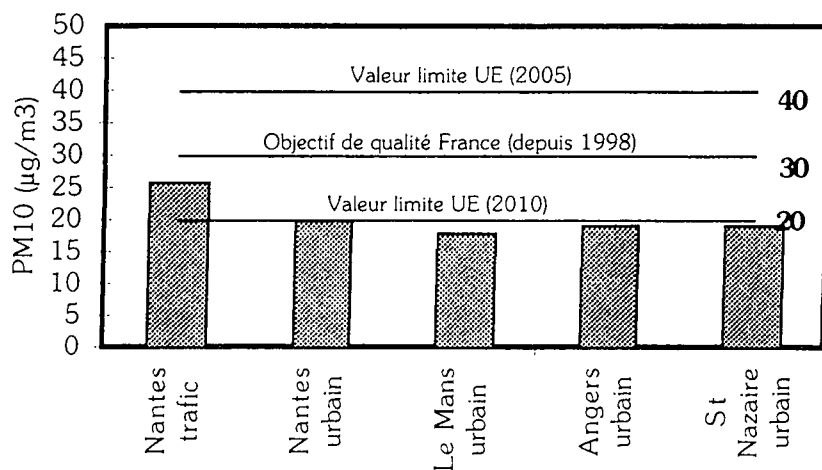


Entre 1989 et 1998, il est constaté une baisse très nette des concentrations en fumées noires aussi bien en niveau de pointe (- 70 %) qu'en percentile 50. La baisse du trafic poids lourds a contribué à cette évolution. Sur les sites urbains de fond, cette diminution est moins sensible.

Les maxima mensuels sont généralement enregistrés en hiver lorsque les capacités dispersives de l'atmosphère sont moins importantes. A Nantes, les valeurs limites ne sont jamais franchies. Sur le site de trafic Hugo, il est observé parfois des dépassements des valeurs guides.

Concernant les PM10, la situation vis à vis des valeurs limites UE 2005 en moyenne annuelle apparaît pour l'instant peu préoccupante. L'objectif de qualité France n'est également pas atteint. Des efforts importants de réduction des émissions doivent être toutefois menés pour respecter les valeurs limites UE 2010, notamment sur les sites de trafic.

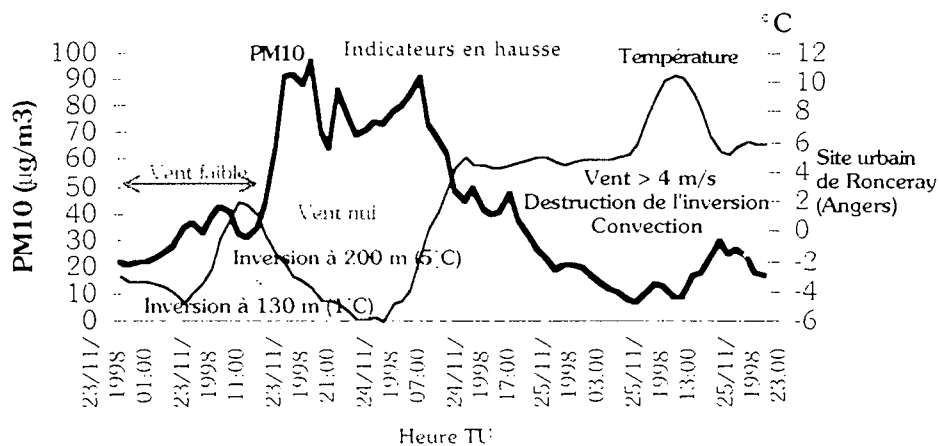
Moyenne annuelle en PM10 observée en 1999 (estimation)



En 1999, la valeur limite UE, en moyenne journalière dont l'entrée en vigueur est prévue en juillet 2001 a été franchie à 5 reprises sur trois sites confondus.

Un exemple de situation épisodique de pollution par les PM10 est représenté sur le graphique ci-dessous. Le 23 novembre, la situation météorologique est particulièrement stable puisque l'inversion nocturne ne s'est pas détruite et persiste à 130 mètres. Celle-ci atteint la hauteur de 200 m vers 16 hTU et une intensité de 5 °C dans le milieu de la nuit du 24. L'ensemble de ces conditions conduit à une élévation sensible pour la région des niveaux en PM10 (maximum horaire de près de 100 µg/m³). Les teneurs en particules diminuent graduellement à partir de 12hTU le 25 novembre quand les mouvements de convection reprennent.

Episode de pollution par les PM10 du 23 au 25 novembre 1998



## **Les programmes pilotes nationaux**

Deux programmes pilotes sont actuellement en cours pour suivre l'application des directives européennes. Le premier concerne la mise en place de la quatrième directive européenne relative à la surveillance du nickel, du cadmium et du plomb. Elle a pour but de contribuer à la connaissance des niveaux en site urbain et industriel, de comparer différentes méthodes de prélèvement (LVS et HVS) et d'analyse ainsi que la fréquence d'échantillonnage. Le chiffrage des incertitudes constitue toujours un objectif à atteindre. Dix sites sont concernés par ce programme sur 4 régions (Vallée de Seine, IDF, Alsace et Provence Alpes Côte d'Azur).

Le second projet accompagne les recommandations de la directive 199/30/CE qui préconise l'installation de stations PM<sub>2,5</sub> au même endroit que les PM<sub>10</sub>. Elle a pour objectif d'assister les experts européens dans le choix des valeurs limites prévues en 2003 ainsi que dans la préparation des choix métrologiques puisque la méthode de référence fait encore l'objet de discussion et que le choix de la tête de prélèvement n'est pas encore arrêté.

## **Gestion des épisodes de pollution par les particules: l'initiative alsacienne**

L'avis du Conseil Supérieur d'Hygiène Publique de France en date du 6 juin 1996 a conclu que les particules en suspension représentaient un indicateur majeur de qualité de l'air et préconisait l'envoi de messages d'information à caractère sanitaire et scientifique en cas de dépassements de seuils.

S'appuyant sur cet avis, les préfets du Haut et Bas Rhin ont alors pris en compte, de façon concertée, ce polluant aussi bien pour les procédures d'information que pour les procédures de mise en oeuvre de mesures d'urgence.

L'avis du Conseil National de l'Air du 16 février 1999 relatif à la gestion des épisodes de pollution a avalisé cette initiative et recommandé la mise en place de seuils d'alerte et de recommandations relatifs aux particules. Cet avis fait à l'heure actuelle l'objet de nombreuses discussions sur les conditions de son application.

## **Conclusion**

Sous la pression des experts de la santé, l'Etat a pris conscience du nécessaire renforcement de la surveillance des particules en suspension. Le nombre d'analyseurs de particules PM<sub>10</sub> devrait ainsi prochainement atteindre le nombre d'analyseurs de fumées noires.

L'application des directives européennes impose l'accroissement du nombre de polluants à surveiller: PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub>, métaux lourds, HAP et benzène. La cohérence du dispositif national doit donc être renforcée.

Les compétences au sein des réseaux de surveillance doivent accompagner ce développement en matière de gestion (Assurance Qualité), de métrologie (accréditation COFRAC) ou d'études (mis en place d'outil d'analyse, de prévision et de modélisation).

# Composition chimique élémentaire et granulométrie des particules en suspension sur un site urbain de fond sous influence industrielle

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

## Introduction

L'effet sur la santé des particules en suspension dans l'air ambiant dépend de la nocivité des éléments qui les constituent, mais aussi de leur capacité à pénétrer dans l'appareil respiratoire, donc de leur taille. De nombreuses études épidémiologiques ont montré une relation entre la santé et la concentration massique de particules de diamètre inférieur à  $2,5 \mu\text{m}$  et à  $10 \mu\text{m}$  [1]. Des corrélations existent mais ces indicateurs semblent insuffisants pour déterminer de façon précise l'impact de l'aérosol particulaire. Certaines études ont mis en évidence le rôle de sa taille et de sa composition dans les mécanismes de lésion de l'appareil respiratoire [2]. Il est donc important d'acquérir une meilleure connaissance des paramètres physiques et chimiques des particules que nous respirons pour en comprendre les effets.

Cet acte présente les résultats d'une campagne de mesure visant à caractériser la fraction inhalable des particules (diamètre inférieur à  $10 \mu\text{m}$ ) pour un site urbain de fond inséré dans un tissu industriel. La partie minérale des particules a été analysée en fonction de la granulométrie.

## Méthodes analytiques

Les particules d'un diamètre aérodynamique compris entre 30 nm et  $10 \mu\text{m}$  ont été collectées et séparées en douze tranches granulométriques à l'aide d'un impacteur en cascade basse pression. Le débit de prélèvement était de  $0,6 \text{ m}^3/\text{h}$ . Le support de collecte était constitué d'un filtre en Téflon imprégné d'une solution d'acide oléique et de cyclo-hexane. La durée moyenne de prélèvement a été 3 jours.

L'analyse a été réalisée par voie chimique humide. La minéralisation a été effectuée par chauffage micro-ondes dans un milieu clos avec 2 ml d'un mélange d'eau, d'acide nitrique et d'acide fluorhydrique (20:20:1). La durée du cycle micro-ondes était 35 mn, dont 30 mn à une puissance maximale de 650 W. Le volume final a été ramené à 25 ml.

Les échantillons liquides ont été analysés par Spectrométrie d'Emission Atomique Induite par Couplage Plasma (SEA-ICP) couplé à un nébuliseur ultrasonique.

Cette méthodologie a été décrite avec de plus amples détails lors du CFA 98 [3].

## Description du site

Le site de prélèvement a été choisi à l'emplacement d'une station de surveillance de la qualité de l'air désignée comme urbaine de fond. Il est localisé entre les agglomérations de Douai (200 000 habitants, distante de 10 km) et de Lens (320 000 habitants, distante de 8 km).

Les deux industries les plus proches sont :

- une usine de production du plomb et du zinc dans la direction est-nord-est (3,5 km) rejetant 117 tonnes de particules par an,
- une cokerie dans la direction sud-sud-ouest (3 km) émettant 300 tonnes de particules par an.

La mer est distante de 100 km.

## Résultats de la campagne de mesure

### Teneurs moyennes

Une campagne de mesure a été réalisée. Elle a permis de réunir 44 échantillons sur une période de 8 mois (novembre 98 - juin 99). Le Tableau 1 présente les concentrations moyennes mesurées durant cette période.

**Tableau 1 : Moyenne des concentrations élémentaires (ng/m<sup>3</sup>)**

	<b>S</b>	<b>Zn</b>	<b>Cd</b>	<b>Pb</b>	<b>Ni</b>	<b>Fe</b>	<b>Mn</b>	<b>Cr</b>	<b>V</b>
<b>Moyenne</b>	1439,3	99,8	1,6	69,2	5,7	308,3	14,7	7,8	6,0
<b>Ecart-type</b>	492,6	80,7	2,1	93,1	4,9	199,0	7,1	7,5	3,4

	<b>Mg</b>	<b>Al</b>	<b>Ti</b>	<b>Cu</b>	<b>Sr</b>	<b>Ca</b>	<b>Ba</b>	<b>Na</b>	<b>K</b>
<b>Moyenne</b>	117,5	814,2	41,2	13,7	1,8	331,6	32,3	1033,8	188,5
<b>Ecart-type</b>	60,8	399,0	45,0	6,6	1,0	234,9	51,9	586,0	91,3

Ces teneurs sont comparables à celle mesurées dans différentes villes européennes [4].

### Granulométrie

La répartition granulométrique varie fortement en fonction de l'élément analysé. Les figures 1 à 3 présentent trois répartitions granulométriques caractéristiques des granulométries que nous avons pu observer. Les boîtes à moustaches permettent, pour chaque tranche granulométrique, de visualiser le minimum et le maximum (moustaches), le 25<sup>ème</sup> percentile, la médiane et le 75<sup>ème</sup> percentile (boîte), la moyenne (point).

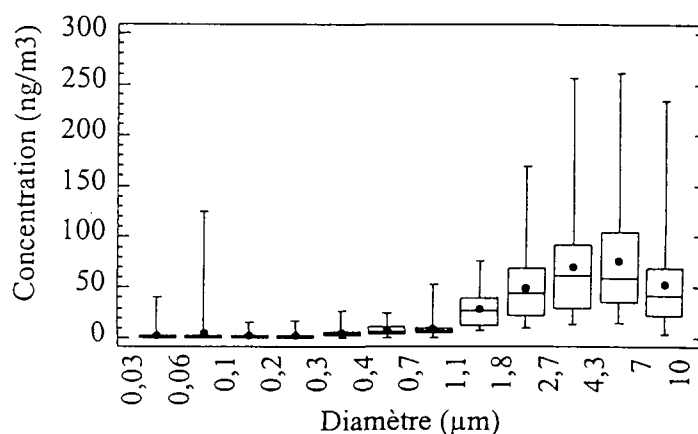
La granulométrie du fer présente un mode dans les grosses particules (> 2,5 µm). Ce mode est classiquement associé aux particules produites par un phénomène mécanique (érosion, abrasion).

Le vanadium est présent dans deux fractions granulométriques centrées autour de 0,5 µm et de 2 µm. Les particules fines (< 2,5 µm) sont principalement issues de phénomènes de combustion. Le vanadium est souvent associé à la combustion du pétrole.

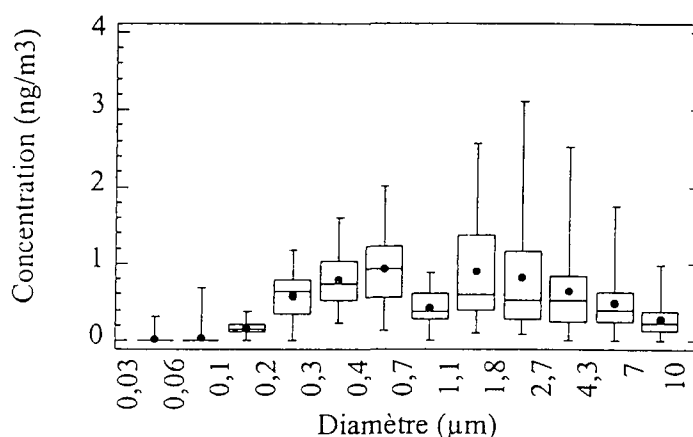
Des éléments tels que le titane présentent des répartitions granulométriques plus uniformes. Ce type de répartition est en général accompagné d'une grande



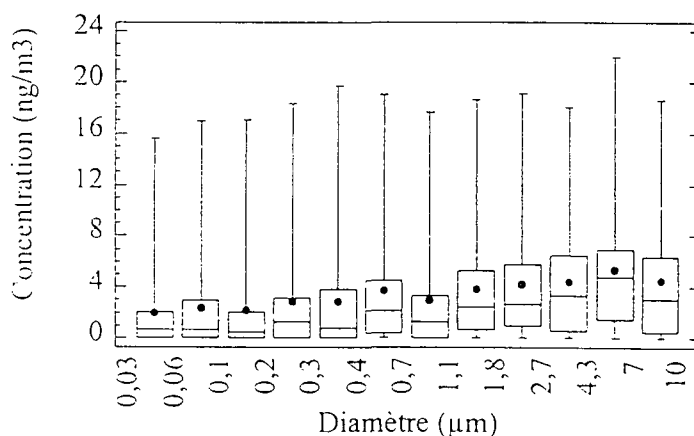
dispersion des niveaux de concentration observés. Un faible nombre d'échantillons hausse la valeur de la moyenne.



**Figure 1 : Répartition granulométrique de Fe**



**Figure 2 : Répartition granulométrique de V**



**Figure 3 : Répartition granulométrique de Ti**

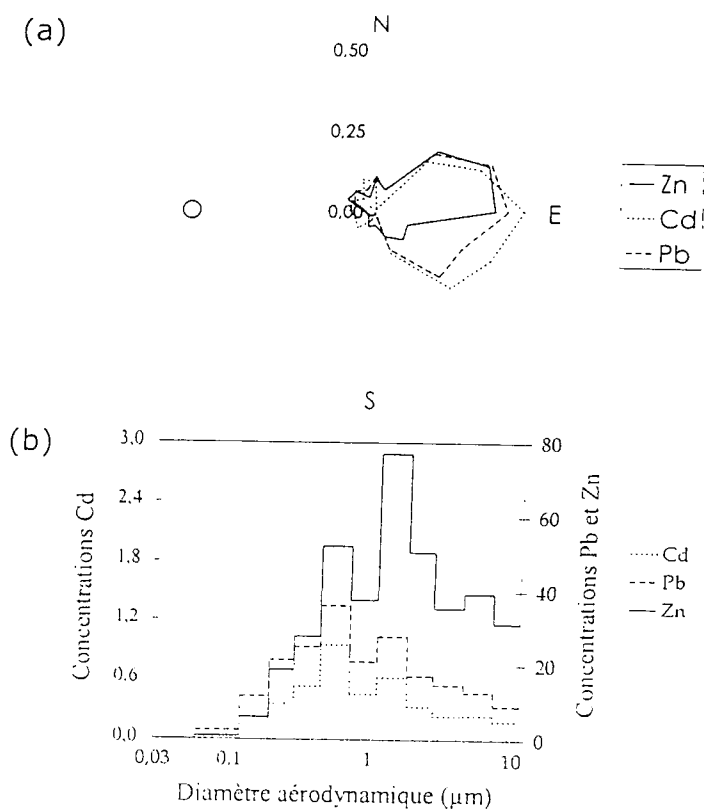
#### Relation éléments/sources

En étudiant à la fois la répartition granulométrique et les concentrations observées en fonction des conditions de vent, nous avons regroupé certains éléments qui possèdent des caractéristiques communes, probablement induites par une source commune.

Pour représenter l'influence du vent sur les concentrations élémentaires, nous avons utilisé des roses de probabilité de pollution. Ces roses représentent la probabilité qu'un échantillon ait une forte concentration pour un élément donné en fonction de la direction du vent. Un échantillon est considéré comme ayant une forte concentration pour un élément donné si sa concentration est supérieure à la somme de la moyenne et de l'écart-type de l'ensemble des concentrations observées pour cet élément. Les répartitions granulométriques sont tracées à l'aide des médianes des concentrations observées dans chaque tranche granulométrique.

*cadmium, plomb, zinc*

La figure 4 regroupe la rose de probabilité de pollution et la répartition granulométrique du cadmium, du plomb et du zinc.



**Figure 4 : (a) roses de probabilité de pollution, (b) répartitions granulométriques (exprimées en  $\text{ng}/\text{m}^3$ ) de Cd, Pb et Zn**

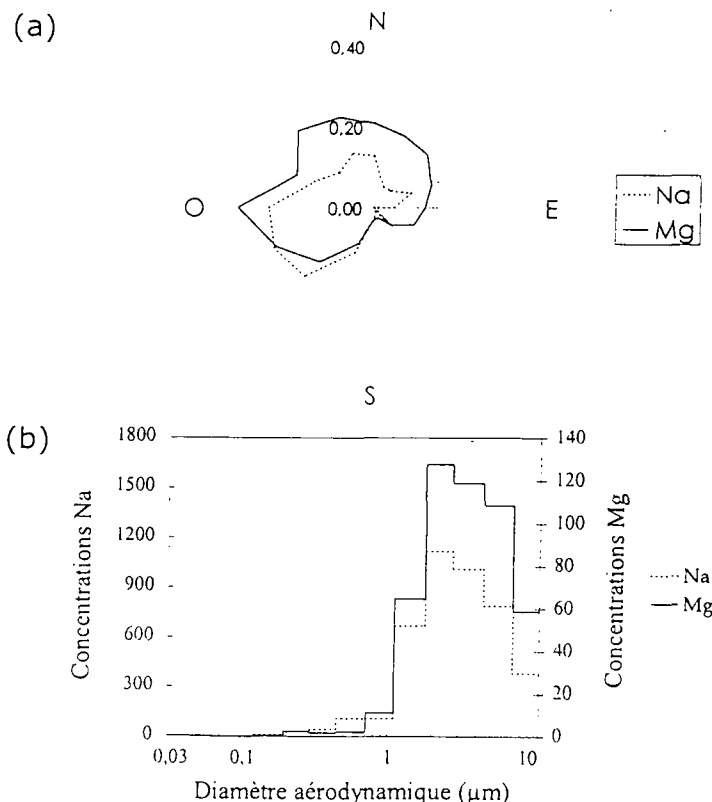
La rose de probabilité de pollution des trois éléments indique la direction est. Ce résultat est cohérent avec la localisation d'une usine de production de plomb et de zinc. Un inventaire de la DRIRE [5] indique que cette industrie rejette aussi des quantités importantes de cadmium.

Les trois éléments sont présents dans les mêmes tranches granulométriques (figure 4b). Deux modes se distinguent centrés autour de 0,6 et 1  $\mu\text{m}$ . La forte concentration de ces éléments dans les fines particules semble indiquer une origine anthropique.

Le zinc se distingue du plomb et du cadmium : sa rose de probabilité de pollution est légèrement décalée vers le nord-nord-est et sa répartition granulométrique possède un mode situé dans le domaine des grosses particules. Ces indices peuvent indiquer soit une source différente de celle(s) du plomb et du cadmium, soit l'existence de plusieurs sources.

*magnésium, sodium*

La figure 5 présente la rose de probabilité de pollution et la répartition granulométrique du magnésium et du sodium.



**Figure 5 : (a) roses de probabilité de pollution, (b) répartitions granulométriques (exprimées en  $\text{ng}/\text{m}^3$ ) de Mg et Na**

La rose des pollutions indique que les échantillons de forte teneur en magnésium et en sodium sont prélevés lorsque le vent vient de l'ouest. La répartition granulométrique de ces éléments montre un mode prédominant centré autour de 4  $\mu\text{m}$ . Ces indices permettent de supposer que le sodium et le magnésium dans nos échantillons a principalement une origine marine.

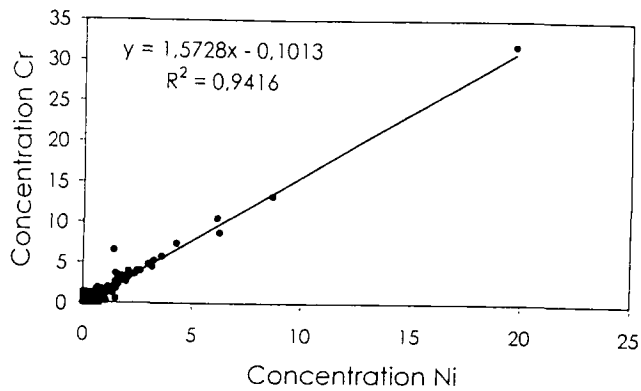
De plus, la régression linéaire du sodium en fonction du magnésium montre une corrélation marquée avec un coefficient de corrélation au carré égal à 0,793. La pente est égale à 8,7. Cette estimation du rapport Na/Mg est très proche de la valeur calculée (8,5) à partir des concentrations en sels mesurées dans l'eau de mer par Wilson [6].

*chrome, nickel*

Le chrome et de nickel montrent, comme le titane, une uniformité de leur granulométrie et une grande variabilité de leurs concentrations. Pour le chrome, par exemple, les valeurs médianes de concentration par tranche granulométrique sont inférieures à 1  $\text{ng}/\text{m}^3$  ; mais les concentrations ont dépassé occasionnellement 7  $\text{ng}/\text{m}^3$  dans la tranche granulométrique comprise entre 0,03 et 0,06  $\mu\text{m}$ , aussi bien que dans celle comprise entre 4,3 et 7  $\mu\text{m}$ .

Une très forte corrélation existe entre ces deux éléments, comme le montre la figure 6. Les roses de probabilité de pollution du chrome et du nickel ne sont pas représentées ici ; elles pointent clairement la direction du sud-ouest. La source de ces éléments pourrait être une cokerie située dans cette direction. La présence de

nickel dans les combustibles fossiles (charbon et pétrole) corrobore cette hypothèse.



**Figure 6 : Régression linéaire entre les concentrations de Cr et de Ni (exprimées en ng/m<sup>3</sup>)**

## Conclusion

Les particules en suspension dans un environnement urbain influencé par l'industrie ont été prélevées pendant une période de 8 mois afin de caractériser leur composition chimique élémentaire et leur granulométrie. Ces travaux ont fourni des concentrations similaires à celles observées dans d'autres villes d'Europe et ont permis de mettre en évidence plusieurs types de comportements granulométriques.

L'étude de la répartition granulométrique et de l'influence des conditions de vent a permis de regrouper certains éléments ayant des comportements semblables. Nous avons pu émettre une hypothèse sur l'origine possible de ces éléments :

- Cd, Pb et Zn ont été associés à une usine de production de Plomb et de Zinc,
- Mg et Na sont probablement des traceurs de l'aérosol marin,
- Cr et Ni ont été attribués aux activités d'une cokerie.

Dans la suite de cette étude, nous projetons d'approfondir les relations entre les concentrations mesurées sur le site de prélèvement et les sources qui l'entourent à l'aide de modèles de type récepteur.

## Bibliographie

1. Dreher, K.L., et al., *Soluble transition metals mediate residual oil fly ash induced acute lung injury*. Journal of Toxicology and Environmental Health, 1997. **50**: p. 285-305.
2. Pope, C.A.I., D.W. Dockery, and J. Schwartz, *Review of epidemiological evidence of health effects of particulate air pollution*. Inhalation Toxicology, 1995. **7**: p. 1-18.
3. Robache, A., et al. *Une méthode pour caractériser la chimie élémentaire et la granulométrie de la matière particulaire urbaine*. in CFA 98. 1998. Paris.
4. Lee, D.S., J.A. Garland, and A.A. Fox, *Atmospheric concentration of trace elements in urban areas of the united kingdom*. Atmospheric Environment, 1994. **28**(16): p. 2691-2713.
5. DRIRE, N.-P.-d.-C., *L'industrie au regard de l'environnement en 1996*, . 1997, Direction Régionale de l'Industrie, de la Recherche et de l'Environnement: Douai.
6. Wilson, T.R.S., *Salinity and major elements of sea water*, in *Chemical oceanography*, J.P. Riley and G. Skirrow, Editors. 1975, Academic Press: London. p. 365-413.

# MESURES DE PM 2.5 ET PM 10 AU BASSIN DE LA RUHR, ALLEMAGNE

A.C. JOHN, T.A.J. KUHLBUSCH, H. FISSAN, H.-U. PFEFFER ‡, D. GLADTKE ‡

Technologie de la mesure des procédés et des aérosols, Université de Duisburg, Bismarckstr. 81, 47057 Duisburg, Allemagne; email: johnas@uni-duisburg.de

‡ Landesumweltamt Nordrhein-Westfalen (Office gouvernemental de l'environnement du Rhénanie du Nord-Westfalie), Essen, Allemagne

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 responsables des effets sur la santé. Les catégories les plus importantes sont les "particules respirables" d'un diamètre aérodynamique inférieur à 10  $\mu\text{m}$  (PM 10) et les "particules alvéolaires" inférieures à 2.5  $\mu\text{m}$  (PM 2.5). Ces études récentes ont mené à la "Council Directive 1999/30/EC of 22 April 1999 relating to limit values for sulphur dioxide, nitrogen dioxide and oxides of nitrogen, particulate matter and lead in ambient air" qui réglemente le monitoring de PM 10 et PM 2.5, ce qui remplacera les mesures des particules en suspension totales (PST).

Comme des estimations indiquent qu'il y aura des difficultés à tenir ces limites, le projet "Etudes sur des aérosols atmosphériques et leur composition chimique" a été initié dont les objectifs 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, des diverses techniques sont utilisées (voir Fig. 1).

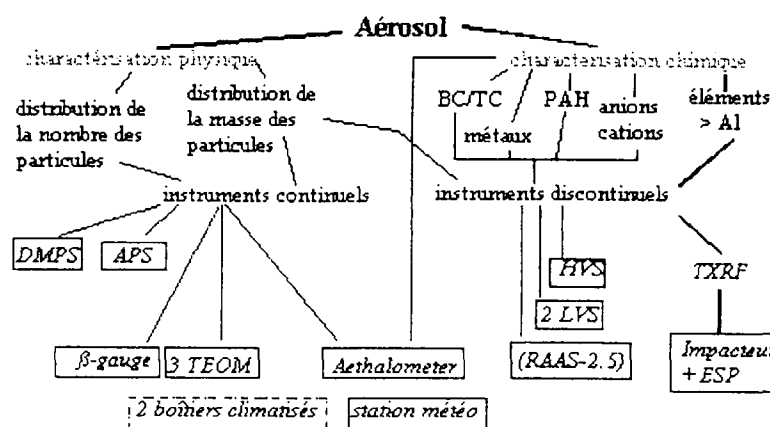


Fig. 1: Tableau des instruments employés

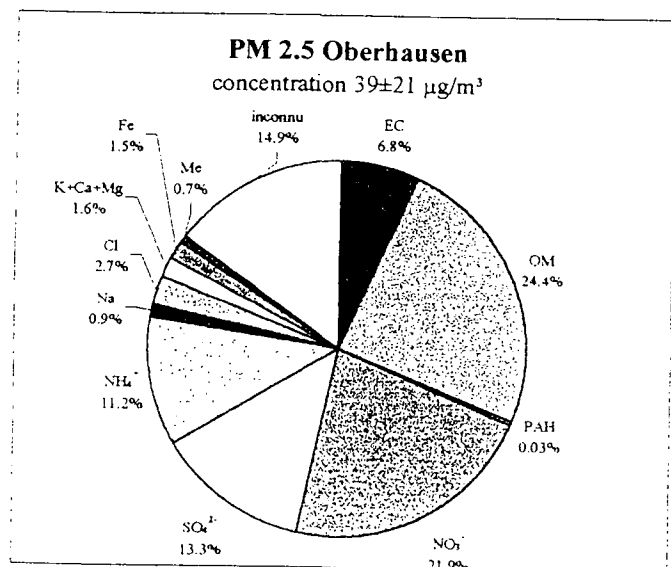
Pour mesurer la distribution numérique en tailles, un DMPS (Differential Mobility Particle Sizer) et un APS (Aerodynamic Particle Sizer) pour les particules de 30 nm à 1  $\mu\text{m}$  et de 1  $\mu\text{m}$  à 15  $\mu\text{m}$ , respectivement, sont utilisés. Pour déterminer la concentration en masse, un gauge  $\beta$ -PST) et des TEOM (PM 10 et PM 2.5) sont utilisés comme instruments de mesures en continu. La masse des particules est également déterminée avec des préleveurs à filtres PM 10 et PM 2.5 (HVS, LVS, RAAS). De ces filtres, la composition chimique (métaux, suie, HAP, anions et cations) des aérosols est déterminée. Comme méthode continue, un aethalomètre pour la concentration de la suie est employé, et un impacteur / précipitateur électrostatique fait la collection des fractions de taille 10 - 2.5  $\mu\text{m}$ , 2.5 - 1  $\mu\text{m}$  et < 1  $\mu\text{m}$  de diamètre aérodynamique pour l'analyse élémentaire avec la spectrométrie à fluorescence de rayons X en réflexion totale (TXRF).

Des campagnes de mesures ont été conduites à une station rurale, une station urbaine (zone résidentielle), une station urbaine (zone industrielle) et une station de trafic. Le Tableau 1 résume les données des 5 campagnes.

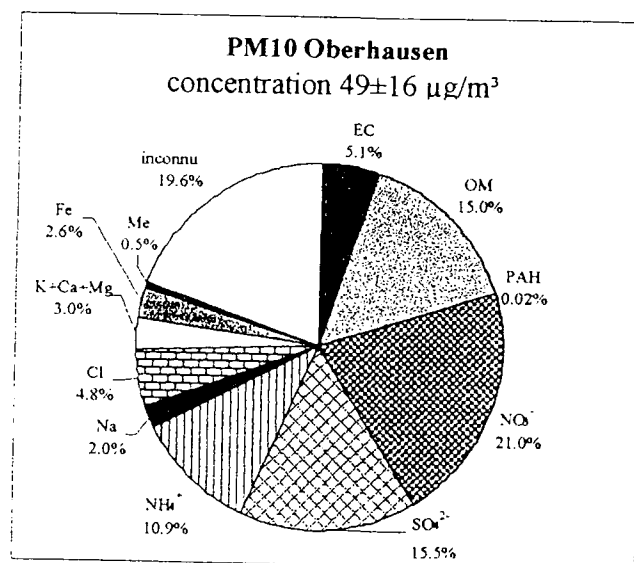
**Tab. 1:** Données de 4 campagnes de mesures

	PM 2.5 PM 10 [ $\mu\text{g}/\text{Nm}^3$ ]		dépassements jours/campagne jours par an		PM 2.5 / PM 10
<i>station rurale</i> 01/09 - 17/10/97	24 ± 21	37 ± 26	7 / 41	62	0,63 ± 0,18
<i>station rurale</i> 09/07-03/08/98	20 ± 7	31 ± 10	2 / 26	28	0,63 ± 0,13
<i>station urbaine</i> (zone résidentielle) 11/02-11/03/98	38 ± 20	46 ± 20	9 / 23	143	0,74 ± 0,11
<i>station urbaine</i> (zone industrielle) 07/10-06/11/98	19 ± 7	29 ± 8	0 / 29	0	0,64 ± 0,12
<i>station trafic</i> 08/11-01/12/99					

Les campagnes ont montrées que sans doute, ce n'est pas possible de tenir les limites de 40  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  PM 10 (valeur moyenne annuelle) pour toutes les stations. Ce qui posera encore plus de problèmes, c'est le nombre des dépassements des valeurs moyennes journalières dont la limite est 35 dépassements par an de 50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Si ces limites sont dépassées, on devra faire des "plans d'action" pour réduire la concentration des particules. Une grande partie (63% - 74 %) de la masse PM 10 se trouve déjà dans la fraction PM 2.5. Comme exemple de la caractérisation chimique, les figures 2+3 montrent les compositions moyennes



**Fig. 2:** Composition chimique de la fraction PM 2.5, station urbaine (zone résidentielle)



**Fig. 3:** Composition chimique de la fraction PM 10, station urbaine (zone résidentielle)

des fractions PM 10 et PM 2.5 pour la station urbaine (zone résidentielle). Les particules secondaires (sulfate, nitrate et ammonium) sont responsables de presque la moitié de la masse

PM 2.5 et PM 10. La suie et la matière organique font environ un tiers (PM 2.5) et 20 % (PM 10) de la masse. Le reste est composé des métaux comme le fer et des ions comme le sodium et le chlore et une fraction inconnue des substances qui n'étaient pas analysées comme par exemple la silice. Comme exemple récent des mesures fractionnées des particules, des résultats de la cinquième campagne sont donnés. La fig. 4 montre les concentrations de calcium pour les fractions de taille 10-2.5  $\mu\text{m}$ , 2.5-1  $\mu\text{m}$  et < 1  $\mu\text{m}$  qui étaient collectées par l'impacteur combiné avec ESP et analysées par la TXRF. On obtient des faibles concentrations pour la fraction la plus petite et des concentrations plus élevées pour la fraction moyenne. La plupart de la masse de calcium se trouve dans la fraction des grosses particules. Cette campagne s'est déroulée à la station trafic qui était très influencée par un chantier de construction d'un bâtiment en face de la station de mesures pendant le temps de ces mesures.

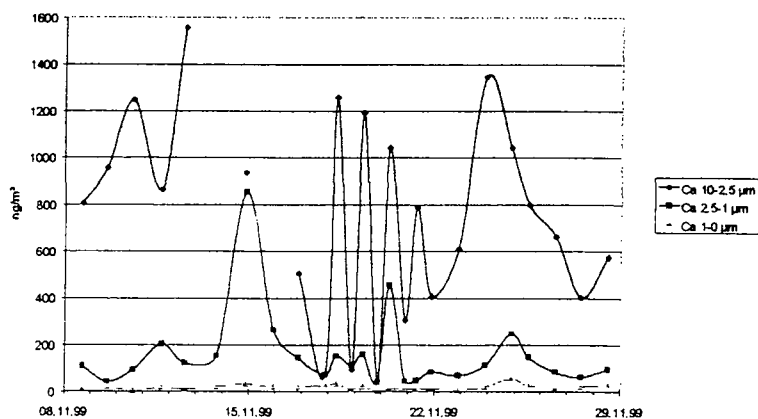


Fig. 4: Concentrations de calcium, station trafic

Entre le 18/11/99 et le 21/11/99, des échantillons étaient pris à 6 heures du matin et à 8 heures du soir. On peut observer de très grandes différences entre le jour et la nuit pour la fraction 10-2.5  $\mu\text{m}$ , des variations moins distinctes pour la fraction 2.5-1  $\mu\text{m}$  et pas d'influence sur les particules fines.

Comme exemple pour un élément des aérosols secondaires, les concentrations du soufre pour le même espace de temps sont présentées (Fig. 5). La plupart du soufre se trouve dans la fraction < 1  $\mu\text{m}$  et on obtient des masses comparables dans les fractions 10-2.5  $\mu\text{m}$  et 2.5-1  $\mu\text{m}$ . Comme prévu, on n'observe pas de variations diurnes pour la concentration des petites particules qui peuvent rester longtemps dans l'atmosphère. Au contraire, il y a des différences jour / nuit pour les particules plus grosses dont la durée de vie est plus courte.

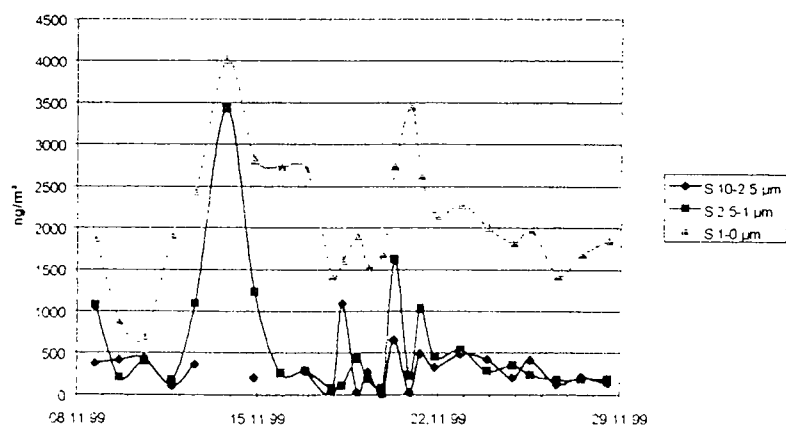


Figure 5 Concentration du soufre en fonction du trafic

Comme les instruments de mesure en continu qui sont utilisés donnent une très grande résolution temporaire des données, on peut calculer les variations diurnes. Les Fig. 6-8 montrent les "jours ouvrables moyens" pendant la première campagne à la station rurale pour les concentrations de PM 2.5 (enregistré avec le TEOM), de la suie et de la relation entre la suie et PM 2.5. On peut observer des variations distinctes avec les concentrations PM 2.5 les plus basses pendant la nuit, l'augmentation le matin et le maximum à 10 heures environ. Après, il y a une diminution jusqu'à 15 heures et un second maximum à 8 heures du soir avant que les concentrations de nuit soient atteintes (Fig. 6).

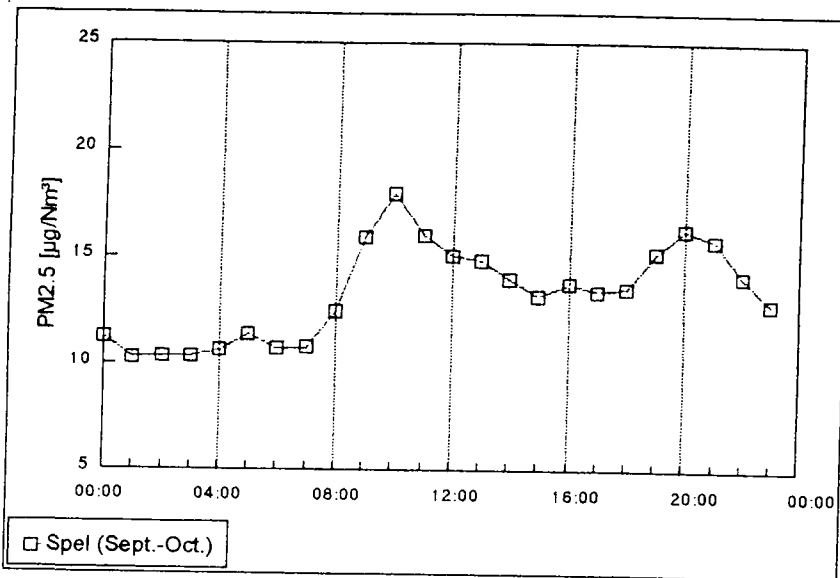


Fig. 6: Variations diurnes de la concentration de PM 2.5, jours ouvrables, station rurale

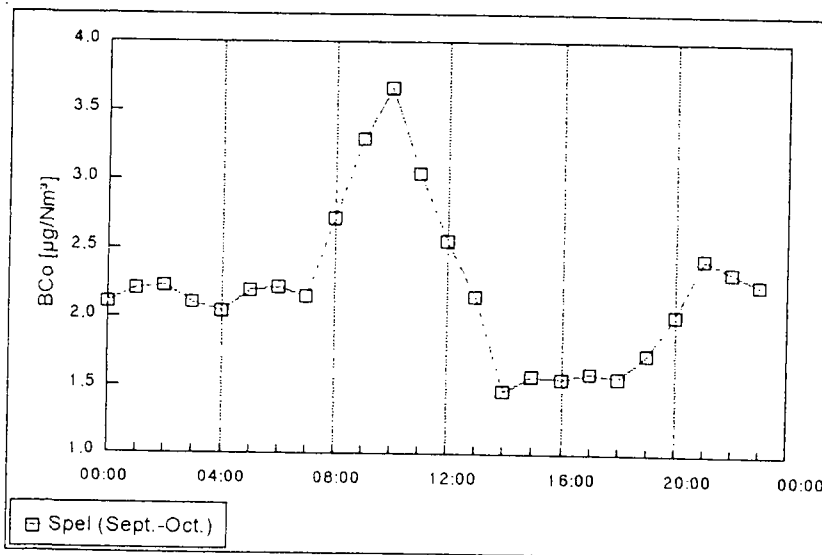


Fig. 7: Variations diurnes de la concentration de la suie, jours ouvrables, station rurale

Pour la suie (Fig. 7), les variations diurnes sont similaires, c'est-à-dire des concentrations basses pendant la nuit, une augmentation pendant la matinée avec le maximum à 10 heures environ, après la diminution et le minimum l'après-midi et encore une augmentation vers le soir. Les variations diurnes de la suie sont comparables aux variations du trafic où il y a aussi un minimum pendant la nuit, des maximums vers 7-8 heures et 17-18 heures et un nombre moyen entre 11 heures et 15 heures. Comme la concentration de suie la plus élevée est atteinte



seulement à 10 heures à la station rurale, c'est un indicateur que le transport de ce polluant jusqu'à cette région prend environ 2 heures. Au contraire, il n'y a pas de maximum distinct le soir, et ce qui est également intéressant, ce sont les concentrations de suie qui sont plus basses pendant l'après-midi que pendant la nuit. Comme il n'y a pas plus de trafic pendant la nuit que pendant la journée, ce phénomène doit avoir d'autres raisons. L'interprétation, c'est la variation diurne de la zone dans laquelle l'air peut se mélanger ("mixing height") quelle atteint le maximum l'après-midi, c'est-à-dire que les polluants sont plus dilués.

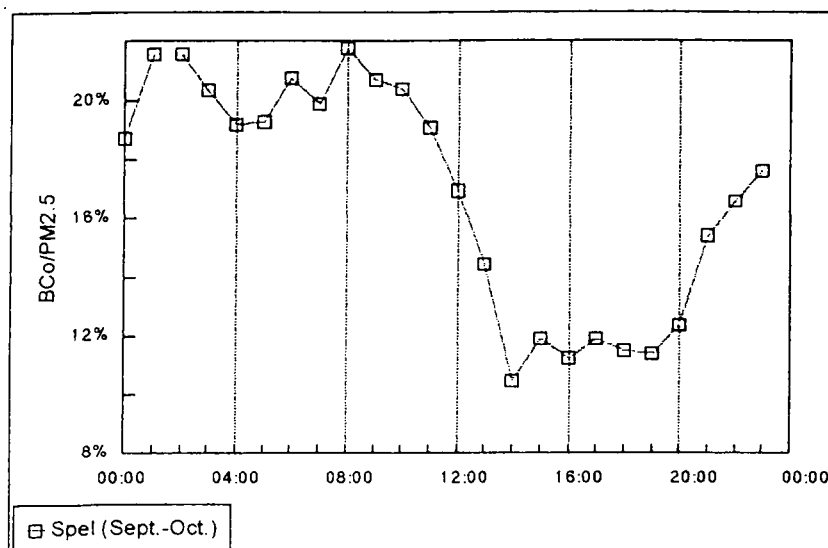


Fig. 8: Variations diurnes de la relation suie / PM 2.5, jours ouvrables, station rurale

Ce qu'on peut observer aussi, ce sont des variations diurnes de la composition chimique. La relation entre la concentration de suie et la masse PM 2.5 est la plus élevée pendant la nuit et diminue vers midi. C'est-à-dire qu'il y a d'autres sources de particules qui prennent de l'influence au cours de la journée comme p.ex. les aérosols secondaires ou du matériel du sol qui est soulevé quand la vitesse du vent atteint le maximum l'après-midi. Etant donné que l'après-midi, on peut observer le minimum absolu de la suie, mais pas de la concentration de la masse, la dilution de l'air est compensée par les autres sources des particules.

Comme dernier exemple, les concentrations de la masse PM 2.5 et PM 10 pour la période de 08/07 à 05/08/98 sont montrées dans la Fig. 9. On peut distinguer 3 épisodes où les concentrations de PM 10 excèdent les 50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Les analyses des ces épisodes ont mis en évidence qu'il y a des raisons différentes pour les dépassements. Pendant la première et la troisième épisode, la valeur de la relation PM 2.5 / PM 10 était plus élevée, comparée à la moyenne. Les ions ont formé plus de masse PM 10 (augmentation de nitrate et ammonium, mais diminution de sulfate) que pendant le reste de la période. Au contraire, le pourcentage de la suie et des métaux fer et zinc et calcium et magnésium a diminué. La vitesse du vent était inférieure à la moyenne, aussi bien que la distance que l'air a parcourue pendant les 24 heures avant d'arriver à la station. Pendant la deuxième épisode, les conditions étaient différentes. Le pourcentage de PM 2.5 à la masse de PM 10 a diminué aussi bien que la partie ionique (nitrate, ammonium et sulfate) de la fraction PM 10. La suie et les éléments fer, zinc, calcium et magnésium étaient plus élevés que la moyenne. Bien que la vitesse du vent à la station se trouvait au-dessous de la valeur moyenne, l'air a parcouru beaucoup plus de kilomètres que normalement, c'est-à-dire qu'il y avait eu une grande vitesse de vent qui a soulevé des particules avant d'arriver à la station. Contrairement aux autres épisodes qui étaient formées d'une grande partie des particules secondaires, les sources de cette deuxième épisode consistaient surtout des particules primaires.

### PMx Mass Concentrations Spellen (8.7.-5.8.1998)

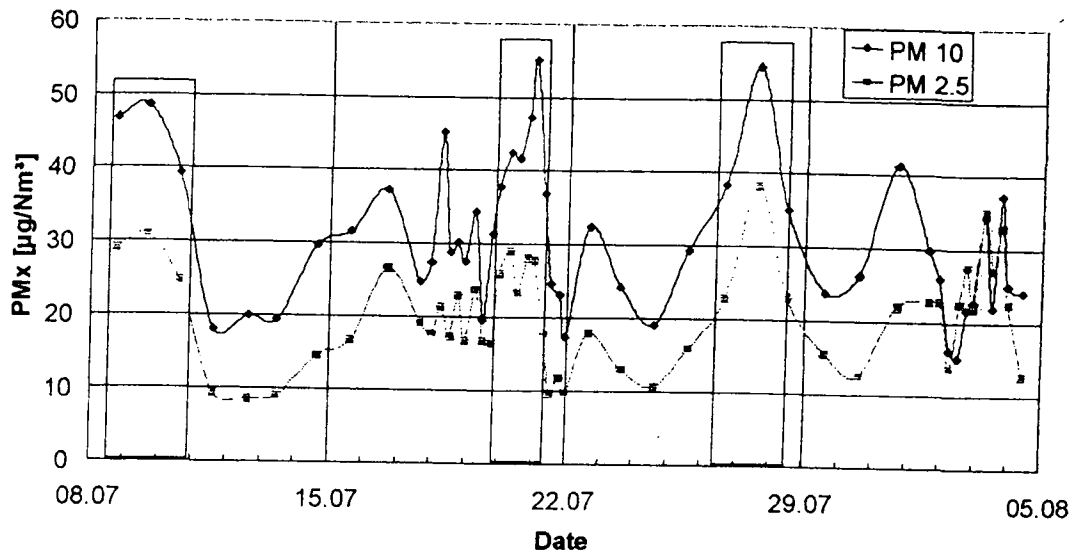


Fig. 9: Concentrations de la masse PM 2.5 et PM 10, station rurale

#### Conclusions

Les mesures à des endroits différents dans le bassin de la Ruhr en Allemagne ont mis en évidence qu'il y aura des difficultés de tenir les limites de la "daughter directive" de l'Union Européenne concernant les concentrations de la masse de PM 10. C'est-à-dire qu'il faut faire des "plans d'action" et prendre des mesures pour réduire ces concentrations. Pour cela, on doit connaître les sources des particules et les processus qui sont responsables pour les excès. Dans le projet "Etudes sur des aérosols atmosphériques et leur composition chimique", nous avons entre autres déterminé la masse des fractions PM 10 et PM 2.5 et la composition chimique en fonction de la taille des particules. Des processus qui mènent à des variations diurnes de la concentration et la composition de l'aérosol ont été identifiés aussi bien que des différentes conditions qui ont mené à des épisodes de concentrations élevées.

15<sup>ème</sup> CONGRES FRANCAIS SUR LES AEROSOLS  
ASFERA, 8 et 9 décembre 1999 - PARIS

*Mise au point d'un réacteur à flux continu d'aérosols, pour l'étude de réactions chimiques hétérogènes.*

O.LE BIHAN, F.CALUZ, A.ALLANIC, M.ROSSI.

Laboratoire de Pollution de l'Atmosphère,  
Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne  
CH-1015 Ecublens  
olivier.lebihan@epfl.ch

## RESUME

Dans le cadre de l'étude de la chimie de l'atmosphère, il est nécessaire de prendre en compte les interactions entre la phase gazeuse et la phase condensée. Ce domaine, nommé chimie hétérogène, considère la relation entre gaz et aérosol, et tout particulièrement ses conséquences du point de vue des réactions chimiques.

Le mécanisme de création du trou d'ozone constitue une illustration très connue de ces phénomènes.

La compréhension et la prédiction des cycles chimiques de l'atmosphère passe par la détermination des espèces pouvant être produites, et des cinétiques associées.

Le principe classique d'une étude consiste à mettre en présence dans un réacteur basse pression, un gaz et une surface modèle, représentative d'un aérosol donné (ex. : cellule de Knudsen).

Ce type d'étude ayant permis d'explorer une grande partie du système atmosphérique, on cherche désormais à mettre au point des réacteurs plus représentatifs des conditions environnementales, notamment en terme de pression, de phase condensée, et de vapeur d'eau.

Cette communication a pour objectif de présenter le réacteur à flux continu d'aérosol en cours de mise au point au sein du groupe de Chimie hétérogène du Laboratoire de Pollution de l'Atmosphère de l'EPFL.

Il consiste en un cylindre de verre de 120 cm par 7.5 cm. Les essais portent sur un aérosol de NaCl, produit à l'aide d'un atomiseur de type TSI et caractérisé par un système SMPS.

Le gaz est injecté dans le réacteur à différentes positions. Ceci permet de faire varier le temps de résidence (de 20 s à 100 s), et ainsi de déterminer la cinétique de la réaction.

Cet ensemble nous permet ainsi d'étudier des réactions dont la probabilité de collision réactive  $\gamma$  se situe entre  $10^{-1}$  et  $10^{-3}$ .

## ABSTRACT

Heterogeneous chemistry considers interactions between condensed phase and gas phase, in the field of atmospheric chemistry. Studies are focused on products and kinetics of reactions.

The main reactors are low pressure cells such as Knudsen cell, using model surfaces.

This talk will describe the last progress in the setting-up of a new kind of reactor, a continuous aerosol flow reactor which principal interests in design are the use of water vapor, atmospheric pressure and aerosol.

Such a reactor has been developed by LPAS (Laboratoire de Pollution de l'Atmosphère, EPFL). NaCl aerosol are produced by atomisation, and measured with a SMPS. Using a movable injector, the residence time of the reactive varies between 20s to 100s and kinetics can be studied for reaction probability from  $10^{-1}$  to  $10^{-3}$ .

Last inputs are described in this contribution.

## 1. Principe et enjeux de la chimie hétérogène

Dans le cadre des sciences de l'atmosphère, les mesures de terrain connaissent des limites en terme de pas de temps, sensibilité de la mesure, spécification de la mesure, etc.

Une démarche classique consiste alors à simplifier la réalité du terrain à travers l'utilisation d'un réacteur ; une grande partie des paramètres étant connus et maîtrisés, on cherchera alors à tester des hypothèses, à caractériser des phénomènes élémentaires.

Le principe de la chimie hétérogène trouve ici tout son sens (schéma 1) ; il s'agit de mettre en présence deux composés chimiques (la réaction est ainsi « isolée »), l'un en phase gaz, l'autre en phase condensée, et :

- 1/ identifier les produits ;
- 2/ déterminer les cinétiques chimiques (et donc quantifier les différentes réactions chimiques possibles l'une par rapport à l'autre)
- 3/ étudier les mécanismes ; cette étape est particulièrement importante car elle doit contribuer à évaluer la représentativité des conditions du réacteur par rapport aux conditions réelles.

## 2. Réaliser un nouvel outil : le réacteur à flux continu d'aérosol

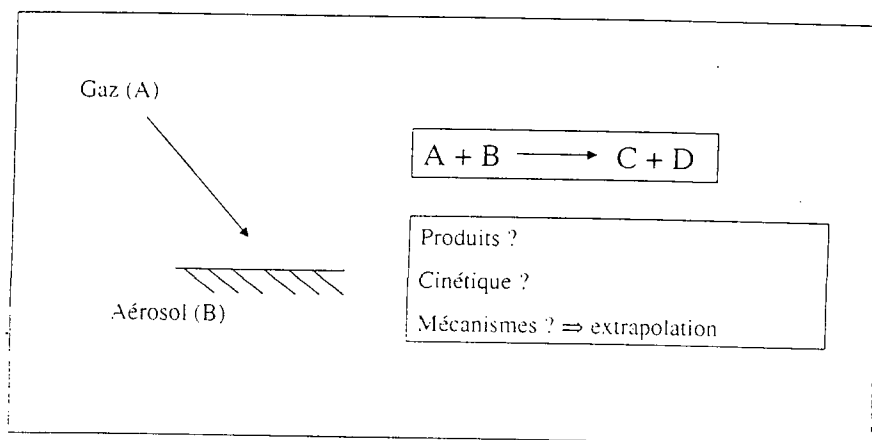


Schéma 1

Historiquement, des systèmes comme la cellule de Knudsen ou les tubes à diffusion ont eu et continuent d'avoir un rôle majeur en chimie hétérogène (cf. le site Web du groupe : <http://dgrwww.epfl.ch/PAS/hetchem/>).

La méthode est simple : par le biais de la basse pression, il est possible de confronter seul à seul les deux réactifs.

Ces installations se sont avérées particulièrement efficaces : elles ont permis et permettent d'aborder tout un ensemble de systèmes chimiques.

On cherche désormais à prendre en compte des paramètres complémentaires. C'est tout particulièrement le cas de la vapeur d'eau, puisqu'elle est potentiellement à même de modifier considérablement les résultats obtenus en milieu « sec ».

Le niveau de simplification doit donc être modifié : c'est toute la raison d'être de notre projet.

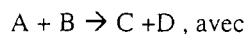
Il s'agit ici de mettre à la disposition du Groupe de Chimie Hétérogène du LPA, un réacteur travaillant :

- ✓ À pression atmosphérique ;
- ✓ A humidité relative non nulle, et maîtrisée ;
- ✓ A l'aide non pas de surfaces modèles mais d'aérosols.

## 2.1. Principe de fonctionnement du réacteur

### 2.1.1. La probabilité de capture

Nous considérons dans un premier temps le cas de cinétique chimique de premier ordre, c'est à dire de type :



$$\frac{d[A]}{dt} = -k(1).[A] \quad \text{formule(I)}$$

On appelle probabilité de collage ( $\gamma$ ) la probabilité de prélèvement de molécules de la phase gaz vers la phase condensée. Ceci comprend deux mécanismes : dépôt sur les particules d'aérosol avec ou sans réaction.

Dans notre cas, la relation entre constante de décroissance et probabilité de collage est exprimée selon la formule simplifiée (*Baker, 98, Abbat, 98.*) :

$$k(1) = \gamma_r (\omega/4) S/V \quad \text{formule(II)}$$

Avec,

$$\tau = 1/k(1) \quad \text{formule(III)}$$

$k(1)$  : constante de décroissance du premier ordre ( $s^{-1}$ )

$\gamma_r$  : probabilité de collage (sans dimension)

$\omega$  : vitesse moyenne de déplacement thermique du gaz réactif ( $cm.s^{-1}$ )

$S/V$  : rapport surface sur volume de l'aérosol ( $cm^2/cm^3$ )

$\tau$  : temps de demi-vie (s)

### 2.1.2. Le rendement :

Une fois le coefficient de collage déterminé, il s'agit de dissocier la part due à un simple dépôt sur la particule, de celle ayant réagi.

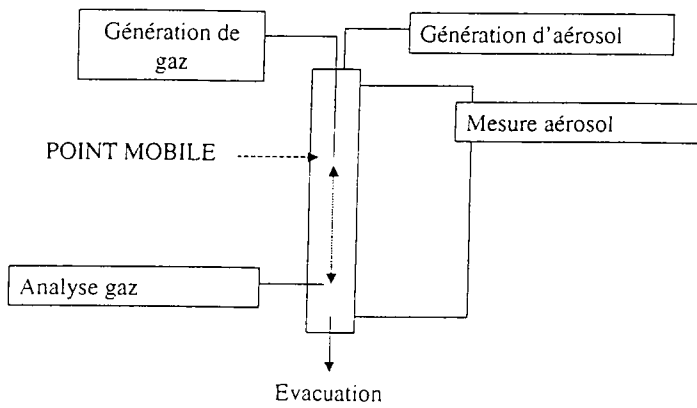
Cette distinction est généralement basée sur la mesure d'un produit en phase gazeuse.

### 2.1.3. Schéma de principe

Le schéma 2 synthétise notre projet, dont les objectifs sont les suivants :

- Assurer la production des réactifs (gaz, aérosol) ;
- Assurer leur mélange ;
- Faire varier le temps de résidence du gaz en présence de l'aérosol, afin d'en extraire la constante de décroissance ;
- Réaliser la mesure de la surface des aérosols et de la concentration en gaz.

Schéma 2



2.1.4. Résultat type :

Pour un type de surface donné, l'augmentation du temps de résidence entraîne la diminution du signal, suivant la fonction :

$$[A] = \text{const.} \exp[-k(1).t]$$

Dans un premier temps, seul est perçu l'effet sur la paroi du réacteur : celle-ci représente une surface bien plus importante que celle de l'aérosol, mais est normalement non réactive.

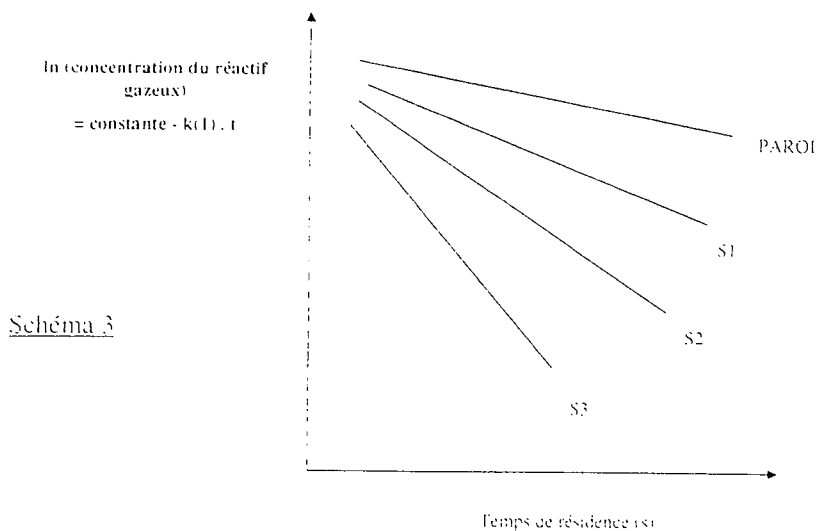


Schéma 3

Par la suite, la présence puis l'augmentation de la surface en aérosol ( $S_1 < S_2 < S_3$ ), entraîne un accroissement de la constante de décroissance.

### 2.1.5. Dimensionnement du réacteur :

La gamme des probabilités de capture que nous pouvons étudier, est déterminée par deux paramètres (formule (I)) :

1/ la concentration en surface d'aérosol : la surface d'aérosol a pour limite supérieure la surface maximale que nous puissions produire, en garantissant une stabilité de plusieurs heures ; dans notre cas, elle est de l'ordre de  $0.02 \text{ cm}^2/\text{cm}^3$ .

La limite inférieure ne se situe pas au niveau de l'aérosol lui-même dans la mesure où la diminution en concentration de sel dans la solution de l'atomiseur, peut être diminuée ; l'élément limitant est constitué par la surface de la paroi ; celle-ci – en principe non réactive – doit avoir un effet réduit par rapport à la surface de l'aérosol.

2/ le débit dans le réacteur (et donc le temps de résidence, formule (III)) : le fonctionnement optimum du réacteur se situe au dessous de débits de l'ordre de 5 l/min, ce qui correspond aux débits des générateurs d'aérosol.

Le temps de résidence du gaz réactif va de quelques secondes à un maximum d'une centaine de secondes.

Tout ceci fait que la zone optimale d'exploitation de notre réacteur se situe autour de probabilité de capture de l'ordre de **0.01 – 0.1**.

## 3. Application à la réaction $\text{N}_2\text{O}_5 + \text{NaCl}$

### 3.1. Contexte

3.1.1. La réaction de  $\text{N}_2\text{O}_5$  sur les aérosols marins déliquescents, n'est pas une voie terminale

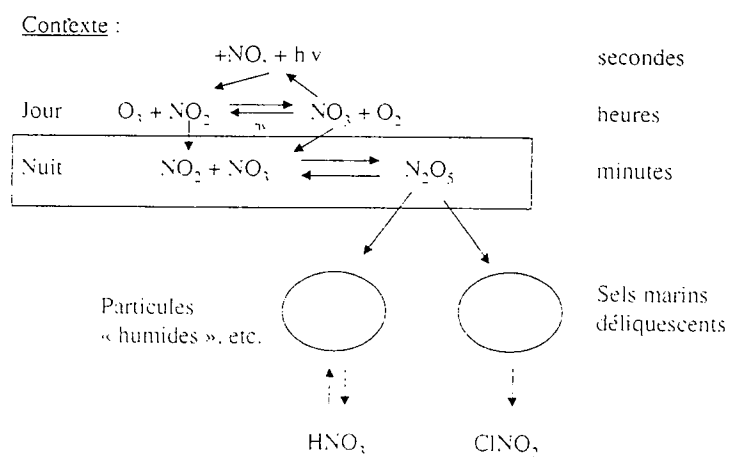


Schéma 4

Un temps, la réaction hétérogène de  $\text{N}_2\text{O}_5$  sur les surfaces humides de particules d'aérosols (schéma 4), a été considérée comme une branche terminale du cycle des  $\text{NO}_x$  (Platt *et al.*, 1984 ; Russell *et al.*, 1985).

Puis il a été montré que la réaction de  $\text{N}_2\text{O}_5$  sur des « dry bulk surface » de NaCl, produisait un composé gazeux,  $\text{ClNO}_2$  (Finlayson-Pitts *et al.*, 1989).

Cependant, la majeure partie de l'aérosol marin se trouve sous forme liquide, ce qui implique que ces expériences soient menées à un niveau d'humidité relative conséquent.

Une approche en ce sens a été menée par Behnke et collègues (*Behnke et al, 1997*), à l'aide d'un chambre type « smog chamber » et d'un « wetted-wall flow tube » ; elle a permis la confirmation de la production de ClNO<sub>2</sub>, ici à humidité relative élevée.

Plus récemment enfin, Karlsson et Ljungström (*Karlsson et Ljungström, 98*) ont réalisé une étude à l'aide d'un réacteur à flux continu avec mesure par dénudeurs. Leur observation a montré la même répartition entre d'une part la simple hydrolyse et d'autre part la production de ClNO<sub>2</sub>, tout ceci dans une gamme de concentration plus réaliste (au dessous du ppm). Par contre, cette étude ne porte pas sur la cinétique de la réaction. Ce point du travail de Behnke reste donc à confirmer.

### 3.1.2. Ordres de grandeur :

Le tableau ci-dessous regroupe les résultats de divers travaux. Comme on peut le constater, la probabilité de capture se situe d'après Behnke au dessus de 0.01.

Plus précisément, Hanson estime que la voie strictement humide (pas de sel) mène à une probabilité située entre 0.06 et 0.12.

Auteurs	réaction	k (s <sup>-1</sup> )	γ
Hanson 98	N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> + H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> + H <sub>2</sub> O 60 – 80 % HR	0.2 – 0.6	0.06 – 0.12 prédominance de l'hydrolyse
Hanson 97	N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> + H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> + H <sub>2</sub> O		0.1
Behnke 94	N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> + H <sub>2</sub> O N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> + NaCl		> 0.01

## 3.2. Mise en oeuvre

### 3.2.1. Source de gaz réactif

La source consiste en un piège maintenu à très basse température, ce qui permet ainsi de stocker le réactif sous forme solide (schéma 5). Un flux d'azote traverse le piège et entraîne la phase gazeuse issue de l'équilibre phase solide/phase gaz.

La croissance de la pression de vapeur de N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> en fonction de la température étant de type exponentiel, la stabilité de la température du piège est essentielle pour disposer d'une source continue sur une heure et plus.

### 3.2.2. régime d'écoulement

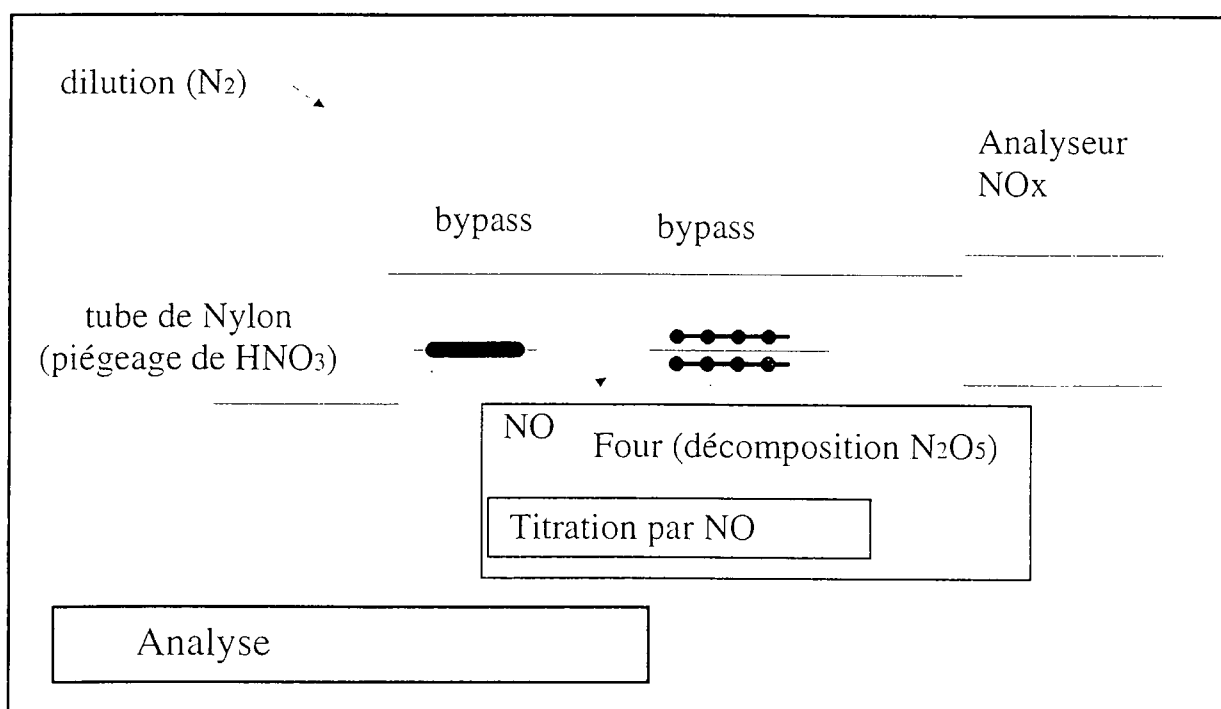
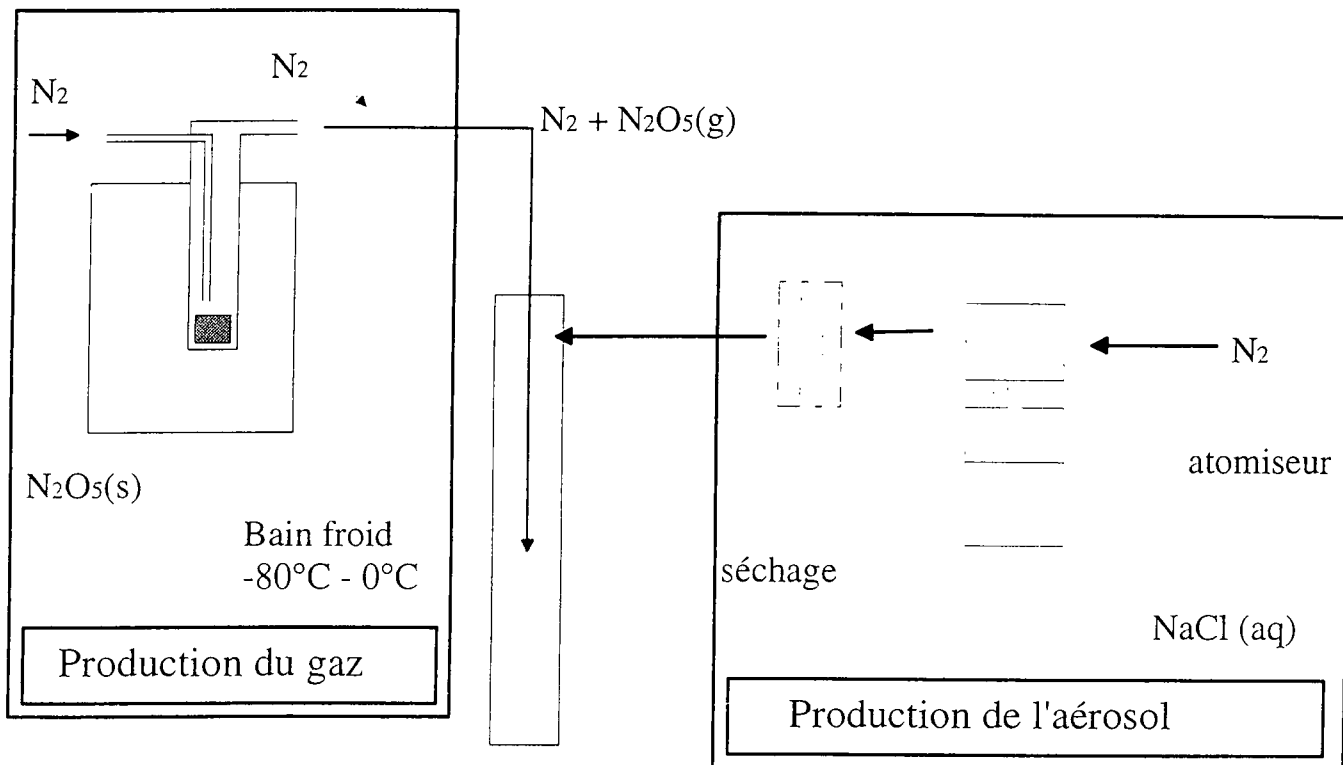
Divers critères comme celui d'une taille réduite du réacteur, ont mené au choix d'un travail en régime laminaire. Les dimensions du tube (7.5 cm \* 120 cm) assurent un nombre de Reynolds inférieur à 100, nos débits ne dépassant pas 5 l/min : l'écoulement est donc tout à fait laminaire (Re << 1200).

Afin d'étudier les caractéristiques du mélange du gaz réactif dans le flux principal d'aérosol, nous avons procédé à l'injection d'un gaz non-réactif et de concentration connue (bouteilles calibrées), le NO<sub>2</sub>, introduit par le biais de l'injecteur.

Les mesures effectuées (schéma 6) ont permis de montrer que l'injection de NO<sub>2</sub> dans le réacteur sépare celui-ci en deux zones : tout d'abord, nous observons un cône que nous caractérisons « de dilution » : il correspond tout simplement au mélange du gaz dans le flux principal et correspond globalement à un temps de résidence de 20 s : Ensuite, nous nous situons dans une zone de concentration homogène.



# Schéma 5



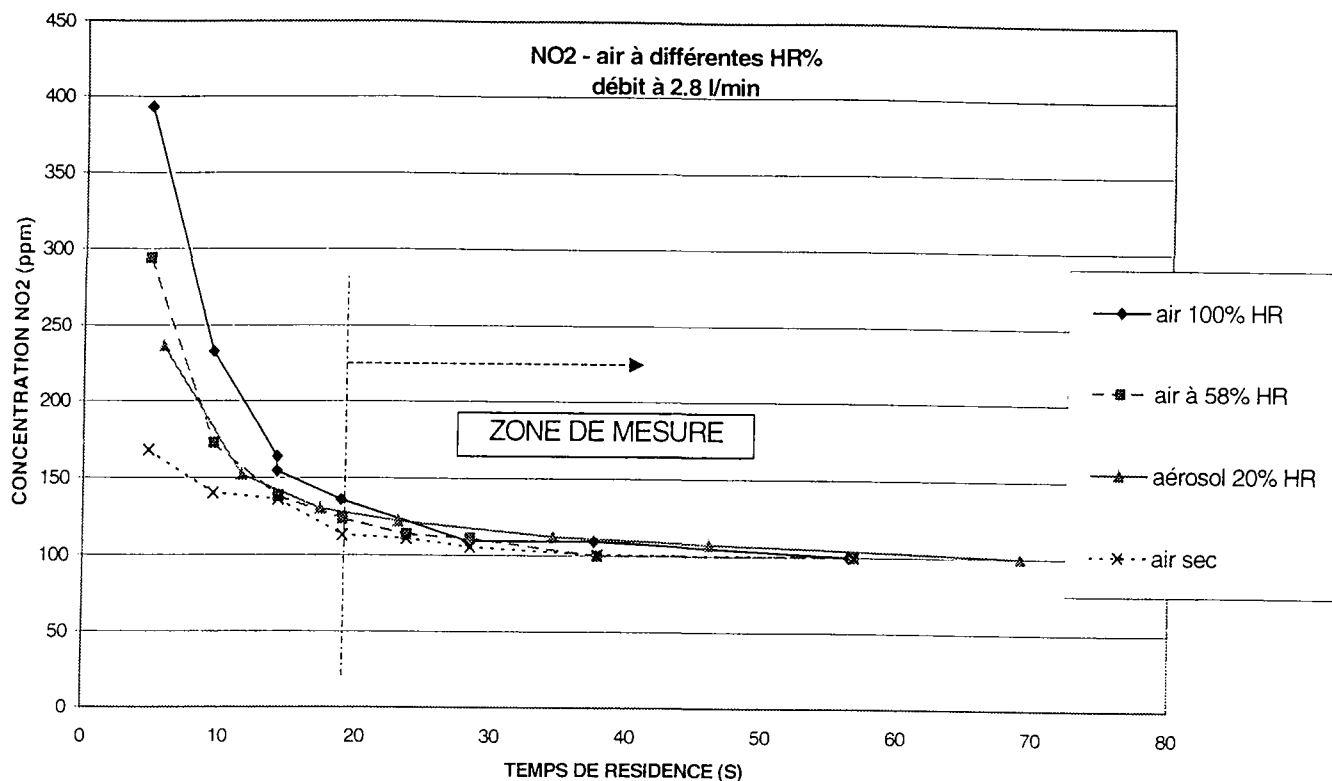


Schéma 6

### 3.2.3. Génération de l'aérosol salin

Nous disposons d'un atomiseur TSI 3076, à même d'effectuer la production d'aérosol salin.

### 3.2.4. Contrôle de l'humidité relative

La mesure de l'humidité relative est assurée par une jauge (Hygromètre Metronic AM3) placée dans le bas du réacteur.

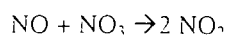
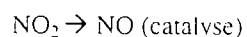
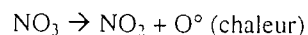
Divers systèmes de génération de vapeur d'eau ont été testés. L'eau utilisée doit être parfaitement pure sous peine de générer des aérosols, susceptibles d'interférer avec les phénomènes hétérogènes étudiés.

### 3.2.5. Techniques de mesure du N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>

#### 3.2.5.1. Mesure indirecte

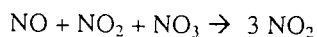
Cette méthode consiste à utiliser le canal de mesure de NO<sub>2</sub> de notre analyseur NO<sub>x</sub>. Le principe est simple : une décomposition de N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> est attendue sous l'effet de la chaleur du four de l'analyseur.

Nous obtenons alors du NO<sub>2</sub> et du NO<sub>3</sub> ; le premier permet donc une comptabilisation de notre produit et nous attendons également une transformation de NO<sub>3</sub> vers NO<sub>2</sub> ou vers NO :



### 3.2.5.2. Mesure par titration

Le principe est le suivant : un four est placé en amont de l'analyseur NO<sub>x</sub> (schéma 5). Le N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> y est décomposé ; du NO injecté à l'entrée du four, y réagit avec le NO<sub>3</sub> produit par la décomposition. Une molécule de N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> produit donc normalement 3 molécules de NO<sub>2</sub> :



### 3.3. Observations

En présence d'aérosol salin, la décroissance du signal en fonction du temps est très réduite dans notre réacteur : la constante de décroissance reste inférieure à 0.01 et s'avère comparable aux constantes observées par air sec ou humide.

Nous pensons être en présence d'une très forte transformation de N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> en acide nitrique, non pas sur les particules mais sur les parois du système et ce dès la sortie de la source (cette hypothèse a été étudiée par utilisation de pièges à acide nitrique (tube en Nylon)).

## 4. Conclusion

Nous disposons désormais d'un réacteur à flux continu d'aérosol, avec toute l'infrastructure que cela implique.

Dans le cadre de notre première application, nous avons observé un phénomène de transformation hétérogène sur les parois de notre système.

Des techniques de mesure spécifiques des gaz vont être mises en place (telle la technique FTIR), afin d'éviter les interactions possibles entre produits tels que N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> et acide nitrique.

Par ailleurs, des systèmes chimiques peu influencés par H<sub>2</sub>O en phase condensée seront privilégiés.

## REFERENCES :

- Abbat** J.P.D. and Waschewsky G.C.G. Heterogeneous interactions of HOBr, HNO<sub>3</sub>, O<sub>3</sub>, and NO<sub>2</sub> with deliquescent NaCl aerosols at room temperature, *J. Phys. Chem. A*, 102, 3719-3725, **1998**.
- Behnke** W., George C., Scheer V. And Zetsch C., Production and decay of ClONO<sub>2</sub> from the reaction of gaseous N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> with NaCl solution. Bulk and aerosols experiments, *J. Geophysical Research*, Vol. 102, n°D3, 3795-3804, february 20, **1997**.
- Baker** J., Ashbourn S.F.M., Cox R.A., Heterogeneous reactivity of nitrous acid on sub-micron sulfuric acid aerosol. Proceedings of the second Workshop of the EUROTRAC-2 subprojet Chemical Mechanism Development (CMD), 23-25 september **1998**.
- Finlayson-Pitts** B.J., Ezell M.J and Pitts J.N., Formation of chemically active chlorine compounds by reactions of atmospheric NaCl particles with gaseous N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> and ClONO<sub>2</sub>, *Nature*, 337, 241-244, 1989.
- Hanson** D.R., Reaction of N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> with H<sub>2</sub>O on bulks liquids and on particles and the effect of dissolved HNO<sub>3</sub>, *Geophys. Res. Letters*, Vo.24, n°9, 1087-1090, **1997**.
- Karlsson** R. and Ljungström E., Formation of nitryl chloride from dinitrogen pentoxide in liquid sea salt aerosol, *Atmospheric Environment*, Vol. 32, n°10, 1711-1717, **1998**.

# Application de la télédétection à l'étude de la distribution spatiale de la pollution atmosphérique sur la région d'Ile-de-France.

*Anda IONESCU\**, *Jean-Paul GILG\*\**, *Pierre BILDGEN\*\*\**, *Yves CANDAU\**

- \* Laboratoire d'Energétique et de Thermique Industrielle de l'Est Francilien  
IUT de Créteil, Université Paris XII, 61 Avenue du Général de Gaulle, 94 010 Créteil cedex
- \*\* Laboratoire de Téléanalyse du Centre d'Analyse et Mathématiques Sociales  
Ecole des Hautes Etudes en Sciences Sociales, 54 Boulevard Raspail, 75 015 Paris
- \*\*\* Laboratoire de Géochimie et Métallogénie  
Université Paris VI – Pierre et Marie Curie, Place Jussieu, 75 005 Paris

**Résumé** – *L'analyse des images satellite correspondant à différentes dates d'acquisition permet de mettre en évidence qu'il est possible, sous certaines conditions, d'aborder plusieurs thèmes relatifs à l'étude spatiale de la pollution atmosphérique urbaine, tels que : la localisation du voile de pollution au-dessus d'une ville ; l'emplacement des zones susceptibles de contenir des sources polluantes (« les points chauds ») ; l'influence de la topographie, de la morphologie de la ville et du microclimat urbain, sur la distribution spatiale des polluants atmosphériques. La télédétection fournit des informations supplémentaires à celles d'un réseau de mesure au sol, sur la répartition spatiale des polluants, permettant, à un certain niveau d'observation, de compléter ou de guider les travaux de terrain, d'aider à la conception ou à l'optimisation d'un réseau de mesure au sol, ou bien de valider les champs de concentrations de polluants calculés à partir des données de terrain. Dans cet article, nous nous proposons de donner les grandes lignes d'une méthodologie d'analyse de la pollution atmosphérique urbaine basée sur des images satellite, en particulier des scènes Landsat 5 TM pour la région d'Ile-de-France.*

## Nomenclature

$\lambda$	longueur d'onde, m	$T$	température de brillance K
$R$	réflectance exo-atmosphérique, %	$d$	distance Terre-Soleil, m
$E_{\lambda}$	flux solaire correspondant à $\lambda$ , $W.m^{-2}$	$\theta_E$	angle d'élévation solaire, degrés
$L$	luminance $W.m^{-2}.str$	$\theta_S$	complément de l'angle d'élévation solaire, degrés

## 1. Introduction

### 1.1. Contexte de l'étude.

La qualité de l'air à l'échelle régionale est surveillée par des réseaux de mesure dans toutes les agglomération françaises de plus de 250 000 habitants, conformément à la Loi sur l'air de décembre 96 [1]. Cette loi prévoit, en dehors de la surveillance de la qualité de l'air et de l'information du public, l'élaboration des plans régionaux de qualité de l'air (PRQA). L'un des principaux objectifs des PRQA est de prévenir et de réduire la pollution atmosphérique ou d'en atténuer d'autres effets. Par conséquent, les réseaux doivent se doter d'outils de modélisation de la pollution atmosphérique en vue de comprendre et de maîtriser le phénomène de dispersion de la pollution atmosphérique urbaine. Ainsi, une analyse spatio-temporelle de la pollution atmosphérique urbaine devient incontournable.

### 1.2. Distribution spatiales de polluants. Avantages et inconvénients des réseaux de mesure.

Les réseaux de mesure présentent de nombreux avantages : ils permettent de quantifier les niveaux de pollution atmosphérique polluant par polluant, avec un pas de temps fin (horaire) approprié à la dynamique de la pollution atmosphérique urbaine. L'inconvénient principal de cette technique est dû

au coût prohibitif des capteurs, qui limite leur nombre sur une région donnée, la concentration d'un polluant étant mesurée uniquement en quelques points de la région considérée. Le champ de concentrations de polluants peut être ensuite estimé en utilisant des méthodes d'interpolation multivariée [2], [3], [4].

Le manque de mesures de pollution exhaustives spatialement peut être pallié par des méthodes indirectes de mesure, comme la bio-indication ou la télédétection spatiale.

### 1.3. Images satellite et voiles de pollution.

La télédétection satellitale offre deux types d'informations utiles à l'étude de la pollution atmosphérique urbaine.

Premièrement, par sa mission, elle peut fournir des renseignements très détaillés sur la zone d'étude, essentiels à la compréhension des distributions spatiales de pollution. La morphologie de la ville ou bien la thermicité du sol - indicateur du microclimat urbain - peuvent être obtenues par traitement d'image satellite ; des corrélations peuvent être faites, ensuite, entre une distribution spatiale de pollution et une couche thématique (la morphologie urbaine, par exemple).

Deuxièmement, le voile de pollution au-dessus d'une ville peut être localisé par la comparaison, en termes de réflectances, d'une image satellite correspondant à une date de pollution, à une image de référence, de la même région, avec une atmosphère limpide. Le canal IRT (infrarouge thermique) permet de comparer (de manière relative) la pollution entre deux dates, par la variation de la température de brillance du sol.

L'utilisation de télédétection pour l'étude de la pollution atmosphérique urbaine ne peut pas remplacer les mesures au sol, car :

- i) l'information fournie par les images satellite permet de faire une estimation très grossière des niveaux de pollution ;
- ii) on ne peut pas disposer d'images satellite avec un pas de temps approprié à la dynamique de la pollution atmosphérique urbaine ;
- iii) il est souvent difficile de faire des estimations du voile d'un seul polluant, car il n'y a pas une correspondance univoque entre les bandes d'absorption des polluants et les longueurs d'onde relatives aux canaux d'un satellite.

Malgré ces inconvénients, les avantages apportés par cette technique sont non-négligeables, car l'estimation de la pollution par télédétection peut servir, d'une part, à la validation des méthodes de calcul des champs des polluants à partir des mesures au sol, à l'optimisation d'un réseau de surveillance de la qualité de l'air, et d'autre part, elle apporte des informations complémentaires à celles fournies par les réseaux de mesure.

### 1.4. Données utilisées.

Dans le cadre de cette étude, nous avons sélectionné deux scènes du satellite Landsat 5 Thematic Mapper (TM), relatives à la région francilienne. Le capteur Landsat 5 TM possède sept canaux de mesure, dont trois sont localisés dans les longueurs d'onde du visible (canaux 1, 2 et 3), trois autres dans le proche et moyen infrarouge (canaux 4, 5 et 7) et un canal dans l'infrarouge thermique (canal 6). Les mesures thermiques sont effectuées sur des pixels de 120 x 120 m, tandis que les autres mesures sont relatives à des pixels de 30 x 30 m. Les longueurs d'ondes caractéristiques de chaque canal [5], [6] sont présentés dans le tableau 1 :

	Canal 1	Canal 2	Canal 3	Canal 4	Canal 5	Canal 6	Canal 7
$\lambda$ [ $\mu\text{m}$ ]	0.45-0.52	0.52-0.60	0.63-0.69	0.76-0.90	1.55-1.75	10.4-12.5	2.08-2.35

Tableau 1 : Longueurs d'onde relatives aux sept canaux du capteur Landsat 5 TM

Les données numériques initiales consistent en des valeurs de luminance. Une première correction (des effets optiques et géométriques) a été faite, sur la base des coefficients de correction mis au point par les fournisseurs des images Landsat. Ces valeurs de luminance corrigées seront utilisées ensuite.

Afin de pouvoir comparer les images de 84 et de 89 correspondant aux canaux 1-5 et 7, nous avons transformé ces données en réflectances exo-atmosphériques. La réflectance  $R$  étant définie comme le rapport entre le flux réfléchi par un corps et le flux solaire incident  $E_{s,\lambda}$ , l'angle d'élévation solaire  $\theta_E$  (ou son complément  $\theta_s = 90 - \theta_E$ ) et la distance Terre - Soleil ( $d$ ) étant connus en fonction de la date, on a la relation :

$$R = \frac{L\pi d^2}{E_{s,\lambda} \cos \theta_s} \cdot 100$$

En ce qui concerne les mesures de luminance du canal (6) thermique, nous sommes remontés aux températures de brillance  $T$  en appliquant la loi de Planck, l'interprétation en termes de températures au sol supposant, évidemment, des émissivités proches de l'unité :

$$L = \frac{C_1 \lambda^{-5}}{e^{\frac{C_2}{\lambda T}} - 1}$$

La première scène a été enregistrée le dimanche 17 juin 1984, à 10h30 heure civile, avec une atmosphère limpide, et la deuxième, le jeudi 5 octobre 1989, à la même heure, pendant un épisode de pollution. Les conditions météorologiques synoptiques pour les deux dates ont été similaires : temps anticyclonique, vent faible venant du Nord, précipitations nulles. Les températures de l'air ont varié : entre 10°C et 22°C le 17 juin 84 et entre 6°C et 23°C le 5 octobre 89 (sur toute la journée). Le rapport entre le flux solaire incident le 5 octobre 89 et celui du 17 juin 84 est de 0.66.

## 2. Principe de l'étude

2.1. Si on analyse le même paysage, à l'aide de deux données du même canal (excepté le thermique), relatives à des dates d'acquisition différentes, et si les deux scènes ne sont pas perturbées par des phénomènes de pollution, elles présenteront des valeurs de réflectance pratiquement identiques (figure 1).

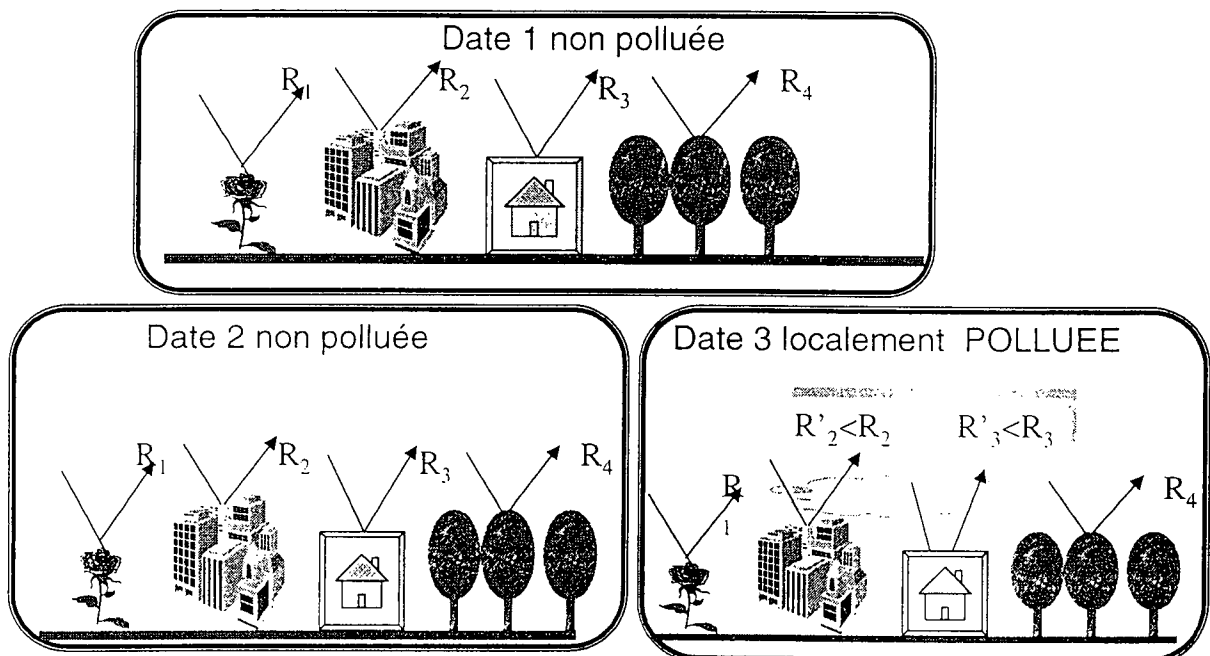


Figure 1. Schéma du principe de localisation d'un voile de pollution par détermination des variations locales des valeurs de réflectance

En revanche, si l'une des scènes est affectée par un voile de pollution localisé, celui-ci perturbera la valeur des rayonnements incidents et, par conséquent, celle des valeurs de réflectance correspondant aux sites localisés sous ce voile de pollution. Ceci conduit à déterminer les variations

locales de l'épaisseur optique atmosphérique, par analyse des variations radiométriques sur les données numériques (*figure 1*).

D'autres études ont déjà montré par mesures au sol des rayonnements dans l'UV et le violet des réductions de 1 à 10 (UV) ou de 1 à 2 entre la zone urbaine et la banlieue parisienne [7].

2.2. En ce qui concerne le canal thermique, dans les mêmes conditions que précédemment (même paysage, sans pollution pour les deux dates) les deux répartitions de températures de brillance présentent une très grande similitude ; dans le cas d'une pollution localisée sur l'une des scènes, on observera un abaissement local des températures de brillance, soulignant la morphologie de ce voile (*figure 2*). Sa présence provoque, en effet, de la surface du sol vers sa partie inférieure, un phénomène de concentration de l'énergie d'émission avec augmentation légère de la température (effet de serre) [8] et, par conséquent, une diminution de la température au sommet du voile (*figure 2*), que l'on détecte sur l'image thermique.

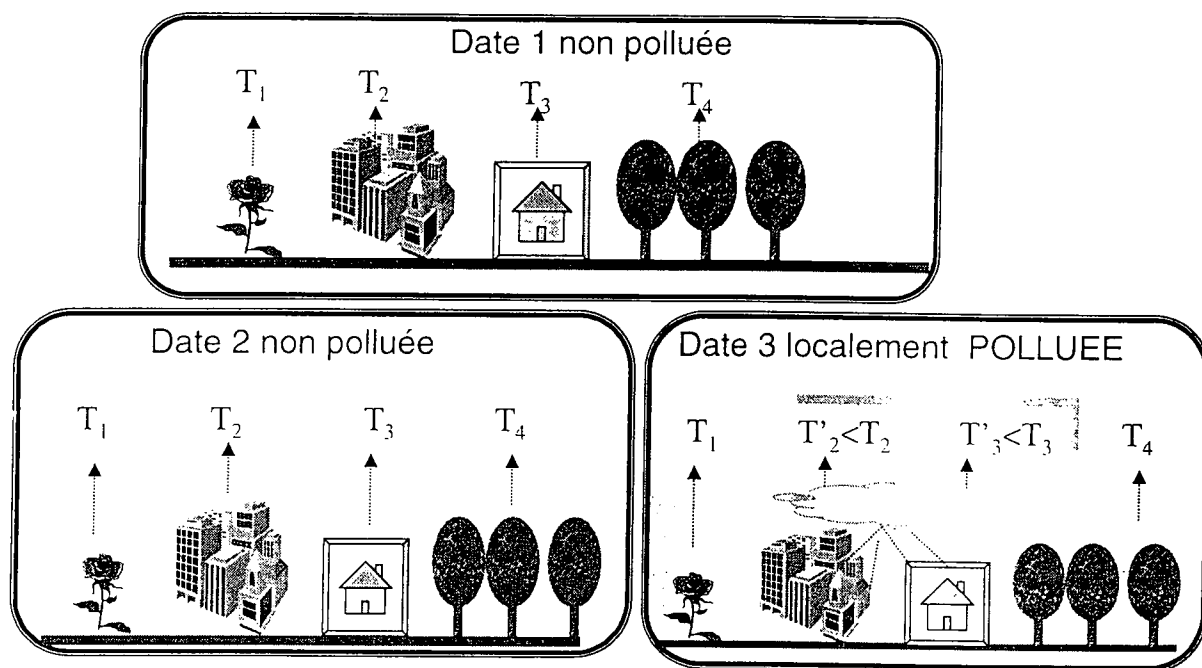


Figure 2. Schéma du principe de localisation d'un voile de pollution par analyse des données thermiques.

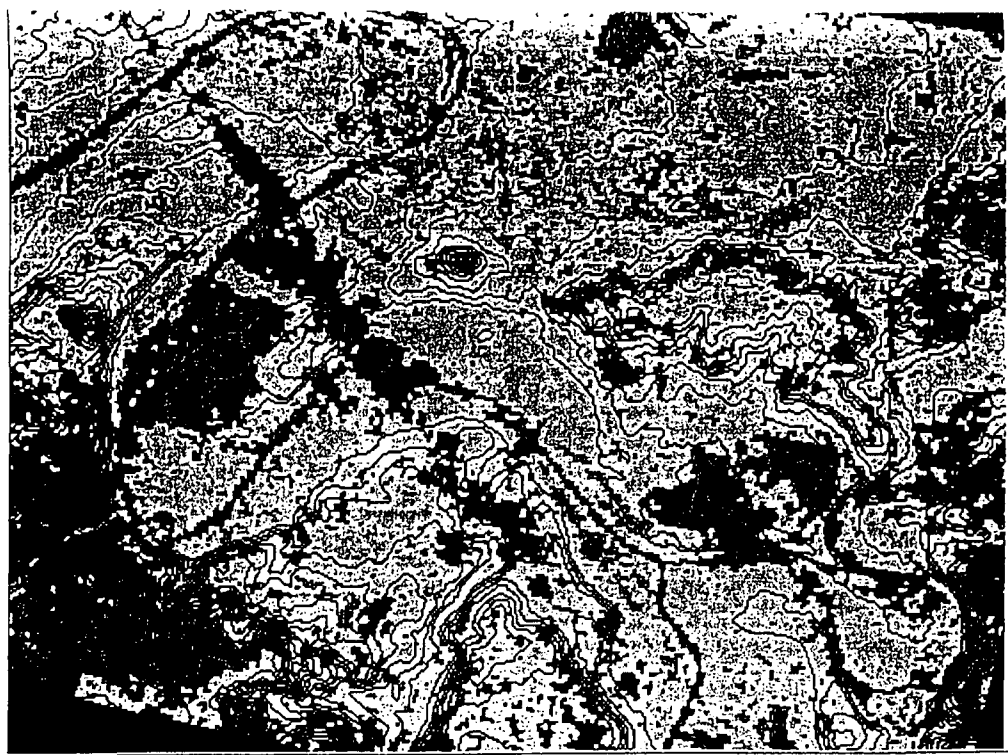
### 3. Résultats

#### 3.1. Localisation du voile de pollution basée sur les réflectances relatives au canal 1 (visible - violet)

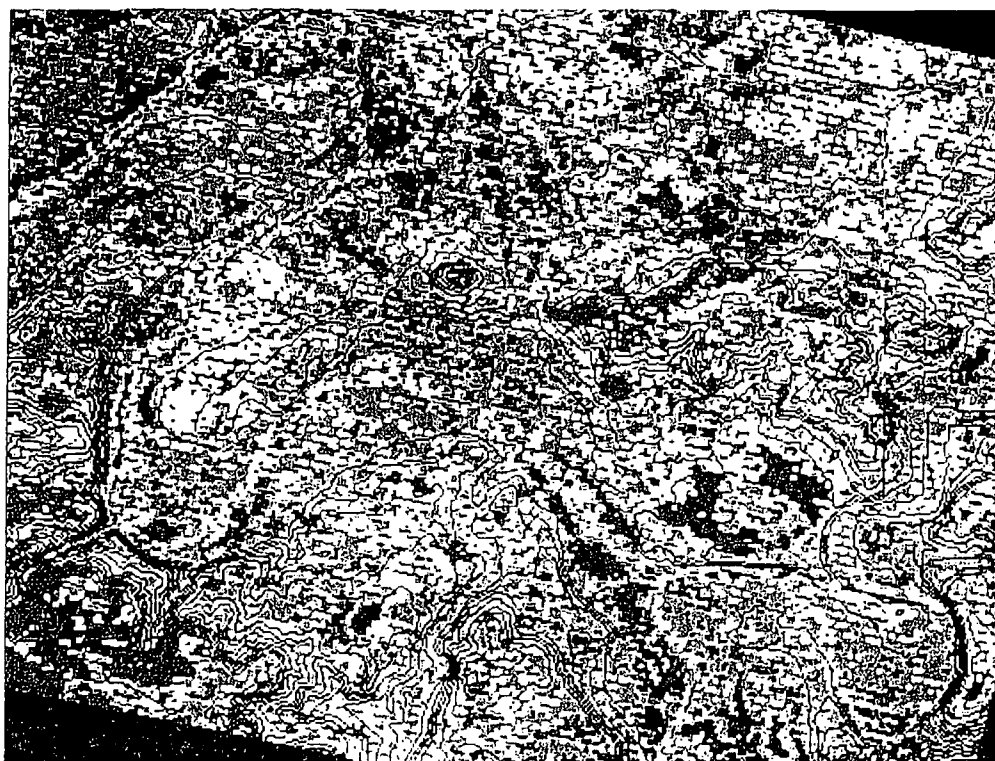
Le suivi de certains polluants par télédétection n'est pas toujours facile, car leurs bandes d'absorption ne sont pas toujours incluses dans les intervalles de longueurs d'onde de capteurs du satellite. Ainsi, le  $\text{SO}_2$ , ayant comme bande d'absorption de 0,29 à 0,31  $\mu\text{m}$ , ne peut absorber le rayonnement correspondant à aucun des canaux du TM (*tableau 1*). Le  $\text{NO}_2$  (0,3-0,6  $\mu\text{m}$ ) et l'ozone (0,48-0,68  $\mu\text{m}$ ) absorbent le rayonnement correspondant aux canaux du visible [8].

La comparaison des réflectances correspondant au canal 1 pour les deux scènes met en évidence une diminution de la réflectance (de 2-3 % environ) pour l'image d'octobre 89, car une partie du rayonnement est absorbé par des polluants comme le  $\text{NO}_2$  et l'ozone. La soustraction de ces deux champs de réflectances nous permet de localiser le voile de pollution, qui est dans ce cas particulier, au-dessus de Paris intra muros.

On remarque également une perte de contraste dans la zone située sous le nuage de pollution, aussi bien dans le cas du canal thermique, que dans le cas du canal 1.



13° 14° 15° 16° 17° 18° 19° 20° 21° 22° 23° 24° 25° 26° 27° 28° 29° 30° 31° 32° 33°



11°	12°	13°	14°	15°	16°	17°	18°	19°	20°	21°	22°	23°
-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----

Températures de brillance (en °C) estimées à partir des enregistrements correspondants au canal 6 (IRT : 10,4  $\mu\text{m}$  - 12,5  $\mu\text{m}$ ), par le capteur Thematic Mapper du satellite Landsat 5, pour la région francilienne, le 17/06/84 (atmosphère limpide) et le 05/10/89 (épisode de pollution). Résolution : 120 m x 120 m. Le relief (à partir des données de l'Institut Géographique National) a été superposé sur les images géoréférencées.



### 3.2. Mise en évidence des « points chauds » et du voile de pollution à partir de la température de brillance du canal 6 (IRT).

Sur l'image thermique du 17 juin 84, la zone de températures situées entre 20 et 23° apparaît comme caractéristique des zones sensibles où l'activité industrielle et commerciale est très développée. Elle souligne aussi les voies ferrées et les grands axes routiers de sortie de Paris. C'est exclusivement à l'intérieur de cette zone que sont localisés les points chauds dont les températures peuvent varier entre 25° et 28°. La connaissance de ces secteurs peut donc présenter un intérêt pour la mise en place d'un système de surveillance de l'origine des polluants.

L'image thermique du 5 octobre 89 est modifiée par la présence d'un voile de pollution. La présence de ce voile a comme conséquence une homogénéisation de températures équivalentes au-dessus du voile. On remarque dans ce cas une assez faible amplitude thermique. Toute la zone polluée présente des températures de 16° et 17°, qui peuvent être considérées comme inférieures à celles qui devraient exister normalement, car il a été souligné [9] par l'analyse des images de la même région, enregistrées à d'autres dates, que cette zone devrait présenter des températures légèrement supérieures de 1° à 3° à celles qui caractérisent la banlieue. De plus, dans les zones non polluées, il est possible d'observer certains changements, par exemple la disparition du point chaud marquant l'emplacement des usines Citroën, dont l'activité a cessé entre 84 et 89.

### 3.3. Influence de la topographie sur la dispersion des polluants.

La superposition de la topographie de la région parisienne sur les images en thermique géoréférencées permet de remarquer l'influence du relief sur l'accumulation des polluants (l'effet de couloir de la Seine, les blocages par les buttes).

## 4. Conclusion

L'analyse des données spatiales correspondant à différentes dates d'acquisition permet de mettre en évidence qu'il est possible, sous certaines conditions, d'aborder plusieurs thèmes relatifs à l'étude de la pollution au dessus de la ville : la localisation des zones susceptibles à contenir des polluants (les « points chauds »), l'influence de la topographie et du microclimat urbain sur la distribution spatiale de la pollution, la délimitation et la cartographie des zones sous aérosols. L'utilisation des données satellitaires apparaît clairement comme une technique supplémentaire permettant, à un certain niveau d'observation, de compléter ou de guider les travaux de terrain (optimisation des réseaux de mesures au sol, localisation des points chauds...) qui demeurent essentiels pour la compréhension de la pollution atmosphérique urbaine.

## 5. Références

- [1] Loi n° 96-1236 du 30 décembre 1996 sur l'air et l'utilisation rationnelle de l'énergie. Journal Officiel de la République Française, 1 janvier 1997.
- [2] IONESCU A., MAYER E., COLDA I., *Méthodes mathématiques pour estimer le champ de concentration d'un polluant gazeux à partir des valeurs mesurées aux points dispersés*. Revue « Pollution atmosphérique », janvier - mars 1996, pp. 78-89.
- [3] IONESCU A., MAYER E., CANDAU Y., COLDA I., *Analytical determination and classification of pollutant concentration fields using air pollution monitoring network data. Methodology and application in the case of the Paris area, during episodes with peak nitrogen dioxide levels*, Environmental Modelling and Software, Special Issue, Elsevier (à paraître)
- [4] IONESCU A., *Contribution à la compréhension de la dispersion des polluants atmosphériques en zone urbaine*. thèse de doctorat de l'Université Paris XII – Val de Marne soutenue le 4 décembre 1998, (224 pages), publiée par l'IAURIF, Paris, 1999
- [5] CANTAT O. – *Téledétection spatiale et microclimats*, IAURIF, Paris Juillet 1987
- [6] ROBIN M. – *La téledétection*, Nathan 1995.
- [7] LANDSBERG H.E. – *The Urban Climate*, International Geophysics Series, Vol. 28, Academic Press, 1981.
- [8] WILMET J., *Téledétection aérospatiale. Méthodes et applications*, Sides 1996.
- [9] BILDGEN P., GILG J. P., GEROYANNIS H. – *Etude de la thermicité de Paris et de sa proche banlieue par téledétection satellitaire*, IAURIF, Paris, Août 1995.

# MESURE DE LA COUVERTURE MOUTONNEUSE DURANT LA CAMPAGNE F.E.T.C.H 98

L. MASSOUH, O. LE CALVE, et S. DESPIAU

Laboratoire des Echanges Particulaires aux Interfaces, Université de Toulon et du Var  
ISITV, B.P 56, 83162 La Valette du Var, France

## INTRODUCTION

L'étude du moutonnement, qui se produit lors du déferlement des vagues de vent, nous permet d'obtenir des informations sur la production de particules et les échanges de gaz à l'interface océan-atmosphère. La surface, la durée, et la granulométrie du mouton sont des paramètres essentiels pour la détermination des concentrations en aérosols marins (Monahan 1988). Lors de la campagne F.E.T.C.H 98, on a effectué un grand nombre de mesures de l'état de surface de la mer à l'aide d'appareils de prise de vue. La fraction de surface comprise par les moutons, appelée couverture moutonneuse, est évaluée par traitement d'images à l'aide d'une méthode d'analyse morphologique des images basée sur la détection de contours. Les valeurs moyennes de couverture moutonneuse, correspondant à une série d'images, sont ensuite confrontées aux vitesses moyennes de vent pendant les mesures afin de mettre en évidence un modèle de prédiction en zone côtière.

## LE MOUTONNEMENT

La génération des aérosols marins est en majorité issue de l'interaction entre le vent et l'océan. Sous l'influence continue du vent, la pente des vagues augmente et la surface marine devient localement instable. Il arrive un point critique où la vague doit dissiper l'énergie excessive fournie par le vent, cette dissipation se fait par le déferlement. Il se produit alors un entraînement d'air dans l'eau près de la crête des vagues sous forme d'écume (moutonnement) suivi d'une dispersion de bulles dans la couche superficielle de la mer. L'objet particulier de notre étude, le mouton, se caractérise par une traînée blanche sur la surface marine qui n'est autre qu'une population de bulles de différentes tailles (écume). Le mouton est un système ultra-plat, de dimension verticale faible devant sa dimension horizontale (Snyder et Kennedy 1983).

On distingue :

- le mouton actif ou jeune , naissant au niveau de la crête des vagues qui se brisent et qui se déplace avec elle pendant un court instant.
- le mouton passif ou mature , succédant au passage du mouton actif. Il est statique, de forme aléatoire, il s'étend au cours du temps et disparaît lorsque toutes les bulles ont éclaté. Il est enrichi de bulles, expulsées à de grandes profondeurs lors du déferlement, remontant à la surface ; cependant, il est moins riche en bulles que le mouton actif.

Les aérosols marins sont issus, soit de l'éclatement des bulles à la surface, phase suivant le moutonnement, soit de l'écrêtage des vagues par l'action mécanique directe du vent (arrachement de particules au sommet de la crête).

Selon Toba (1961) et Monahan et al. (1983), le moutonnement est le mécanisme prépondérant de production d'aérosols marins : il apparaît pour une vitesse de vent (référéncée à 10 mètres au-dessus de la surface) d'environ 3m/sec (Monahan et O'Muircheartaigh 1986).

L'éclatement des bulles (formées directement à la surface par moutonnement ou remontant à la surface sous l'effet de la force d'Archimède) mène à la formation de deux types de particules (Resch et al. 1986) :

- les gouttes de film ("filmdrops") : issues de l'éclatement de la calotte sphérique de la bulle, elles ont un diamètre compris entre 0.03 et 200 $\mu\text{m}$  alors que leur résidu sec est 4 fois plus petit. On peut avoir jusqu'à 100 gouttes éjectées par bulle. Elles constituent 10% des aérosols produits par une bulle.
- les gouttes de jet ("jetdrops") : formées après disparition de la calotte sphérique. La déformation (dégonflement) de la cavité interne produit un jet d'eau instable qui se dissocie en un chapelet de gouttelettes qui peuvent se compter jusqu'à 10 par bulle. Leur diamètre se situe entre 30 et 600 $\mu\text{m}$ . Elles constituent 90% des aérosols produits par une bulle.

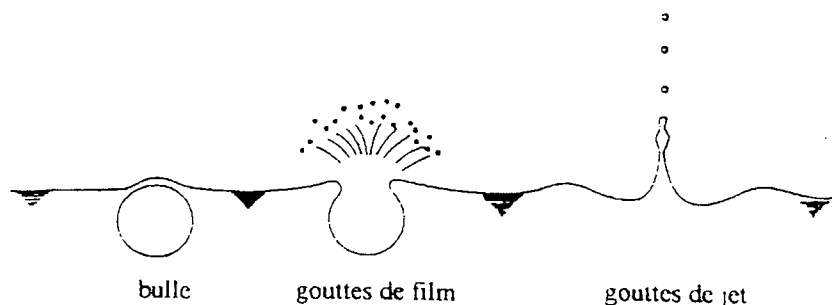


Figure 1 : Eclatement d'une bulle à la surface de la mer

## LA COUVERTURE MOUTONNEUSE

Selon Snyder et Kennedy (1983), le moutonnement est l'un des processus associé à l'évolution du champ de vagues les plus importants et les moins compris. Il joue un rôle important dans la dynamique de la surface marine et dans l'interaction air-mer, contribuant à la dissipation d'énergie des vagues de vent et entraînant le transfert de gaz, de chaleur, de quantité de mouvement et de masse vers l'atmosphère. En particulier, le taux de production d'aérosols marins est proportionnel à la couverture moutonneuse, notée  $W$ , et exprimée en % (Monahan et al. 1983). L'étude de la couverture moutonneuse est également intéressante dans le domaine de la télédétection puisque la forte émissivité des moutons dans la bande des micro-ondes bruite les signaux rétrodiffusés (Koepke 1986).

La couverture moutonneuse correspond à la surface englobée par l'ensemble des moutons sur la surface marine. Elle peut être mesurée à partir de prises de vue de la surface marine, par télédétection passive à l'aide d'un radiomètre infra-rouge (Kermann et Bernier 1994), ou par mesure acoustique à l'aide d'hydrophones placés sous la mer (Farmer et Li Ding 1994).

Il existe plusieurs modèles empiriques permettant de prédire la couverture moutonneuse :

$$- W = \alpha \cdot U_{10}^{\lambda} \quad \text{pour } U_{10} > 3\text{m/sec} \quad (\text{Monahan et O'Muircheartaigh 1981})$$

$$- W = \alpha \cdot U_{10}^{\lambda} \cdot \exp(a \cdot \Delta T) \quad (\text{Monahan et O'Muircheartaigh 1986})$$

$$- W = \beta \cdot u_*^3 \quad (\text{Wu 1988})$$

où  $U_{10}$  représente la vitesse du vent à 10 mètres au-dessus du niveau marin,  $\Delta T$  est la différence de température entre l'eau et l'air (caractérise la stabilité thermique de la couche de surface), et  $u_*$  est la vitesse de frottement de l'air sur l'eau. Les paramètres  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\lambda$ , et  $a$  sont calculés par régression linéaire des valeurs de  $W$  mesurées.

## MESURES / CAMPAGNE F.E.T.C.H

Nos mesures de couverture moutonneuse ont été effectuées lors de la campagne de mesure internationale F.E.T.C.H (Flux, Etats de mer, Télédétection en Conditions de fetch variable) qui s'est déroulée en mars et avril 1998 dans le Golfe du Lion (voir fig.2) à bord du navire océanographique "Atalante". Différentes radiales étaient suivies par le bateau (allers-retours entre les distances 50 et 150 kms de la côte) suivant les conditions météorologiques : les événements de Mistral et Tramontane étaient recherchés afin de mesurer l'influence du fetch (distance parcourue par le vent sur la mer) sur les paramètres météorologiques, l'état de mer, ou sur la composition et la granulométrie des aérosols.

Pour nos mesures, nous avons utilisé un appareil photographique et une caméra vidéo analogiques équipés d'un filtre polarisant pour s'affranchir au maximum des zones de reflets présentes sur la surface marine, et qui sont très lumineuses. Les appareils étaient fixés au bastingage du navire, à 12 mètres au-dessus du niveau marin. Au total, nous avons effectué 60 séquences vidéo de dix minutes et 65 séries de douze photos (une photo par minute) pour des conditions de vent allant jusqu'à 18 m/s et pour des fetchs variant de 8 à 110 kms.

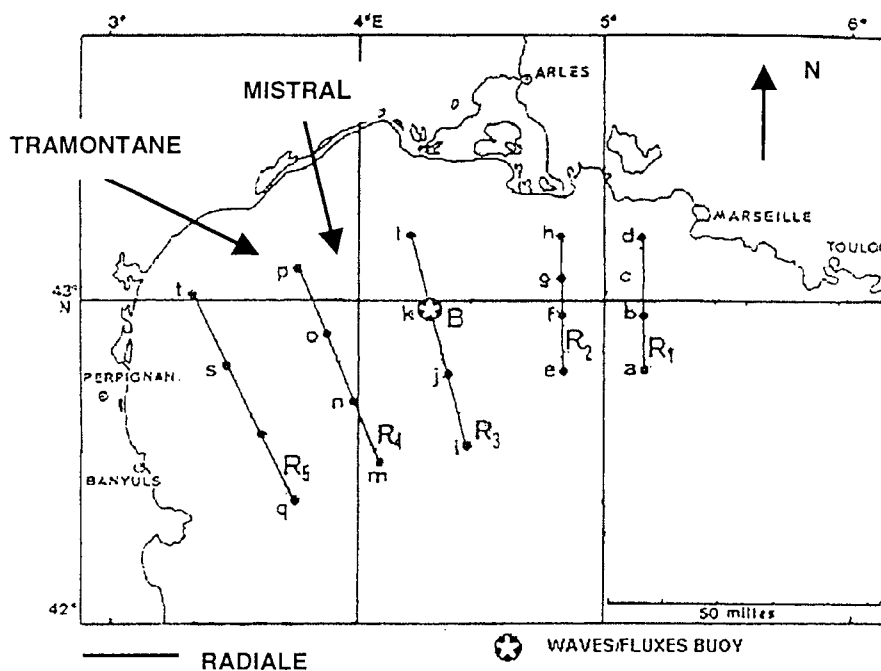


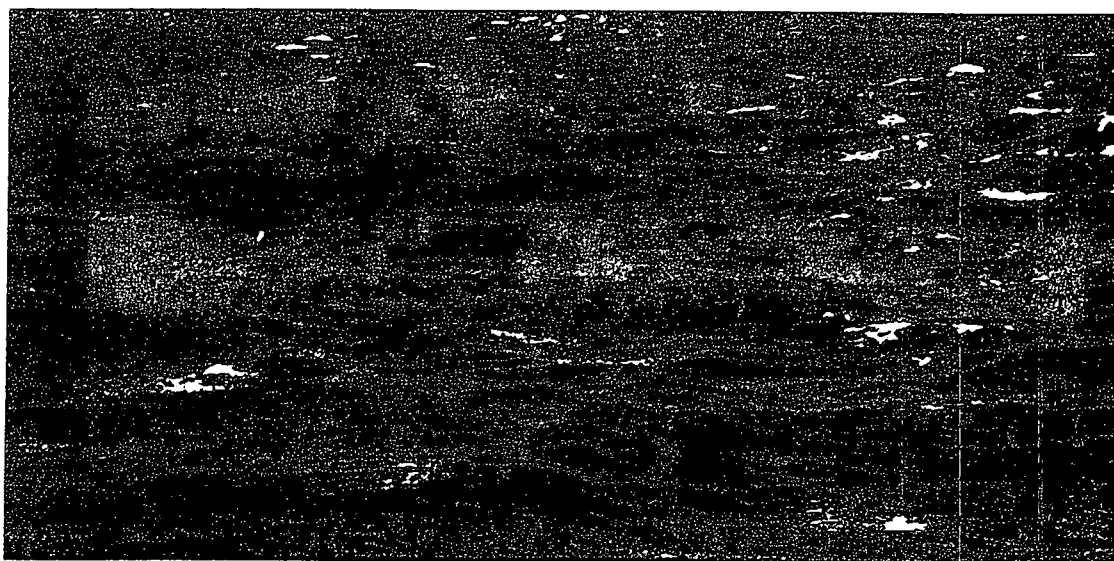
Figure 2 : Site expérimental de F.E.T.C.H

## METHODE DE DETERMINATION DE LA COUVERTURE MOUTONNEUSE

Elle fait appel au traitement d'images. Après la campagne, toutes nos images furent numérisées : les films vidéo furent capturés à la fréquence de une image par seconde (600 images par film) et les photos numérisées à haute résolution.

Un pré-traitement consiste à convertir les images en 256 niveaux de gris puisqu'on désire travailler sur l'intensité lumineuse des pixels. On a mis au point un algorithme performant et automatique basé sur la détection des contours des moutons dans l'image (localisation de leur frontière), elle-même basée sur la recherche des pixels de plus fort gradient puis à leur segmentation. Pour une image, la couverture moutonneuse  $W(\%)$  est alors le rapport entre la

surface totale, en pixels, entourée par les contours des moutons et la taille de l'image (nombre total de pixels).



*Figure 3 : Application de la méthode à une photo (  $W=3.43\%$  )*

## ANALYSE DES PREMIERS RESULTATS

Après traitement des séquences d'images exploitables, on disposait de 52 et de 45 valeurs moyennes de couverture moutonneuse issues respectivement du traitement des séries de photos et du traitement des séquences vidéo. C'est cette valeur moyenne qui caractérise le mieux l'état de mer à un instant donné. Pour les séquences vidéo, la moyenne est calculée sur 600 images, alors qu'elle l'est sur 12 images pour une série de photographies. On a également calculé les vitesses moyennes de vent à dix mètres sur une durée de trente minutes centrée sur l'intervalle de temps des prises de vue.

On représente ci-dessous l'évolution de nos valeurs moyennes de couverture moutonneuse avec la vitesse moyenne du vent correspondante. En passant en échelle logarithmique, on peut effectuer une régression linéaire de nos données et comparer la loi obtenue avec le modèle de Monahan et O'Muircheartaigh (1981),  $W = 2,95.10^{-4} \cdot U_{10}^{3,52}$ , qui est le plus utilisé actuellement.

Les lois caractérisant le mieux nos données sont :

- $W = 4,8.10^{-5} \cdot U_{10}^{4,1}$  pour les mesures par photographies
- $W = 7,13.10^{-6} \cdot U_{10}^{4,55}$  pour les mesures par vidéo

On remarque alors que les valeurs de couverture moutonneuse issues du traitement des photos sont plus importantes que celles issues du traitement des séquences vidéo. Cela est sans doute dû au fait que la convergence statistique de la valeur moyenne de couverture moutonneuse est bien meilleure pour les séquences vidéo ; en effet, même si les photos numérisées ont une résolution bien plus grande et couvrent une plus grande surface marine que les images vidéo, la valeur moyenne est calculée sur 12 images contre 600 pour une séquence vidéo. Pour pallier ce problème, on a mis au point une transformation, basée sur les paramètres optiques et géométriques du système de prise de vue, permettant de retrouver la surface marine réelle, en mètres carrés, englobée par chaque pixel de l'image. Ceci permet de traiter les photos comme

si elles avaient été prises de dessus et ainsi de corriger l'effet de perspective qui déforme la surface marine et nous nécessite un grand nombre d'images pour obtenir une valeur moyenne de couverture moutonneuse représentative.

En appliquant cette correction à nos photos puis en les traitant à nouveau avec la méthode de détection des contours, on devrait ainsi obtenir des valeurs qui se rapprochent de celles issues des mesures par vidéo. Ainsi, il est important de voir que les mesures de couverture moutonneuse faites pendant F.E.T.C.H sont plus faibles que celles prédites par Monahan. Cela peut s'expliquer par le fait que le modèle de prédiction de Monahan est issu de mesures faites en océan (fetch infini) alors que les nôtres furent effectuées en fetch limité et pour des événements de vent courts en durée (état de mer non complètement développé). La construction d'un modèle de prédiction de la couverture moutonneuse en zone côtière paraît donc nécessaire.

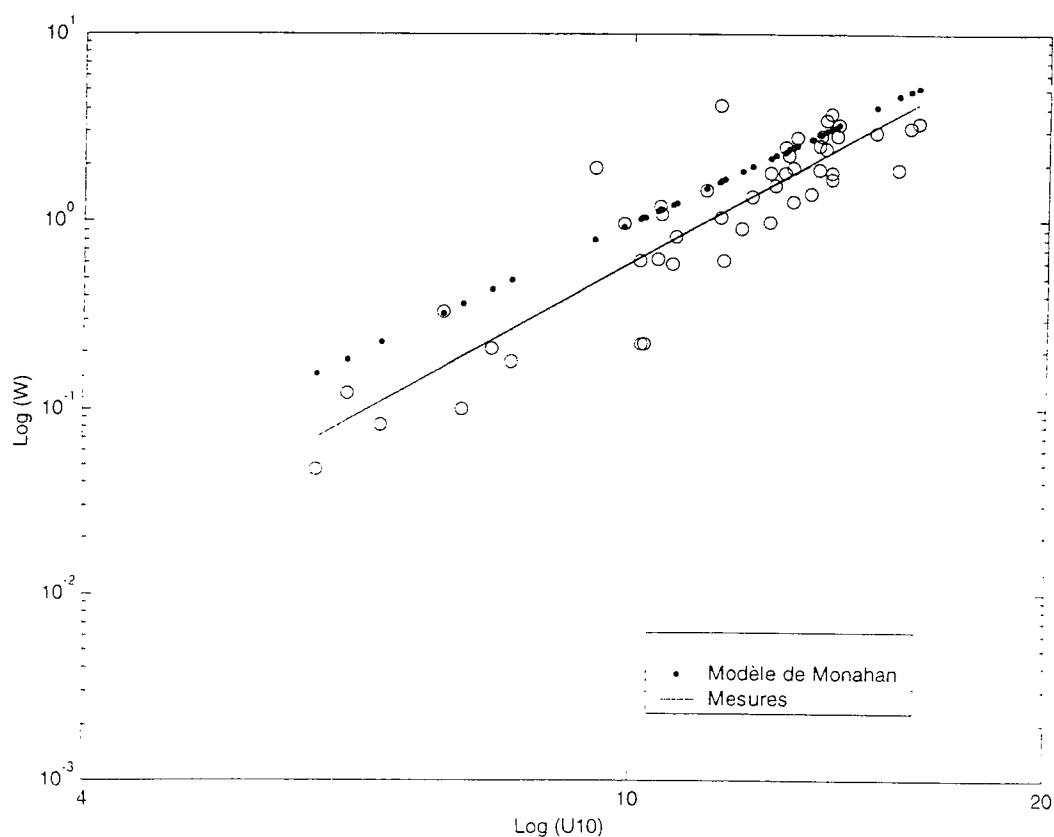
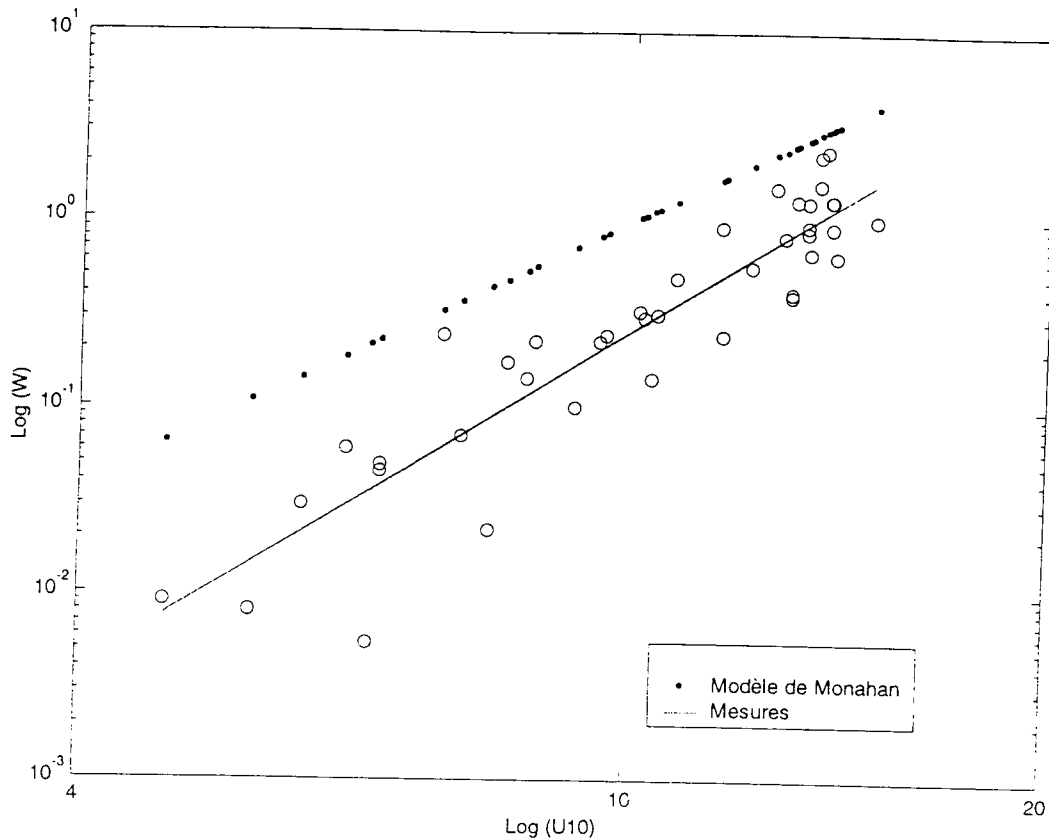


Figure 4 : Evolution des mesures de  $W$  par photographies avec  $U_{10}$



*Figure 5 : Evolution des mesures de W par vidéo avec U10*

## CONCLUSION

La mise au point d'une méthode de traitement d'images robuste et automatique permet d'obtenir une bonne précision sur la détermination de la couverture moutonneuse sur la surface marine. La corrélation des valeurs moyennes de couverture moutonneuse avec la force moyenne du vent permet de mettre en évidence une signature caractéristique de l'état de mer en zone côtière.

La confrontation de nos mesures avec des paramètres plus déterminants et plus directs que la vitesse du vent dans l'évolution du champ de vagues comme le fetch ou la vitesse de frottement devrait nous permettre d'affiner le modèle de prédiction en zone côtière.

Il est également prévu de corréler nos mesures avec les concentrations d'aérosols mesurées pendant F.E.T.C.H pour faire le lien entre le terme source de la production d'aérosols et ceux présents dans la couche de surface.

Enfin, une analyse fine du mouton est à envisager pour étudier ses distributions en taille et en intensité lumineuse, ce qui pourrait nous conduire directement à la détermination de la densité de bulles présente dans un mouton.

## REMERCIEMENTS

Ce travail de recherche est soutenu par le Conseil Régional Provence-Alpes-Côte d'Azur (27, pl. J.Guesde, 13481 Marseille Cedex 20, France).

## REFERENCES

- Farmer, D. M., and Li Ding, 1994 : Observations of breaking surface wave statistics. *J. Phys. Oceanogr.*, Vol. 24, pp. 1369-1387.
- Kermann, B. R., and L. Bernier, 1994 : Multifractal representation of breaking waves on the ocean surface. *J. Geophys. Res.*, 99, C8, 16179-16196.
- Koepke, P., 1986 : Remote sensing signatures of whitecaps. *Oceanic whitecaps and their role in air-sea exchange processes*, E. C. Monahan and G. MacNiocail (eds), D. Reidel publishing company, pp. 251-260.
- Monahan, E. C., 1988 : Whitecap coverage as a remotely monitorable indication of the rate of bubble injection into the oceanic mixed layer. *Sea Surface Sound*, B.R.Kermann(ed), Kluwer academic publishers, 85-96.
- Monahan, E. C., and I. G. O'Muircheartaigh, 1986 : Whitecaps and the passive remote sensing of the ocean surface. *Int. J. Remote sensing*, Vol. 7, No.5, pp. 627-642.
- Resch, F., J. S. Darrozes, and J. M. Afeti, 1986 : Marine liquid aerosol production from bursting of air bubbles. *J. Geophys. Res.*, Vol.91, No.C1, pp. 1019-1029.
- Snyder, R. L., and R. M. Kennedy, 1983 : On the formation of whitecaps by a threshold mechanism. Part 1: basic formalism. *J. Phys. Oceanogr.*, Vol.13, pp. 1482-1492.
- Monahan, E. C., and I. G. O'Muircheartaigh, 1981 : Optimal power-law description of oceanic whitecap coverage dependence on wind speed. *J. Phys. Oceanogr.*, 10, 2094-2099.
- Monahan, E. C., C. W. Fairall, K. L. Davidson, and P. J. Boyle, 1983 : Observed interrelations between 10m winds, ocean whitecaps and marine aerosols. *Quart. J. R. Met. Soc.*, Vol.109, pp. 379-392.
- Toba, Y., 1961 : Drop production by bursting of air bubbles on the sea surface (III). Study by use of a wind flume. *Mem. Coll. Sci. Univ. Kyoto*, Ser. A29, pp. 313-344.
- Wu, J., 1988 : Variations of whitecap coverage with wind stress and water temperature. *J. Phys. Oceanogr.*, Vol.18, pp. 1448-1453.



# Diffusion de la lumière par des particules complexes: chaos (hamiltonien) optique et diffusion irrégulière.

G. Gouesbet, S. Meunier-Guttin-Cluzel et G. Gréhan

LESP,

UMR 6614-CORIA,

CNRS/INSA et Université de Rouen,

76 130 Mont Saint Aignan

16 novembre 1999

## Résumé

Nous considérons une famille de billards formés d'un cercle extérieur, contenant  $N$  cercles intérieurs disjoints, nommés billards à  $N$  cercles (ou  $N$  inclusions). Ces billards constituent un modèle de particules diffusantes complexes dont il s'agit d'analyser les propriétés diffusantes lorsqu'elles sont éclairées par des faisceaux laser. Dans l'approximation de l'optique géométrique, équivalente à un problème mécanique hamiltonien, ces billards engendrent des phénomènes chaotiques génériques (chaos optique). L'effacement du cercle extérieur génère des billards ouverts et des phénomènes de diffusion irrégulière (dite chaotique). Ces phénomènes peuvent être rigoureusement décrits dans un cadre ondulatoire à l'aide de théories de Lorenz-Mie généralisées nouvellement construites.

## 1 Introduction

Considérons le mouvement conservatif d'un point matériel dans une portion de plan définie par une courbe fermée  $B$  ( $B$  pour billard). La trajectoire rectiligne du point à l'intérieur du billard est modifiée par ses impacts avec la frontière  $B$  selon une loi élastique de réflexion. L'impact  $n$  peut être défini par sa position  $s_n$  et par la composante tangentielle  $p_n$  de la quantité de mouvement après l'impact  $n$ . Une trajectoire est alors définie par une séquence  $(s_n, p_n)$ ,  $n = 0, 1, 2, \dots$  où les quantités  $s$  et  $p$  forment les coordonnées d'un espace des phases. Le billard est dit générique lorsque, selon les conditions initiales  $s_0, p_0$ , on peut observer (1) des orbites périodiques de période  $M$  pour lesquelles  $(s_{n-M}, p_{n-M}) = (s_n, p_n)$ , (2) des orbites quasi-périodiques telles que les itérés de  $(s_0, p_0)$  construisent une courbe invariante (3) des orbites chaotiques

qui remplissent des aires. Par exemple, une forme ovale forme un billard générique[1].

Le problème mécanique hamiltonien discuté ci-dessus est isomorphe à un problème d'optique géométrique où les trajectoires sont remplacées par des rayons. Un comportement de billard générique engendre alors des comportements de chaos optique. Dans ce contexte, le chaos optique a été étudié pour des cavités ARCs (Asymmetric Resonant Cavities), voir par exemple Ref . [2]

Le point de vue "optique géométrique" peut être étendu à un problème d'optique ondulatoire (une extension supplémentaire engendrerait un problème de mécanique quantique). Malheureusement, les cavités ARCs ne permettent pas d'utiliser la méthode de séparation des variables pour résoudre le problème électromagnétique associé. De manière plus générale, des billards génériques, engendrant des comportements de chaos optique, pour lesquels le problème électromagnétique associé peut être résolu analytiquement grâce à la méthode de séparation des variables, n'ont jamais été identifiés comme tels jusqu'à présent, à notre connaissance. Le but de cet article est d'introduire de tels billards et de commenter les théories ondulatoires associées.

## 2 Chaos optique

### 2.1 Billards à $N$ cercles

Le billard à 1 cercle (ou billard annulaire) a été introduit, et son caractère générique ex-

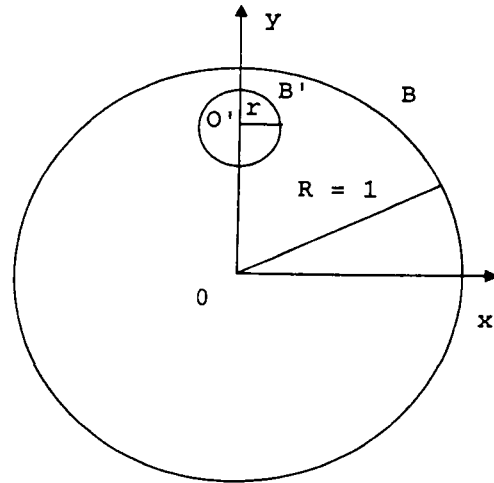


Figure 1: Le billard à 1 cercle

plicité, par Bohigas et al [3]. Pour illustrer son comportement, considérons une frontière circulaire  $B$  de rayon  $R = 1$ . A l'intérieur de ce cercle, plaçons un second cercle, appelé inclusion, de rayon  $r < 1$  (non concentrique au cercle extérieur) défini par une frontière  $B'$  (figure 1). Le centre  $O'$  du cercle  $B'$  est placé sur l'axe  $Oy$ , à une distance  $y(O') = d$  du centre  $O$  du cercle extérieur. Plutôt que  $s$  et  $p$ , nous utilisons deux angles  $\Psi \in [0, 2\pi]$  et  $\alpha \in [-\pi/2, \pi/2]$  comme coordonnées de l'espace des phases (Figure 2). Le module de la quantité de mouvement est  $p = \sin \alpha$ .

Le caractère générique de ce billard est (numériquement) explicité dans la figure 3

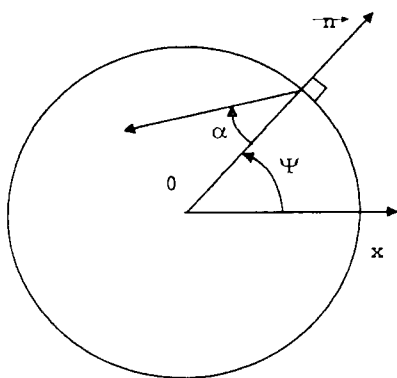


Figure 2: Les coordonnées de l'espace des phases

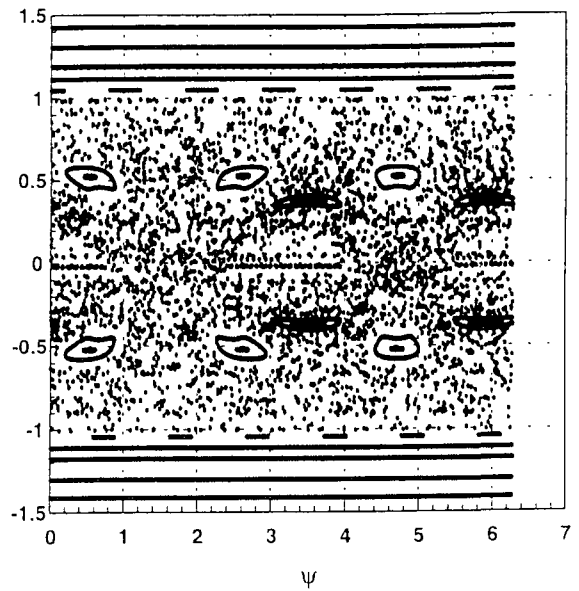


Figure 3: Structures génériques dans l'espace des phases du billard à un cercle

pour  $r = 0.35$  et  $d = 0.5$ . On y observe en particulier des structures caractéristiques du chaos hamiltonien [4] : îles régulières, mers chaotiques, et lignes quasi-périodiques.

Les orbites périodiques ne sont pas toutes visibles sur la figure. Insistons cependant sur le fait que certaines de ces orbites n'interagissent pas avec l'inclusion. Ces orbites possèdent une forte composante tangentielle de quantité de mouvement (en module) et, dans un contexte électromagnétique, sont associées aux "whispering gallery modes" ou "morphology-dependent resonances", capables d'exciter des effets optiques non-linéaires [5].

De manière similaire, nous avons numériquement démontré le caractère générique des

billards à  $N$ -cercles (ou inclusions) pour  $N = 2$  et  $3$ . D'un point de vue formel, la généricité pour  $N$  quelconque peut être inférée en remarquant que la composante tangentielle de la quantité de mouvement n'est pas conservée pour des trajectoires touchant l'inclusion. La perte d'une loi de conservation rend alors le système hamiltonien non intégrable [4].

## 2.2 Chaos optique

Considérons le problème d'optique géométrique associé au problème mécanique précédent. Les rayons (trajectoires) peuvent alors interagir avec l'environnement extérieur par un processus de réfraction, ce qui définit un problème de diffusion de la lumière par une particule complexe, dans une approximation d'optique géométrique. Le problème peut être étendu à un problème ondulatoire, y compris lorsque la particule diffusante est éclairée par un faisceau laser. Un résultat "inattendu" est que ce problème ondulatoire peut être résolu exactement par des méthodes analytiques, alors même que le problème hamiltonien est non intégrable. La théorie associée est appelée une théorie de Lorenz-Mie généralisée. Voir Refs [6] et [7] pour les théories de Lorenz-Mie généralisées, et Ref [8] pour une théorie spécifique du problème étudié dans cet article. Cette théorie spécifique décrit l'interaction entre un faisceau laser et une sphère contenant une inclusion. Le cas d'une illumination laser dans un plan choisi contenant le centre de la sphère principale et celui de l'inclusion constitue une contrepartie ondulatoire du problème mécanique (et d'optique géométrique) discuté précédé-

ment. Cette théorie repose sur une utilisation de théorèmes translationnels d'addition des fonctions d'onde vectorielles sphériques. Ces mêmes théorèmes rendent techniquement possible la construction d'une théorie de Lorenz-Mie généralisée pour le cas où la sphère principale contient  $N$  inclusions. L'utilisation de théorèmes translationnels d'addition pour les fonctions d'onde vectorielles cylindriques (et non sphériques) permettrait de considérer le cas d'un cylindre contenant des cylindres parallèles disjoints, généralisant la théorie décrite en référence [9].

## 3 Diffusion chaotique

L'effacement du cercle extérieur dans le billard à  $N$ -cercles génère un nouveau problème mécanique (avec sa contrepartie en optique géométrique).

Dans ce problème, les trajectoires venant de l'infini interagissent avec un objet diffusant constitué de  $N$  cercles et repartent à l'infini. La diffusion des trajectoires peut être caractérisée en décrivant un angle de déflexion en fonction d'un paramètre d'impact. Le système diffusant est dit chaotique (ou irrégulier) si la fonction angle de diffusion versus paramètre d'impact est discontinue sur un sous-ensemble fractal de son domaine de définition [10]. Un tel comportement est associé au fait qu'il existe un ensemble de mesure nulle qui engendre, asymptotiquement, un piégeage des trajectoires dans la région d'interaction. Il en résulte une signature fractale de la diffusion. La diffusion chaotique peut être observée en présence de trois cercles

(ou plus), situés dans un même plan [11] [12].

De nouveau, ce problème de mécanique (hamiltonienne) ou, de manière équivalente, d'optique géométrique, peut être étendu à un problème d'optique ondulatoire dans lequel un ensemble de sphères, avec leurs centres situés dans un même plan, est éclairé par un faisceau laser dans ce plan. Une théorie de Lorenz-Mie généralisée associée (mais plus générale, c'est à dire quelles que soient les positions des sphères) a été récemment construite, de nouveau en invoquant les théorèmes translationnels d'addition pour les fonctions d'ondes vectorielles sphériques [13]. Au lieu de considérer des particules sphériques, il est techniquement possible de considérer un ensemble de cylindres circulaires parallèles, dans le cadre d'une généralisation de la théorie présentée en Ref [9]. La question de savoir si ces cylindres circulaires peuvent être remplacés par des cylindres elliptiques, généralisant la Ref [14] reste ouverte.

## 4 Conclusion

Les phénomènes de chaos optique et de diffusion chaotique ont attiré l'attention de nombreux chercheurs depuis quelques années. Ils sont originellement étudiés dans le cadre de la mécanique hamiltonienne ou, de manière équivalente, dans le cadre de l'optique géométrique. Ces problèmes peuvent être élargis à un cadre d'optique ondulatoire. Malheureusement, jusqu'à présent, nous ne disposons pas de situations pour lesquelles le problème ondulatoire associé pouvait être résolu analytiquement de manière exacte.

Il semble qu'il existe un dogme associant "chaos" et "impossibilité de résolution exacte". Ce dogme résulte probablement d'une confusion entre la notion de "résolution exacte" au sens électromagnétique et "d'intégrabilité" au sens de la mécanique hamiltonienne. La construction de deux nouvelles théories de Lorenz-Mie généralisées a permis de montrer la compatibilité entre les deux notions mentionnées ci-dessus. Ces théories doivent maintenant être implantées numériquement. Une question essentielle est de savoir dans quelle mesure les phénomènes chaotiques décrits dans un cadre hamiltonien (ou d'optique géométrique) restent perceptibles dans un cadre ondulatoire. Un enjeu est la possibilité de nouvelles méthodes de caractérisation optique de particules complexes.

## Références

- [1] M.V. Berry. Regularity and chaos in classical mechanics illustrated by three deformations of a circular billiard. *Eur. J. Phys.*, 2: 91–102, 1981.
- [2] J.U. Nöckel and A.D. Stone. *Chaotic light: a theory of asymmetric resonant cavities*, pages 389–426. World Scientific, 1996. in *Optical processes in microcavities*, edited by R.K. Chang and A.J. Campillo.
- [3] O. Bohigas, D. Boosé, R. Egdio de Carvalho, and V. Marvulle. Quantum tunneling and chaotic dynamics. *Nucl. Phys.*, A560: 197–210, 1993.

- [4] L.E. Reichl. *The transition to chaos in conservative classical systems: quantum manifestations*. Springer Verlag, 1992.
- [5] R.K. Chang and A.J. Campillo. eds, *Optical processes in microcavities, Advanced series in Applied Physics, vol 3*. 1996. World Scientific.
- [6] G. Gouesbet. Generalized Lorenz-Mie theory and applications. *Part. Part. Syst. Charact.*, 11: 22–34, 1994.
- [7] G. Gouesbet and G. Gréhan. Generalized Lorenz-Mie theories, from past to future. Invited lecture to ICLASS 2000, to be published in *Atomization and Sprays*.
- [8] G. Gouesbet and G. Gréhan. Generalized Lorenz-Mie theory for a sphere with an eccentrically located spherical inclusion. To be published by *J. Mod. Optics*.
- [9] 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*, 38(9): 1867–1876, 1999.
- [10] C. Jung and S. Pott. Classical cross section for chaotic potential scattering. *J. Phys. A: Math. Gen.*, 22: 2925–2938, 1989.
- [11] S. Bleher, C. Grebogi, and E. Ott. Bifurcation to chaotic scattering. *Physica D*. 46: 87–121, 1990.
- [12] B. Eckhardt. Fractal properties of scattering singularities. *J. Phys. A: Math. Gen.*, 20: 5971–5979, 1987.
- [13] G. Gouesbet and G. Gréhan. Generalized Lorenz-Mie theory for assemblies of spheres and aggregates. To be published by *J. of Optics A: Pure and Applied Optics*.
- [14] G. Gouesbet and L. Mees. Generalized Lorenz-Mie theory for infinitely long elliptical cylinders. *J. Opt. Soc. Amer. A*, 16(6): 1333–1341, 1999.

# **Caractérisation physique des dérivés à vie courte du Radon-222 dans une habitation: comparaison modèle-expérience.**

C. Huet<sup>1</sup>, G. Tymen<sup>1</sup>, N. Michielsen<sup>2</sup>, D. Boulaud<sup>2</sup>.

<sup>1</sup> Laboratoire de Recherches Appliquées Atmosphère - Hydrosphère, Université de Bretagne Occidentale, B.P. 809, 29285 Brest Cedex, France.

<sup>2</sup> Service d'Etudes et de Recherches en Aérocontamination et en Confinement, Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, CEA-Saclay bât 389, 91191 Gif-sur- Yvette Cedex, France.

## **I-Introduction**

Le Radon-222 est un gaz rare naturel issu de la chaîne de décroissance de l'uranium et présent en teneurs variables dans les sols et matériaux de construction. Après exhalation, par désintégrations successives, 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-222. Contrairement au radon qui est un gaz inerte, ses descendants sont des particules radioactives solides pouvant se fixer aux aérosols de l'air ambiant. Leur inhalation et leur déposition dans l'arbre trachéo-bronchique peuvent alors entraîner la destruction des cellules cibles lors de leur désintégration in situ.

Aujourd'hui les études visent à caractériser le risque encouru par les populations exposées à des concentrations parfois non négligeables en radon. Pour appréhender le comportement des descendants du radon à l'intérieur d'une habitation, à des fins d'analyse dosimétrique, on peut choisir deux approches complémentaires: les mesures de terrain et la modélisation des phénomènes physiques. Cependant, bien souvent, ces deux approches se font indépendamment l'une de l'autre et peu de comparaisons modèle-expérience existent notamment en atmosphère intérieure. Aussi, il nous a paru intéressant de confronter nos résultats expérimentaux obtenus dans une habitation lors de conditions domestiques courantes à ceux du modèle PRADDO développé récemment à l'IPSN (Gouronnec, 1995).

## **II- Protocole expérimental**

De Mai 1997 à Avril 1998, des expérimentations ont été conduites dans une habitation située à 10 km de Brest. Elles ont été faites d'une part avec l'aérosol naturel et d'autre part avec des sources d'aérosols typiques de celles rencontrées dans une habitation. Dans ces différentes conditions, des mesures en continu de l'activité volumique en radon, de la fraction libre et du facteur d'équilibre ont été menées à l'aide d'un dispositif original conçu au laboratoire (Huet et al., 1998). En outre, les distributions en taille de l'aérosol ambiant ainsi que celles des descendants libres et attachés du radon ont été déterminées ponctuellement. Ainsi nous avons obtenu une caractérisation complète de l'aérosol radioactif issu du radon (Huet, 1999).

## **III- Modèle PRADDO**

Un schéma de principe du modèle est donné sur la figure 1. Le principe d'un tel modèle est de prévoir les activités volumiques en descendants à partir des différents phénomènes physiques entrant en jeu. En 1972, Jacobi a proposé un modèle, appelé "room

model ", destiné à calculer les concentrations en descendants du radon dans une mine d'uranium. Ce modèle a par la suite été étendu par Porstendörfer et coll. (1978) aux atmosphères intérieures. Le modèle PRADDO est une extension de ce dernier. Une des spécificités du modèle PRADDO est qu'il peut s'appliquer à un système constitué de plusieurs enceintes reliées entre elles. Dans notre cas, nous l'appliquons uniquement à une enceinte. La seconde spécificité est qu'à partir de la connaissance de la granulométrie de l'aérosol ambiant, le modèle peut restituer celle des descendants attachés du radon ce qui est innovant par rapport aux anciens modèles.

Les données d'entrée, permettant de déterminer les paramètres entrant en jeu dans les différents mécanismes auxquels sont soumis les descendants du radon dans une enceinte, peuvent provenir soit de mesures directes soit de valeurs prises dans la littérature. Dans notre application, certaines grandeurs caractéristiques de l'habitation étudiée, telles que l'activité en radon, la fréquence de ventilation et la granulométrie et la concentration de l'aérosol ambiant sont issues de nos mesures. Les autres grandeurs (constantes de décroissance radioactive, probabilité de recul du Po-218, fréquences de dépôt libre et attaché) sont issues de la littérature. Les paramètres ainsi déterminés sont alors injectés dans les équations différentielles décrivant l'évolution des descendants du Radon-222 dans une enceinte.

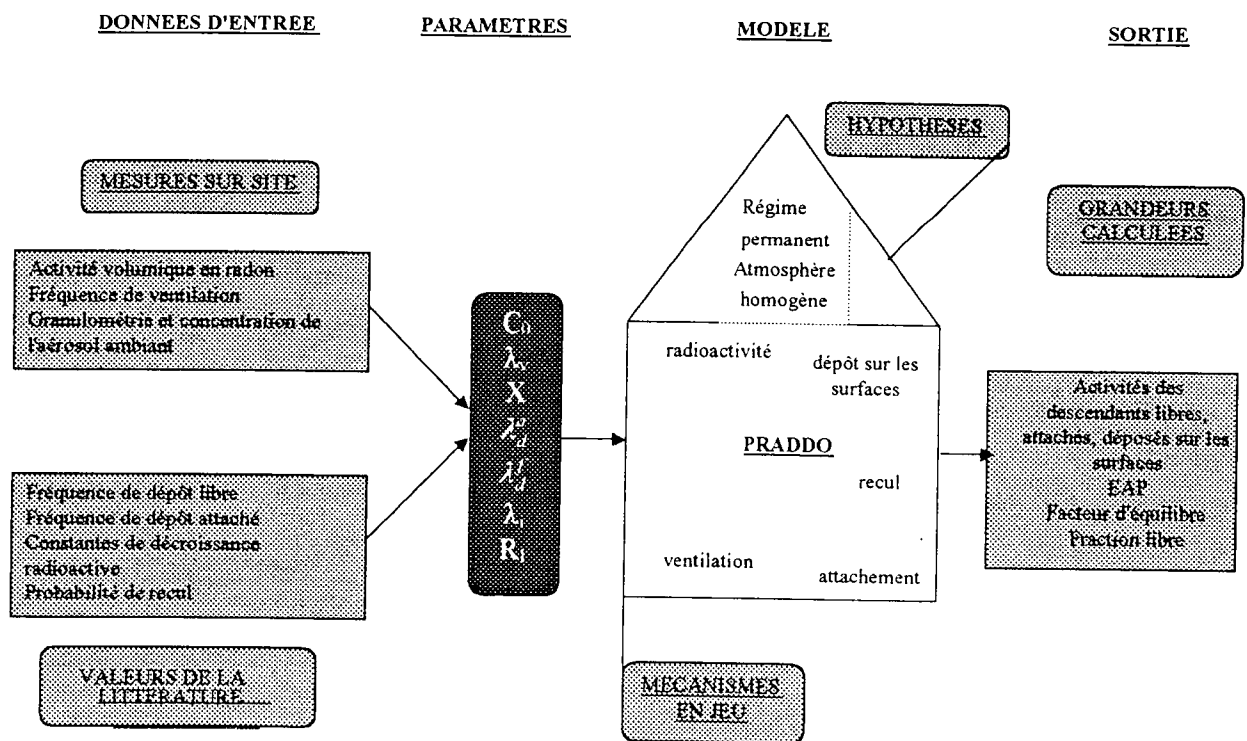


Figure 1: Schéma de principe du modèle PRADDO (Gouronnec, 1995).

Les grandeurs de sortie, calculées par le modèle, sont les activités volumiques en Po-218, Pb-214 et Bi-214 sous forme libre, attachée ou déposée sur les parois, permettant la détermination de l'Energie Alpha Potentielle volumique libre, attachée ou déposée sur les parois ainsi que celle de la fraction libre. Rappelons que l'irradiation possible de l'individu résulte du dégagement d'énergie provenant du rayonnement émis lors de la désintégration du produit radioactif déposé par inhalation dans l'arbre respiratoire. L'énergie absorbée crée



alors un dommage au niveau des cellules qui varie avec le type de rayonnement. Une des grandeurs utiles en dosimétrie est donc l'Energie Alpha Potentielle, c'est à dire l'énergie que les descendants du radon peuvent potentiellement émettre sous forme de rayonnement alpha (Robé et Tymen, 1998). Très souvent, c'est l'Energie Alpha Potentielle volumique totale ( $EAP_V$ ) (en  $\mu\text{J}\cdot\text{m}^{-3}$  ou  $\text{MeV}\cdot\text{m}^{-3}$ ) qui est utilisée. Connaissant l'activité volumique  $C_j$  ( $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ) et l'énergie alpha potentielle  $E_{pj}$  de chaque descendant ainsi que leur constante radioactive  $\lambda_j$  ( $\text{s}^{-1}$ ), elle est donnée par :

$$EAP_V = \sum_j \frac{C_j E_{pj}}{\lambda_j} = 3603 \times C_1 + 17903 \times C_2 + 13123 \times C_3$$

Les autres grandeurs de sortie sont le facteur d'équilibre, calculé à partir de la connaissance de l'activité volumique en radon, et la distribution en taille des descendants attachés qui est déduite de la granulométrie de l'aérosol ambiant.

#### IV- Comparaison modèle-expérience: résultats

Le modèle a préalablement été comparé à des résultats expérimentaux obtenus en laboratoire. Une étude avait également été menée dans le sous-sol d'un bâtiment public (Gouronnec et coll., 1996). Cependant, aucune validation du modèle n'a été faite en ce qui concerne les descendants sous forme libre; aussi, dans un premier temps, il nous a paru intéressant d'étudier ce point.

##### IV-1 Cas d'une situation avec l'aérosol âgé

Nous avons choisi l'étude d'une situation en présence de l'aérosol âgé mettant en évidence une variation de la fraction libre et du facteur d'équilibre respectivement entre 0,14 et 0,41 et entre 0,17 et 0,33 ( période du 20/03/98 à 22h30 au 22/03/98 à 7h30). Les valeurs des données d'entrée que nous utilisons dans les calculs sont mentionnées dans le tableau 1. En ce qui concerne l'activité volumique en radon, sa variation est représentée sur la figure 2. Les valeurs des fréquences de dépôt libre et attaché, ainsi que celle du facteur de recul du Po-218, sont les valeurs couramment rencontrées dans la littérature. Quant à la fréquence d'attachement, elle est déterminée à l'aide des granulométries et de la concentration de l'aérosol ambiant. Pour la période étudiée, elle varie entre 4 et 18  $\text{h}^{-1}$  (figure 2).

Paramètre	Valeur
Activité volumique en radon: $C_0$	Voir Figure 2
Fréquence de ventilation: $\lambda_v$	0,15 $\text{h}^{-1}$
Fréquence de dépôt libre: $\lambda_d^f$	20 $\text{h}^{-1}$
Fréquence de dépôt attaché : $\lambda_d^a$	0,2 $\text{h}^{-1}$
Facteur de recul du Po-218: $R_1$	0,83
Fréquence d'attachement: $X$	Voir Figure 2

Tableau 1: Données d'entrée utilisées dans les calculs.

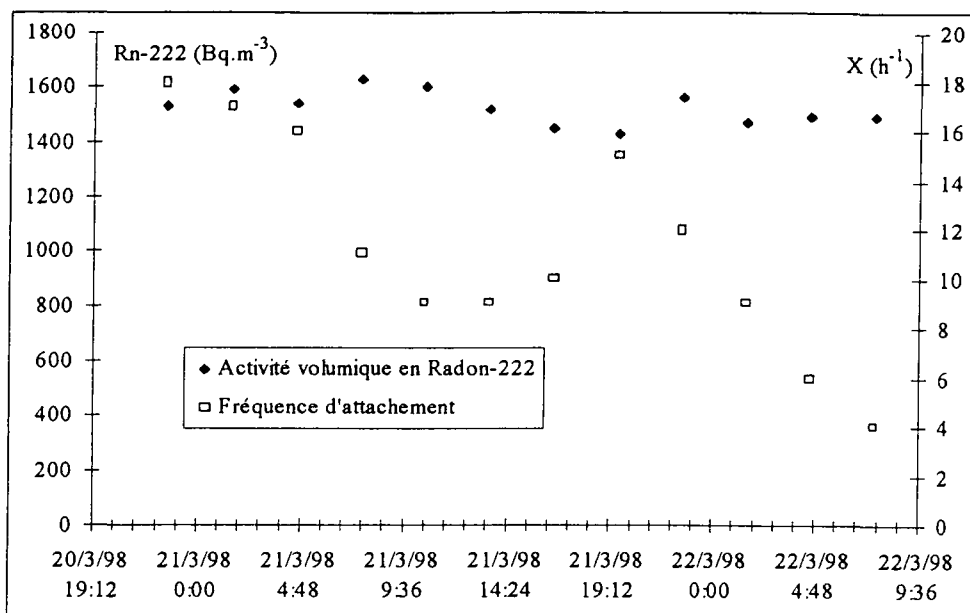


Figure 2: Variations de l'activité volumique en Radon-222 et de la fréquence d'attachement sur la période étudiée.

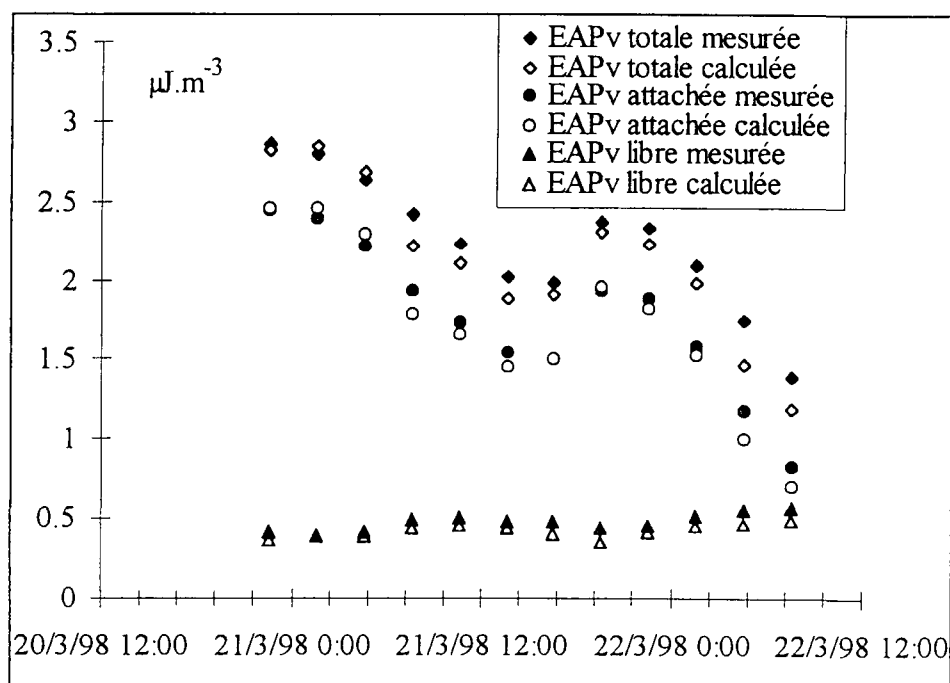


Figure 3: Comparaison modèle expérience pour l'EAP<sub>v</sub> en présence de l'aérosol âgé.

Les résultats obtenus pour l'Energie Alpha Potentielle volumique totale, attachée et libre sont présentés sur la figure 3. Tout d'abord, nous pouvons observer que les valeurs calculées suivent les variations des valeurs expérimentales. Le modèle restitue donc bien les variations des conditions ambiantes. De plus, l'accord entre les deux types de valeurs est satisfaisant puisque l'écart moyen est respectivement de 6, 5 et 11% pour l'EAP<sub>v</sub> totale, attachée et libre. Dans le cas d'un aérosol âgé, le modèle restitue donc fidèlement les valeurs des grandeurs mesurées expérimentalement. En outre, l'examen des résultats concernant l'EAP<sub>v</sub> libre nous permet de valider le modèle en ce qui concerne sa capacité à décrire le comportement des descendants sous forme libre.

#### IV-2 Résultats avec l'ensemble des sources d'aérosols

Dans un second temps, nous avons comparé les résultats expérimentaux et théoriques pour l'ensemble des conditions étudiées. Pour cela, nous avons extrait de notre base de données, 27 situations couvrant l'ensemble de la gamme de valeurs observées pour la fraction libre et le facteur d'équilibre. Les résultats concernant l'EAP<sub>v</sub> totale et l'EAP<sub>v</sub> libre sont présentés sur la figure 4. Pour l'EAP<sub>v</sub> totale, un très bon accord est obtenu puisque l'écart moyen entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées est de 6% pour une variation entre 0 et 22%. Pour l'EAP<sub>v</sub> libre, l'accord est moins bon mais néanmoins satisfaisant. L'écart moyen est de 22%; on peut remarquer qu'à partir d'un certain seuil le modèle a tendance à sous-estimer les valeurs de l'EAP<sub>v</sub> libre. Il est vraisemblable qu'en réalité il n'existe pas une valeur unique de la fréquence de dépôt libre, celle-ci pouvant être modifiée par exemple par la présence de vapeurs organiques qui entraînerait une neutralisation des dérivés ultrafins plus importante.

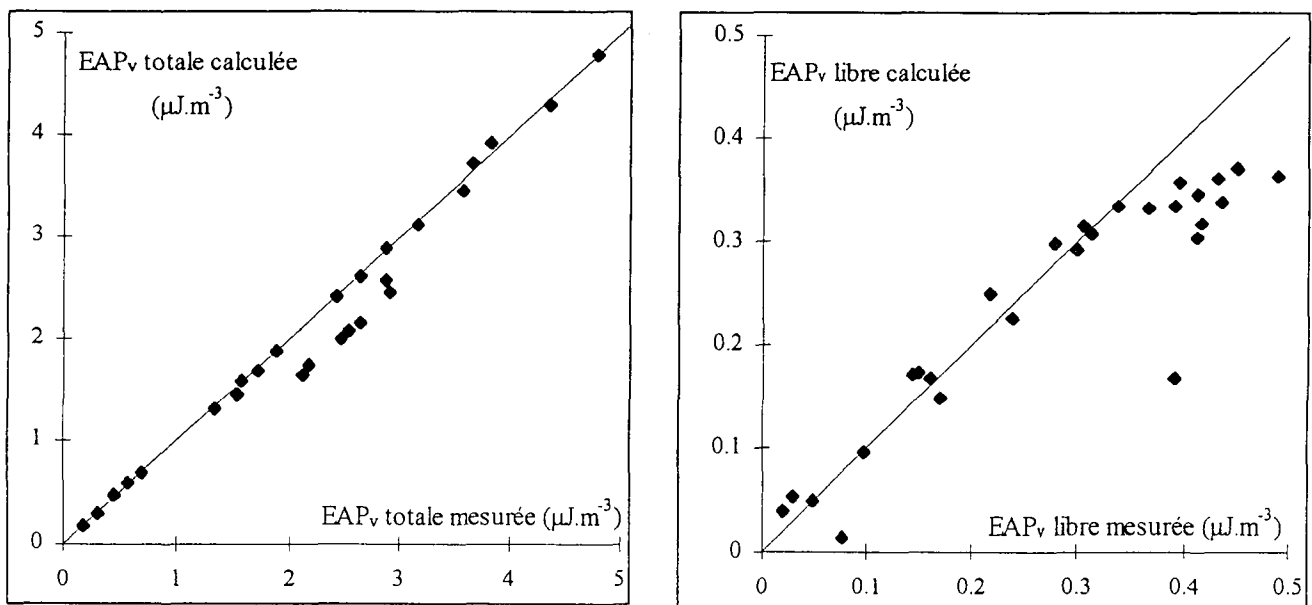


Figure 4: Comparaison modèle-expérience pour l'EAP<sub>v</sub> totale et l'EAP<sub>v</sub> libre en présence de toutes les sources d'aérosols.

#### IV-3 Résultats pour les distributions en taille

Nous avons également confronté les distributions en taille des descendants attachés expérimentales et celles obtenues grâce à la théorie de l'attachement à partir des granulométries de l'aérosol ambiant. En ce qui concerne la granulométrie de l'aérosol âgé, elle était caractérisée par deux modes: le premier situé vers 30 nm et le second vers 115 nm (figure 5). La fréquence d'attachement calculée à l'aide de cette distribution est alors de 4 h<sup>-1</sup> et la distribution en taille des descendants attachés restituée à partir de cette dernière présente une bimodalité (figure 5). Le mode de nucléation situé vers 35 nm représente 15% de l'EAP<sub>v</sub> attachée tandis que le mode d'accumulation est centré sur 130 nm. La distribution expérimentale correspondante est également bimodale avec un mode de nucléation à 40 nm mais représentant seulement 5% de l'EAP<sub>v</sub> attachée et un mode d'accumulation vers 190 nm. Bien que les modes d'accumulation soient décalés, l'accord entre les deux méthodes peut être considéré comme satisfaisant du fait des incertitudes liées aux deux approches.

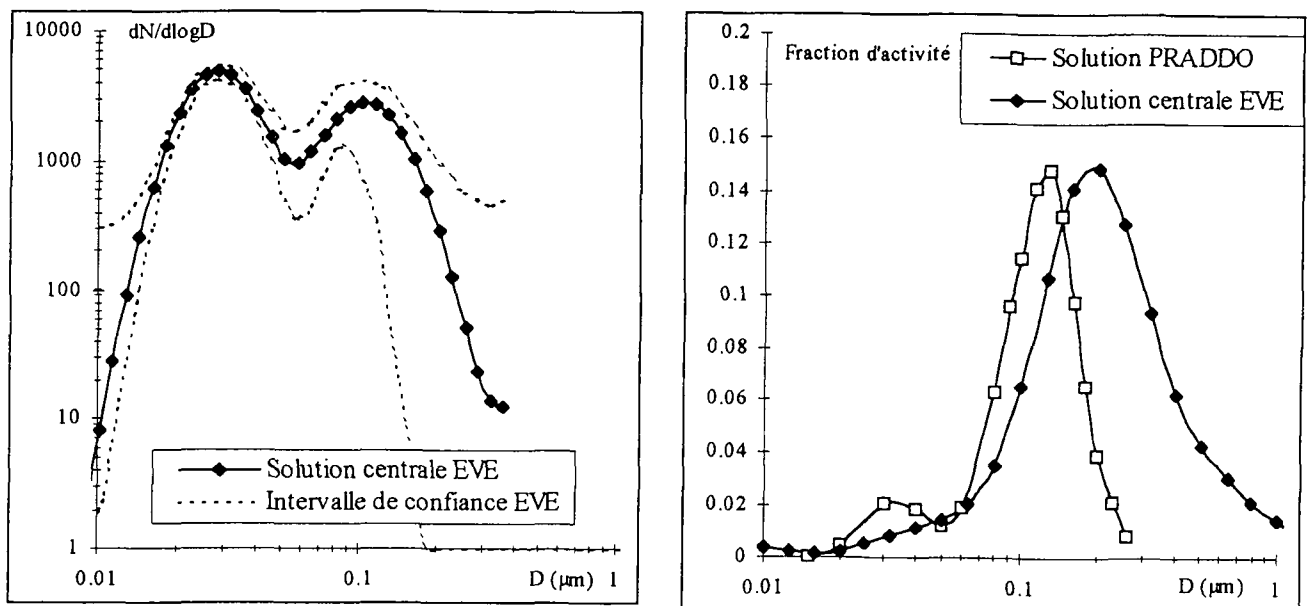


Figure 5: Granulométrie de l'aérosol ambiant et distributions en taille des descendants attachés obtenues à l'aide des deux approches.

## V- Conclusion

Les caractéristiques physiques ( $EAP_v$ , fraction libre, facteur d'équilibre, distributions en taille) des dérivés à vie courte du Radon-222 déterminées expérimentalement ont été comparées à celles obtenues grâce au modèle PRADDO. Un accord satisfaisant a été obtenu entre les deux approches en ce qui concerne l' $EAP_v$  sous forme libre, attachée et totale, le facteur d'équilibre et la fraction libre et ceci pour l'ensemble des conditions expérimentales étudiées. Le modèle a ainsi pu être validé quant à sa capacité à décrire le comportement des descendants sous forme libre. De plus, les distributions en taille des descendants attachés obtenues à l'aide de la théorie de l'attachement sont comparables aux distributions expérimentales. En conclusion, le modèle semble donc une bonne alternative aux mesures à long-terme.

## Références

- Gouronnec A.M. (1995). Modélisation et étude expérimentale du comportement du Radon et de ses descendants dans une enceinte confinée. Application à une habitation, *Thèse de l'Université de Paris XII*.
- Gouronnec A.M., Goutelard F., Montassier N., Boulaud D., Renoux A., Tymen G. (1996). Behavior of radon and its daughters in a basement: model-experiment comparison, *Aerosol Sci. Technol.*, vol. 25, pp. 73-89.
- Huet C. (1999). Etude des caractéristiques physiques – distribution en taille, fraction libre, facteur d'équilibre – des dérivés à vie courte du Radon-222 en atmosphère domestique, *Thèse de l'Université de Bretagne Occidentale*.
- Huet C., Tymen G., Boulaud D. (1998). 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, Actes de Congrès du 14<sup>ème</sup> CFA, pp. 55-60.
- Jacobi W. (1972). Activity and potential alpha-energy of Rn-222 and Rn-220 daughters and their decay products in the atmosphere, *J. Geophys. Res.*, vol.68, pp. 3799.
- Porstendörfer J., Wicke A., Scraub A. (1978). The influence of exhalation, ventilation and deposition process upon the concentration of Radon-222 and Radon-220 and their decay products in room air, *Health Physics*, vol. 34, pp. 465-473.
- Robé M. C., Tymen G. (1998). Métrologie du radon. Echantillonnage et mesure du radon et de ses descendants dans *Le Radon de l'Environnement à l'Homme*, EDP Sciences.

# MISE EN SUSPENSION D'UNE CONTAMINATION PARTICULAIRE PAR ECOULEMENT D'AIR

L. ALLOUL<sup>1,2</sup>, O. WITSCHGER<sup>1</sup>, D. LE DUR<sup>3</sup>, A. RENOUX<sup>2</sup>, J. MONNATTE<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN)  
Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols et du Confinement,  
DPEA/SERAC, CEA-Saclay, 91191 Gif sur Yvette Cedex.

<sup>2</sup>Université Paris XII  
Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations  
Av. du Général de Gaulle, 94010 Créteil Cedex.

<sup>3</sup>Aérolab  
10, av du Québec, 91946 Courtaboeuf.

<sup>4</sup>COGEMA  
Branche Combustible et Recyclage, Service Qualité Sûreté  
1, rue des Hérons, 78182 Saint Quentin en Yvelines Cedex.

## TITLE

PARTICLE REENTRAINMENT FROM A POWDER DEPOSIT IN AN HORIZONTAL AIR FLOW

## ABSTRACT

Particle reentrainment from surfaces to turbulent air flow is an important subject in many different fields like nuclear safety, environmental air pollution, sediment transport by wind, surface contamination in semiconductor operations. Theoretical and experimental studies have been numerous and cover different aspects of the phenomena. Although a number of theoretical works have been devoted for describing the mechanisms of detachment of primary spherical particles from flat smooth surfaces in a turbulent flow, experimental data are still needed in order to comparison. Moreover, the knowledge of the effect of parameters related to the deposit (monolayer, multilayer, conelike pile), the powder particles (particle-size distribution, adhesive properties), the surface (roughness, ...), the airflow (velocity, acceleration, turbulence) or the environment (humidity, ...) is still in an elementary stage. The main objective of our work is to contribute to the understanding and quantification of the parameters that govern the particle reentrainment from a powder deposit in an turbulent horizontal airflow. Therefore, a new experimental facility called BISE (french acronym for wind tunnel for studying particle reentrainment by airflow) has been designed and built in our laboratory.

## RESUME

La mise en suspension par écoulement d'air de particules déposées sur une surface, c'est à dire le détachement de celles-ci de la surface puis leur envol dans l'écoulement libre, a suscité et suscite encore un certain nombre d'études théoriques et expérimentales intervenant dans différents domaines tels que la sûreté nucléaire, la pollution de l'air, le transport éolien des sédiments, ou bien la contamination de surface.

Si la connaissance théorique du phénomène est relativement claire pour le cas d'une particule sphérique isolée sur une surface plane dans un écoulement turbulent, elle nécessite toutefois d'être validée par des données expérimentales (Ziskind *et al.*, 1995). De plus, il existe encore de nombreuses zones d'ombres lorsqu'on prend en compte les paramètres relatifs à la contamination déposée (type monocouche, multicouche ou en amas), à l'ensemble des particules qui constituent la contamination (distribution granulométrique, propriétés physico-chimiques), à la surface (rugosité, ...), à l'écoulement d'air (vitesse, accélération, turbulence) ou bien au milieu ambiant (humidité relative, ...).

Fromentin (1989) est le premier à avoir effectué un travail théorique et expérimental sur la mise en suspension d'un dépôt multicouche de particules. Cependant, ces résultats ne sont pas directement exploitables pour nos applications compte tenu principalement de la gamme de vitesse d'air étudiée (5 à 25 m/s) et des caractéristiques du dépôt (particules monodispersées comprises entre environ 0,5 et 4 µm).

Cette étude expérimentale a pour objectif d'étudier l'influence des paramètres fondamentaux de mise en suspension, par écoulement d'air, d'une contamination particulaire polydispersée déposée sur une surface. On présente ici l'installation expérimentale BISE (Banc de mise en Suspension par Ecoulement) qui a été conçue et réalisée.

## Introduction

La mise en suspension par écoulement d'air de particules déposées sur une surface, a suscité et suscite encore un certain nombre d'études théoriques et expérimentales intervenant dans différents domaines tels que la sûreté nucléaire, la pollution de l'air, le transport éolien des sédiments, ou bien la contamination de surface.

Dans le domaine nucléaire, l'évaluation des conséquences d'une situation accidentelle dans les laboratoires et usines du cycle du combustible, pose des questions de sûreté spécifiques. Entre autre, dans certaines situations accidentelles potentielles, des matières radioactives sont susceptibles d'être dispersées dans l'atmosphère des locaux confinés ou ventilés, et ainsi d'être transférées jusqu'aux voies de rejet à l'environnement ou atteindre l'homme.

La mise en suspension d'une contamination particulaire par écoulement de l'air suscite encore de nombreuses interrogations notamment dans la connaissance des coefficients de mise en suspension. En effet, ces coefficients utilisés dans la réalisation des études de sûreté, permettent de calculer à partir du terme potentiellement dispersable, la quantité de matière susceptible d'être réellement dispersée.

Notre travail vise donc à étudier les différents paramètres fondamentaux qui gouvernent le processus de mise en suspension, par écoulement de l'air, d'une contamination particulaire déposée sur une surface. L'étude expérimentale nécessite de disposer de moyens performants et qualifiés pour la gamme de vitesses d'air (0,1 à 10 m/s) et la gamme de dimension de particules (diamètre compris entre quelques micromètres et environ 100  $\mu\text{m}$ ) choisies. Nous décrivons ici l'installation expérimentale BISE qui a été conçue et réalisée au laboratoire. Nous présentons ensuite la méthodologie expérimentale envisagée pour mener à bien notre étude.

## Etat de l'art

Dans diverses situations, un tas de poudre constituée de particules polydispersées est déposé sur une surface rugueuse. Lorsque ce dépôt est soumis à un écoulement d'air horizontal comportant des structures turbulentes semblables à des tornades microscopiques (en anglais *bursts*), une partie voire la totalité des particules de la poudre est mise en suspension dans l'air par détachement des particules puis envol dans l'écoulement libre. Nous nous attacherons ici à la fraction de particules *immédiatement* détachée. Une représentation schématique de la situation est illustrée par la Figure 1.

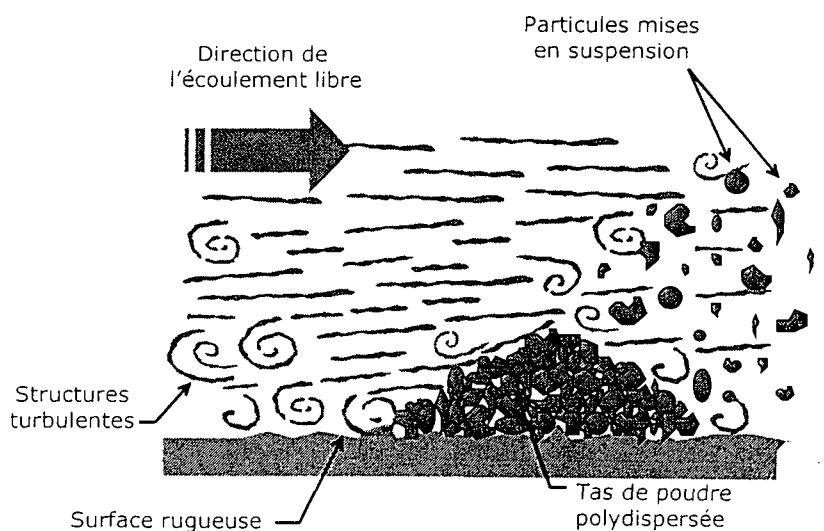


Figure 1 – Représentation schématique de la mise en suspension de particules d'un dépôt de poudre exposé à un écoulement d'air turbulent.

On constate alors que le processus de mise en suspension est le résultat de la compétition entre forces d'adhérence et forces hydrodynamiques agissant sur un ensemble de particules sur une période donnée.

Cette compétition met en jeu un ensemble de paramètres liés :

- au dépôt ,
- aux particules de la poudre,
- à la surface sur laquelle est déposée la poudre,
- à l'écoulement d'air,
- à l'environnement.

La mise en suspension par écoulement d'air d'une particule déposée sur une surface a suscité un vif intérêt notamment ces dix dernières années. On recense ainsi dans la littérature scientifique un grand nombre d'études théoriques et expérimentales sur les différents aspects de ce sujet (Ziskind *et al.*, 1995). Ces études interviennent dans différents domaines comme la sûreté nucléaire, la pollution de l'air, le transport éolien des sédiments, ou encore la contamination de surface (altération du bon fonctionnement de dispositifs microélectroniques).

En recherche de base, le besoin concerne principalement l'étude de la mise en suspension à proximité immédiate de la surface. Si la connaissance théorique du phénomène est relativement claire pour le cas d'une particule sphérique isolée sur une surface plane dans un écoulement turbulent, elle nécessite toutefois d'être validée par des données expérimentales. Au niveau du détachement, les modèles théoriques existants intègrent le concept selon lequel les structures cohérentes turbulentes (en anglais *bursts*) de la couche limite sont associées au détachement des particules (Braaten *et al.*, 1988). Ces modèles sont basés sur un bilan des forces d'adhérence et des forces aérodynamiques (Wen and Kasper, 1989) ou sur le principe d'accumulation d'énergie de la particule (Reeks *et al.*, 1988) mais ne sont pas strictement en accord avec les quelques données expérimentales existantes. D'autre part, une approche basée sur l'action des moments des forces (Tsai, 1990) tient compte du fait que la particule peut rouler ou glisser avant de se mettre en suspension. Quant à la dynamique de la particule une fois celle-ci détachée de la surface pour laquelle la connaissance est faible, celle-ci a fait récemment l'objet d'une étude théorique (Ziskind *et al.*, 1998).

On constate qu'il existe très peu d'études génériques dans la littérature qui fournissent directement des coefficients de mise en suspension. A l'heure actuelle, l'étude la plus complète est due à Fromentin (1989) qui a effectué un travail théorique et expérimental sur la mise en suspension d'un dépôt multicouche de particules. Cette étude (PARESS) s'applique aux écoulements turbulents dont les vitesses d'air sont comprises entre 5 et 25 m/s, et à des dépôts multicouches constitués de particules monodispersées comprises entre environ 0,5 et 4  $\mu\text{m}$ . A partir de ses résultats expérimentaux, Fromentin établit une corrélation de type semi-empirique. Cette corrélation (1) permet de calculer, pour une durée d'exposition à l'écoulement d'air  $t$  et des conditions de vitesses de frottement à la surface  $u_*$ , le flux de matière mis en suspension  $Flux_{MeS}$  :

$$Flux_{MeS}(t, u_*) = 0,0025 * (u_* - 0,29)^3 * t^{-1,2} \sqrt{u_*} \quad [\text{g/cm}^2\text{s}] \quad (1)$$

avec  $t$  compris entre 2 et 10000 s et  $u_*$  compris entre 0,3 et 1 m/s.

La mise en suspension initiale sur la période 0 à 2 secondes n'a pas pu être mesurée quantitativement. Toutefois, Fromentin observe par photométrie une forte mise en suspension pendant cette période initiale et estime que le flux moyen sur les deux premières secondes vaut :

$$Flux_{MeS}(u_*) = 10 * Flux_{MeS}(t = 2, u_*) \quad (2)$$

A partir de la corrélation (1) et du résultat (2), il est possible de calculer par intégration la masse totale des particules mises en suspension par unité de temps et par unité de surface sur la période donnée.

Le travail de Fromentin ne fournit pas directement des coefficients de mise en suspension exploitables pour nos applications. En effet, ces dernières concernent principalement des poudres polydispersées dont les dimensions des particules sont comprises entre quelques micromètres et environ 100  $\mu\text{m}$ , et des vitesses d'air dans la gamme 0,1 à 10 m/s. Enfin la corrélation semi-empirique développée par Fromentin ne tient compte que de deux facteurs (durée d'exposition et vitesse de frottement à la surface) alors que nous cherchons à apprécier l'influence d'un plus grand nombre de paramètres.

Les modèles physiques théoriques de l'adhérence et de la mise en suspension, les modèles macroscopiques et les corrélations, ainsi que les études expérimentales de la littérature nous permettent de répertorier une vingtaine de paramètres pouvant influencer le phénomène physique de mise en suspension.

## Installation expérimentale

L'étude en laboratoire de la mise en suspension d'une poudre déposée sur une surface requiert une installation expérimentale spécifique. C'est pourquoi un dispositif expérimental dénommé BISE (Banc de mIse en Suspension par Ecoulement) a été conçu et réalisé.

Sa configuration actuelle est décrite par la Figure 2. Il s'agit d'une veine d'air en circuit ouvert, dont la longueur totale est de l'ordre de 5 mètres. L'air est véhiculé dans le banc par une pompe à vide située en sortie de l'installation (Fig. 2, J).

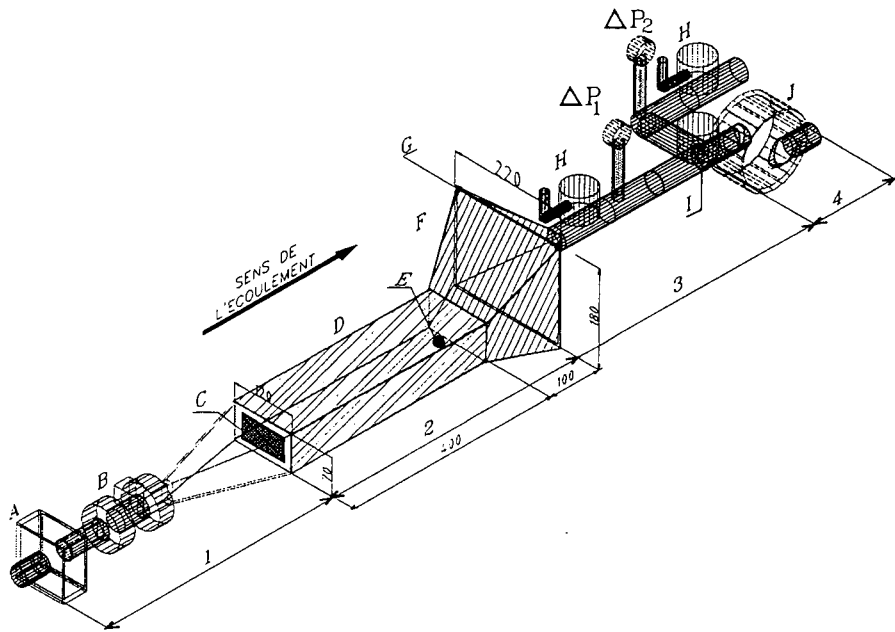


Figure 2 – Schéma de l'installation expérimentale BISE (Banc de mIse en Suspension par Ecoulement). A : filtre THE ; B : compteur volumétrique ; C : grille de turbulence ; D : canal parallélépipédique ; E : surface d'essai ; F : zone de dépôt ; G : filtre de prélèvement ; H : vannes de réglage ; I : vanne électropneumatique trois voies ; J : pompe à vide.

La zone principale (Fig. 2, zone 2) de l'installation est composée de deux parties en plexiglas. La première correspond à un conduit parallélépipédique rectangle horizontal (Fig. 2, D) de 40 cm de longueur, 12 cm de largeur et 7 cm de hauteur. Ces dimensions ont été déterminées compte tenu du fait, principalement, que le phénomène physique étudié a lieu à proximité immédiate de la surface. D'autre part, la gamme des vitesses d'air recherchées (de 0,1 à 10 m/s) impose de pouvoir disposer à vitesse élevée d'un débit important (de l'ordre de 300 m<sup>3</sup>/h). Enfin, les études expérimentales de la littérature montrent qu'il convient d'étudier la mise en suspension dans des conditions bien contrôlées si l'on souhaite pouvoir apprécier les paramètres les plus influents.

Immédiatement en amont du plan de sortie de la section droite parallélépipédique se trouve la surface d'essai (Fig. 2, E) sur laquelle sera déposée la poudre. Cette surface d'essai circulaire et de diamètre 4 cm est amovible. Elle laisse ainsi la possibilité de changer de surface de dépôt (acier inox ou autre) ou uniquement de modifier le paramètre de rugosité de celle-ci. Le centre de cette surface d'essai est localisé dans l'axe de direction principale de l'écoulement, au niveau de la base inférieure du conduit. Ce point est pris comme référence géométrique dans l'installation BISE.

La seconde partie qui constitue la zone principale du dispositif est de forme trapézoïdale rectangle (Fig. 2, F). Elle correspond à la zone de récupération de la poudre à l'issue d'une expérience. Elle est composée d'un filtre de prélèvement vertical (Fig. 2, G) de 18 cm de hauteur et 22 cm de largeur. La distance entre la surface d'essai et le porte-filtre est de 12 cm. La géométrie divergente de cette partie (Fig. 2, F) est imposée par les vitesses d'écoulement envisagées lors des expériences (jusqu'à 10 m/s), le type de filtre retenu qui impose des pertes de charge élevées, et la disponibilité des pompes à vide du commerce. La solution technique qui est envisagée (augmentation de la surface du filtre de prélèvement) n'a pas d'influence sur le phénomène local de mise en suspension.



En amont de la zone principale se trouve un système de filtration Très Haute Efficacité THE (Fig. 2, A) qui assure un air propre, sans contamination particulaire parasite, dans le reste du banc. Un compteur volumétrique à turbine (Schlumberger Fluxi 2100, Fig. 2, B) permet de contrôler le débit volumique imposé dans BISE au cours d'une expérience. La mesure est effectuée à partir de la fréquence de rotation de la turbine. Une grille à maille carrée (Fig. 2, C) se trouve localisée en amont de la section droite de la veine parallélépipédique. Cette grille est destinée d'une part à homogénéiser les vitesses d'air sur toute la section de la veine, et d'autre part à induire une turbulence dans le plan de positionnement de la poudre qui soit la plus homogène et isotrope possible.

En aval de la zone principale se trouve un dispositif d'ajustement du débit (Fig. 2, zone 3) composé de deux vannes de réglage identiques (Fig. 2, H) dont l'une est positionnée sur la veine principale et l'autre sur une veine de dérivation. Le passage entre les deux veines s'effectue à l'aide d'une vanne électropneumatique trois voies à vitesse d'ouverture réglable (Fig. 2, I). Cette configuration a été choisie afin de pouvoir contrôler l'accélération de l'écoulement au démarrage d'une expérience.

L'air est véhiculé dans BISE par aspiration grâce à une pompe à vide (Rietschle SMV 500, Fig. 2, J) dont les caractéristiques de débit et de perte de charge ont été déterminées par les conditions d'essais sur l'écoulement et par la méthodologie expérimentale envisagée (prélèvement sur filtre). Le positionnement de la pompe en sortie du circuit (Fig. 2, zone 4) permet de ne pas induire une éventuelle turbulence additionnelle. L'installation fonctionnant en légère dépression, nous avons donc effectué des tests d'étanchéité pour s'assurer qu'aucune contamination extérieure ne pénètre dans le banc.

Le banc BISE est équipé d'éléments de mesure et de contrôle de divers paramètres environnementaux (hygrométrie, température et pression) à l'intérieur de l'installation. L'ensemble des acquisitions s'effectue par l'intermédiaire d'un PC industriel associé à l'installation.

### **Méthodologie envisagée**

On définit la quantité totale de matière particulaire mise en suspension comme étant la somme de la quantité qui sera présente sur le filtre de prélèvement  $M_F$  et de celle qui serait déposée entre la surface d'essai (Fig. 2, E) et le plan du filtre (Fig. 2, G), dans la zone de dépôt  $M_D$ . On détermine ainsi la fraction mise en suspension  $K_{MES}$  par la relation suivante :

$$K_{MES} = \frac{M_F + M_D}{M_S} \quad (3)$$

où  $M_F$ ,  $M_D$  et  $M_S$  sont respectivement la quantité de poudre mesurée sur le filtre, dans la zone de dépôt, et initialement présente sur la surface d'essai.

A l'heure actuelle, différentes techniques d'analyse sont envisagées pour déterminer la quantité de matière particulaire mise en suspension. La première est une méthode gravimétrique fine qui permet d'obtenir une mesure globale (masse totale) du coefficient de mise en suspension. La poudre étant constituée de particules polydispersées, l'autre méthode envisagée est fondée sur une analyse granulométrique des différentes quantités  $M_i$  à l'aide de la technique Coulter. Cette technique d'analyse doit permettre de déterminer la fraction mise en suspension par classe granulométrique, notamment en fonction du diamètre équivalent en volume ou du diamètre aérodynamique.

D'après notre étude bibliographique, une vingtaine de paramètres gouvernant le processus de mise en suspension ont pu être listés et préclassés par ordre d'influence sur le phénomène. Toutefois, compte tenu de ce nombre important de paramètres, nous avons souhaité adopter une méthodologie expérimentale basée sur les plans d'expériences. Cette approche a l'avantage de réduire le nombre d'expériences tout en optimisant les résultats obtenus.

La prise en compte des contraintes expérimentales nous conduit finalement à retenir les neuf paramètres suivants pour nos premières expériences :

- les dimensions géométriques des particules (diamètre médian et écart type),
- la masse volumique tassée de la poudre,
- la masse du tas de poudre,
- l'humidité de la poudre,
- la forme du tas de poudre,

- la rugosité de la surface d'essai,
- la vitesse de l'écoulement d'air,
- la durée d'exposition à l'écoulement,
- l'accélération de l'écoulement d'air.

Le paramètre humidité de l'air ambiant dans BISE n'a pas été retenu dans un premier temps, compte tenu de la non disponibilité actuelle d'un système de traitement d'air adapté à notre installation.

A l'heure actuelle, un premier plan de seize expériences à deux niveaux sur ces neuf paramètres est envisagé. Les résultats expérimentaux issus de cette première série d'expériences devraient permettre d'apprécier les effets principaux des paramètres retenus sur la mise en suspension, et ainsi d'en effectuer un classement.

## **Conclusions et perspectives**

Notre travail a pour objectif, rappelons-le, d'étudier les paramètres qui régissent le phénomène physique de mise en suspension par écoulement d'air de particules d'une poudre déposée sur une surface. L'étude bibliographique nous montre qu'à ce jour, il existe un manque de connaissance et de données expérimentales permettant d'appréhender le phénomène de mise en suspension qui reste complexe.

Afin que les coefficients de mise en suspension que nous déterminerons expérimentalement puissent être directement exploitables, nous souhaitons conduire des expériences de type "semi-global". Il s'agit d'élaborer une base de données expérimentales qui devrait permettre de mieux appréhender ce sujet. Pour ce faire, une installation expérimentale BISE a été conçue et réalisée au laboratoire. Elle doit nous permettre de conduire des expériences pour des gammes de vitesses comprises entre environ 0,1 et jusqu'à 10 m/s et pour des diamètres de particules comprises entre quelques micromètres et environ 100 µm.

A l'heure actuelle, l'installation expérimentale BISE est en phase de qualification aéraulique. Il s'agit en effet de bien caractériser l'écoulement d'air dans la veine d'air où sera déposée la poudre d'essai, principalement les champs de vitesses et de turbulence, mais également le profil de vitesse au voisinage de la surface d'essai. La technique qui a été choisie pour ces mesures est l'anémométrie à fil chaud haute fréquence.

Par ailleurs, le grand nombre de paramètres retenus nous conduit à choisir une méthodologie expérimentale sur la base de plans d'expériences. La procédure expérimentale qui permettra de déterminer la fraction mise en suspension est actuellement en cours d'élaboration. Il s'agira, entre autre, de bien évaluer la reproductibilité de ces expériences.

## **Références bibliographiques**

- Braaten, D. A., Paw, U. K. T., Shaw R. H. (1988) *Coherent structures and particle detachment in boundary layer flows. J. Aerosol Sci., 19, 1183-1186.*
- Fromentin (1989) *Particle resuspension from a multi-layer deposit by turbulent flow. Ph. D. Thesis, PSI-Bericht Nr.38, Paul Scherrer Institut, Switzerland, September 1989.*
- Reeks, M. W., Reed, J. and Hall, D. (1988) *On the resuspension of small particles by a turbulent flow. J. Phys. D: Appl. Phys. 21, 574-589.*
- Tsai, C. J. (1990) *A study of particle phenomena in computer disk drives. Ph. D. Thesis, University of Minnesota, Minnesota, USA, June 1990.*
- Wen, H. Y., Kasper, G. (1989) *On the kinetics of particle reentrainment from surfaces. J. Aerosol Sci., 20, 483-489.*
- Ziskind, G., Fichman, M., Gutfinger, C. (1995) *Resuspension of particulates from surfaces to turbulent flows - Review and analysis. J. Aerosol Sci., 26, 613-644.*
- Ziskind, G., Fichman, M., Gutfinger, C. (1998) *Effect of shear on particle motion near a surface - Application to resuspension. J. Aerosol Sci., 29, 323-338.*

# ETUDE EXPERIMENTALE DU PROCESSUS DE CHARGE ELECTRIQUE DES AEROSOLS RADIOACTIFS EMETTEURS BETA

F. GENSDARMES<sup>1,2</sup>, D. BOULAUD<sup>1</sup>, A. RENOUX<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 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.

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

**RESUME** : La radioactivité d'un aérosol peut modifier sensiblement ses propriétés électriques, et ainsi modifier son évolution dans une enceinte. Il existe plusieurs modèles pour déterminer l'état de charge électrique d'un aérosol radioactif. Cependant, le nombre de résultats expérimentaux permettant de valider ces modèles est restreint. Pour ce faire, nous avons conçu et réalisé un dispositif expérimental permettant de produire un aérosol radioactif calibré de <sup>137</sup>Cs et d'analyser sa distribution de charges électriques à l'état stationnaire. Nos résultats expérimentaux montrent un accroissement de la charge moyenne de l'aérosol lorsque l'activité spécifique des particules augmente. De plus, nos résultats montrent que la distribution de charges de l'aérosol varie significativement lorsque l'intensité d'ionisation est réduite ou bien lorsque la géométrie où évolue l'aérosol n'est pas "infinie".

## INTRODUCTION

Le processus de charge électrique d'un aérosol radioactif est différent de celui d'un aérosol inactif. En effet, les expériences réalisées par Yeh *et al.* (1976) ont montré que l'on peut observer un auto-chargement positif de l'aérosol, ce dernier étant dû à l'émission de particules chargées ( $\alpha$  ou  $\beta$ ).

Plusieurs études théoriques (Clement et Harrison 1990, Clement *et al.* 1995, Clement et Harrison 1996) montrent que l'état de charge électrique d'un aérosol radioactif peut influencer sur son transport et son évolution. On peut citer par exemple les effets suivants : le transport des particules chargées dans un champ électrique, la modification de la coagulation de l'aérosol et le dépôt des particules sur les surfaces conductrices par force image. Ce dernier effet peut augmenter sensiblement le dépôt des particules dans les voies respiratoires (Melandri *et al.* 1983, Cohen *et al.* 1996).

Il existe plusieurs modèles permettant de déterminer la distribution de charges électriques d'un aérosol radioactif (Clement et Harrison 1992). Cependant les résultats expérimentaux disponibles sont peu nombreux (Ivanov et Kirichenko 1970, Yeh *et al.* 1976, Yeh *et al.* 1978). Les expériences réalisées jusqu'à maintenant sur la charge électrique des aérosols radioactifs ne permettent pas de valider définitivement les modèles (Gensdarmes *et al.* 1997). Afin de valider ces modèles nous réalisons un montage expérimental original permettant d'étudier les principaux paramètres influant sur la charge des aérosols radioactifs. Notre dispositif expérimental permet de maîtriser la production d'un aérosol radioactif monodispersé, son évolution dans une enceinte, ainsi que l'analyse de la distribution de charges électriques à l'état stationnaire.

## ELEMENTS THEORIQUES

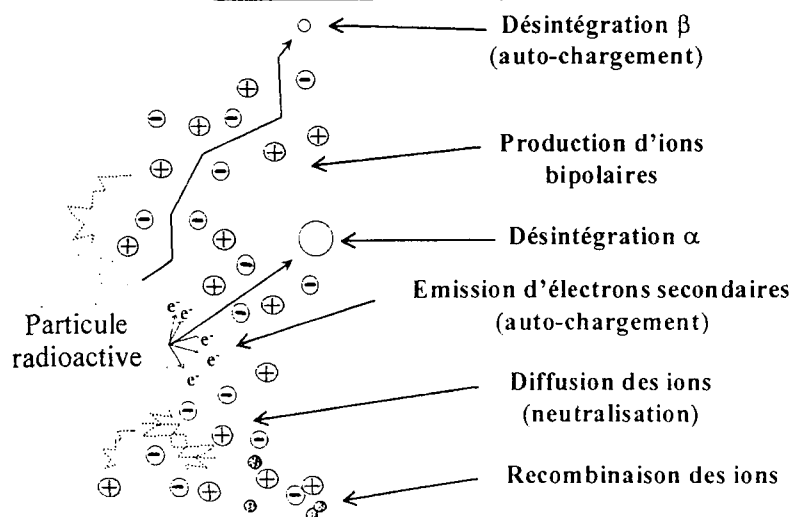


Figure 1 : processus de charge électrique d'un aérosol radioactif.

Nous représentons sur la figure 1 les différents mécanismes intervenant dans le processus de charge électrique d'un aérosol radioactif. La charge moyenne de l'aérosol résulte de l'équilibre entre un processus d'auto-chargement et un processus de neutralisation des particules. L'auto-chargement positif d'un aérosol radioactif est dû à l'émission d'électrons bêta ou bien à l'émission d'électrons secondaires, arrachés par les particules alpha (Ivanov *et al.* 1969). Le terme de neutralisation est dû aux flux d'ions positifs et négatifs vers la surface de la particule. Généralement le flux d'ions négatifs est plus important, du fait de la diffusion plus rapide des ions négatifs.

Dans une étude précédente (Gensdarmes *et al.* 1997), nous avons synthétisé les différentes approches permettant de modéliser la charge électrique d'un aérosol radioactif. Rappelons ici la solution des équations de Clement et Harrison (1992). Ces auteurs déterminent une solution analytique approchée de la charge moyenne  $J$  à l'état stationnaire. La solution est fonction de 3 paramètres adimensionnels ( $x, \lambda, y$ ). La distribution de charges est alors représentée par une loi normale centrée sur  $J$  et d'écart type  $\sigma$ .

$$x = \frac{N_+ \cdot \mu_+}{N_- \cdot \mu_-} \quad \lambda = \frac{e^2}{8\pi \cdot \epsilon_0 \cdot R_p \cdot k \cdot T} \quad y = \frac{\epsilon_0 \cdot \eta}{e \cdot \mu_- \cdot N_-} \quad (1)$$

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

$$J = m \cdot y + \frac{x-1}{2\lambda} \quad \text{pour } \lambda y \leq 0,22 \quad (3)$$

$$\sigma = \sqrt{y + 1/2\lambda} \quad (4)$$

où  $J$  représente la charge moyenne des particules d'aérosol (nombre de charges élémentaires),  $N_+$  et  $N_-$  les concentrations respectives en ions positifs et négatifs ( $m^{-3}$ ),  $\mu_+$  et  $\mu_-$  les mobilités respectives des ions positifs et négatifs ( $m^2 \cdot v^{-1} \cdot s^{-1}$ ),  $R_p$  le rayon des particules ( $m$ ),  $\eta$  l'activité spécifique des particules (Bq/particule),  $m$  le nombre moyen d'électrons émis lors d'une désintégration (émission  $\beta$  :  $m=1$ ),  $T$  la température (K),  $k$  la constante de Boltzmann ( $k=1,38 \cdot 10^{-23}$  J/K),  $e$  la charge élémentaire ( $e=1,6 \cdot 10^{-19}$  C) et  $\epsilon_0$  la permittivité du vide ( $\epsilon_0=8,85 \cdot 10^{-12}$  F/m).

Nous remarquons que l'utilisation des équations précédentes nécessite le calcul des concentrations en ions positifs et négatifs dans le milieu. Ces concentrations peuvent être déterminées de façon approchée en utilisant les relations suivantes :

$$N \cong \sqrt{\frac{I \cdot \eta \cdot C}{\alpha}} \quad I = \frac{1}{3} \frac{E_{\max}}{w_i} \quad (5,6)$$

où  $N$  représente la concentration en ions ( $m^{-3}$ ),  $I$  le nombre de paires d'ions créé à chaque désintégrations,  $C$  la concentration de l'aérosol ( $m^{-3}$ ),  $\alpha$  le coefficient de recombinaison des ions ( $\alpha=1,6 \cdot 10^{-12}$   $m^3/s$ ),  $E_{\max}$  représente l'énergie maximum du rayonnement bêta (pour le  $^{137}\text{Cs}$   $E_{\max}=512$  keV) et  $w_i$  le potentiel d'ionisation de l'air ( $w_i \cong 35$  eV).

### DISPOSITIF EXPERIMENTAL

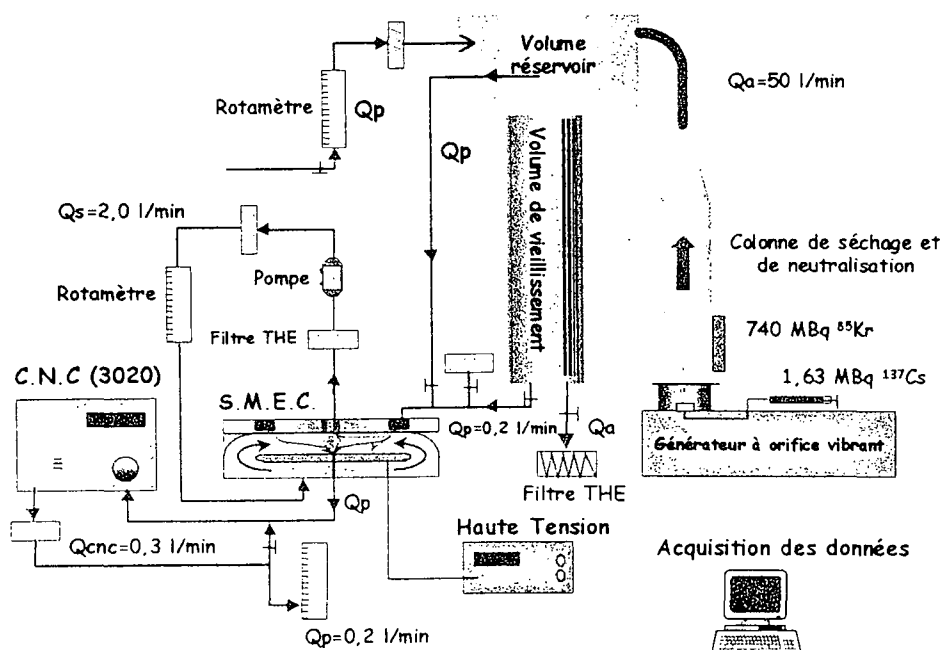


Figure 2 : dispositif expérimental.

Le dispositif expérimental que nous avons développé pour cette étude et qui est représenté figure 2 comporte 3 parties distinctes, permettant d'effectuer les trois principales opérations nécessaires pour la réalisation d'une expérience.

#### Production d'un aérosol radioactif monodispersé.

Nous produisons un aérosol radioactif monodispersé à l'aide d'un générateur à orifice vibrant (TSI 3450). Cet appareil permet de produire des gouttelettes de diamètres déterminés et uniformes à partir d'une solution liquide (Berglund et Liu, 1973). Les gouttelettes sont séchées par dilution avec de l'air sec pour obtenir un aérosol solide. Le diamètre des particules sèches est déterminé par la concentration en impuretés de la solution. L'activité spécifique des particules est déterminée en fonction du diamètre des gouttelettes produites et de l'activité spécifique de la solution radioactive étalon utilisée. La concentration de l'aérosol est déterminée par la fréquence de production des gouttelettes et le débit d'air de séchage.

Nous utilisons pour nos expériences des solutions étalons en activité de  $^{137}\text{Cs}$ . Le diamètre aérodynamique de l'aérosol produit est d'environ  $1\ \mu\text{m}$ , le coefficient de variation est de l'ordre de 6 %. La concentration de l'aérosol peut varier entre 5 et  $25\ \text{p}/\text{cm}^3$ .

#### Evolution de l'aérosol radioactif.

Compte tenu du temps disponible pour la production de l'aérosol radioactif (<10 min) et du temps nécessaire à l'analyse d'une distribution de charges (~30 min) nous avons besoin de constituer un réservoir d'aérosols. Le volume réservoir que nous avons conçu permet à l'aérosol d'évoluer pendant un temps suffisant pour atteindre une distribution de charges stationnaire. Ce temps est régulé dans le système par le débit de prélèvement.

Ce volume est composé de 2 parties. La première partie est constituée d'un cylindre de 40 cm de diamètre et de 30 cm de hauteur. La deuxième partie du volume est composée d'un assemblage de tubes de diamètres 0,6 cm et de hauteurs 80 cm. Dans la première partie le nombre d'ions produit à chaque désintégrations bêta (I) n'est pas limité par la géométrie du volume (pour le  $^{137}\text{Cs}$  le parcours moyen est de l'ordre de 22 cm dans l'air). Dans la seconde partie, le nombre de paires d'ions formées à chaque désintégration est réduit d'un facteur 50, ce qui permet de faire varier la concentration des ions produits par l'aérosol. Les dimensions du volume permettent également de limiter les pertes par sédimentation.

#### Mesure de la distribution de charges électriques.

Cette mesure est effectuée en utilisant un Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire d'ordre 2 (SMEC) et un Compteur de Noyaux de Condensation (CNC, TSI 3020). Le SMEC permet de classer successivement les particules monodispersées portant +1,+2,... et -1, -2 ... charges élémentaires (Mesbah, 1994). La concentration de particules sélectionnées est ensuite déterminée par le CNC. Afin d'optimiser le temps d'analyse nous avons mis au point un système d'acquisition de données permettant de compter de façon unitaire les particules sélectionnées par le SMEC et détectées par le CNC. Nous déterminons également la concentration de particules neutres et la concentration totale de l'aérosol en modifiant l'écoulement de l'air dans le SMEC.

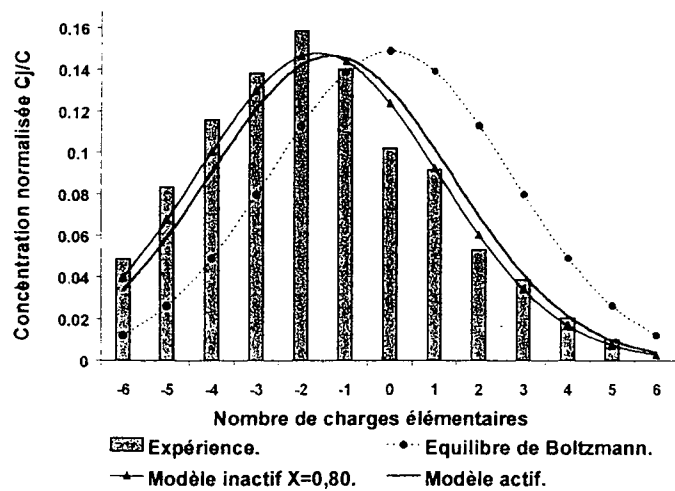
### METHODE EXPERIMENTALE

Notre démarche expérimentale comprend deux phases. Dans un premier temps nous devons valider le fonctionnement de notre dispositif expérimental en inactif. Dans un deuxième temps, nous réaliserons les expériences en actif.

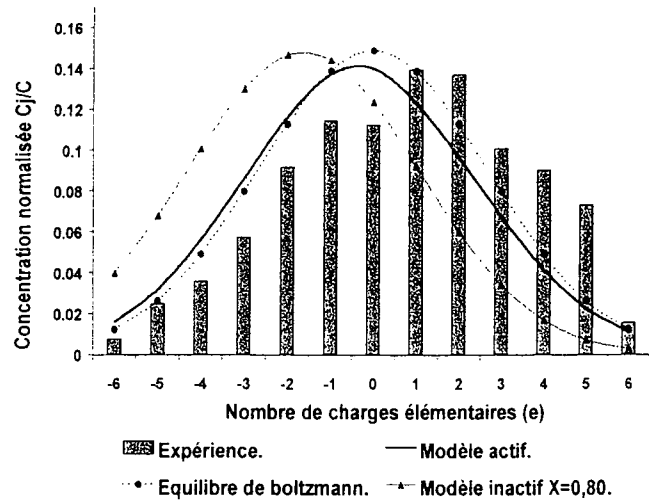
La qualification du dispositif expérimental en inactif comporte les étapes suivantes : la maîtrise du système de génération d'aérosol (stabilité, répétabilité), la maîtrise du temps d'évolution de l'aérosol dans le volume de vieillissement, et de l'effet de la sédimentation de l'aérosol pendant le prélèvement, la mise au point de la mesure de la distribution de charges électriques à faible concentration d'aérosols, la connaissance de l'état de charge électrique initial de l'aérosol. Cette dernière étape est réalisée en utilisant une source de  $^{85}\text{Kr}$  pour créer des ions bipolaires afin d'obtenir une distribution initiale de charge sur l'aérosol radioactif. Pour ce faire, nous avons étudié les caractéristiques des ions produits par la source et la distribution de charges d'un aérosol simulant à l'aide d'une méthode décrite dans une étude précédente (Gensdarmes *et al.*, 1999). A l'aide de ces résultats, nous pourrions ainsi modéliser la distribution de charges initiale de l'aérosol radioactif à partir du paramètre d'asymétrie des ions (X). Une fois que les expérimentations inactives sont achevées, le dispositif expérimental est confiné en boîte à gants afin de pouvoir manipuler le  $^{137}\text{Cs}$ .

Notre dispositif expérimental permet de faire varier les deux principaux facteurs influant sur la distribution de charges de l'aérosol radioactif. En effet, nous pouvons faire varier l'activité spécifique des particules entre deux expériences en utilisant des solutions radioactives étalons d'activités spécifiques différentes. Nous pouvons également faire varier l'intensité d'ionisation dans le milieu en réalisant des analyses, soit dans la partie supérieure du volume réservoir, soit dans la partie inférieure. Le diamètre de l'aérosol radioactif est déterminé à partir d'une mesure réalisée à l'aide du SMEC.

## RESULTATS EXPERIMENTAUX



**Figure 3 :** distribution de charges de l'aérosol dans le volume réservoir ( $d_p=0,82 \mu\text{m}$ ;  $\eta=1,28 \times 10^{-2} \text{ Bq/p.}$ ;  $C \approx 6 \text{ p/cm}^3$ ).



**Figure 4 :** distribution de charges de l'aérosol dans le volume de vieillissement ( $d_p=0,82 \mu\text{m}$ ;  $\eta=1,28 \times 10^{-2} \text{ Bq/p.}$ ;  $C \approx 15 \text{ p/cm}^3$ ).

La figure 3 représente la distribution de charges électriques d'un aérosol radioactif de  $^{137}\text{Cs}$  obtenue dans la première partie du volume réservoir (cf. Figure 2). Le diamètre des particules est égal à  $0,82 \mu\text{m}$ , leur activité spécifique est  $\eta=1,28 \times 10^{-2} \text{ Bq/particule}$ , le nombre de paires d'ions créées par désintégration est environ  $I \approx 4870$ . Nous avons également représenté sur cette figure le modèle de Clement et Harrison pour un aérosol inactif, tenant compte des propriétés des ions positifs et négatifs (Gensdarmes *et al.*, 1999) ainsi que le modèle de Clement et Harrison pour un aérosol radioactif en utilisant les équations 1 à 6. Nous remarquons que les distributions de charges théoriques de l'aérosol radioactif et de l'aérosol inactif sont très proches, les caractéristiques de l'aérosol radioactif ne permettant pas de mettre en évidence un autochargement. Nous remarquons cependant que nos résultats expérimentaux sont en bon accord avec les deux modèles. La figure 4 représente la distribution de charges d'un aérosol radioactif de  $^{137}\text{Cs}$  dans la deuxième partie du volume : le volume de vieillissement. Le diamètre de l'aérosol est toujours de  $0,82 \mu\text{m}$ , l'activité spécifique est  $\eta=1,28 \times 10^{-2} \text{ Bq/p}$  et le nombre de paires d'ions créées par désintégration est environ  $I \approx 100$ . Nous avons également représenté le modèle de Clement et Harrison pour l'aérosol inactif et le modèle pour l'aérosol actif avec une intensité d'ionisation réduite. Nous constatons ici un décalage de la distribution de charges vers des valeurs positives. Nous remarquons également que le modèle sous-estime l'état de charge de l'aérosol.

Nous représentons figure 5 les distributions de charges obtenues pour deux activités spécifiques différentes, égales respectivement à  $3,2 \times 10^{-3} \text{ Bq/p}$  et  $1,28 \times 10^{-2} \text{ Bq/p}$ . Les diamètres des particules sont respectivement  $1,04 \mu\text{m}$  et  $0,82 \mu\text{m}$ . Nous remarquons une augmentation de la charge moyenne de l'aérosol lorsque l'activité croît. En effet la charge moyenne passe de  $0,4e$  à  $0,7e$ .

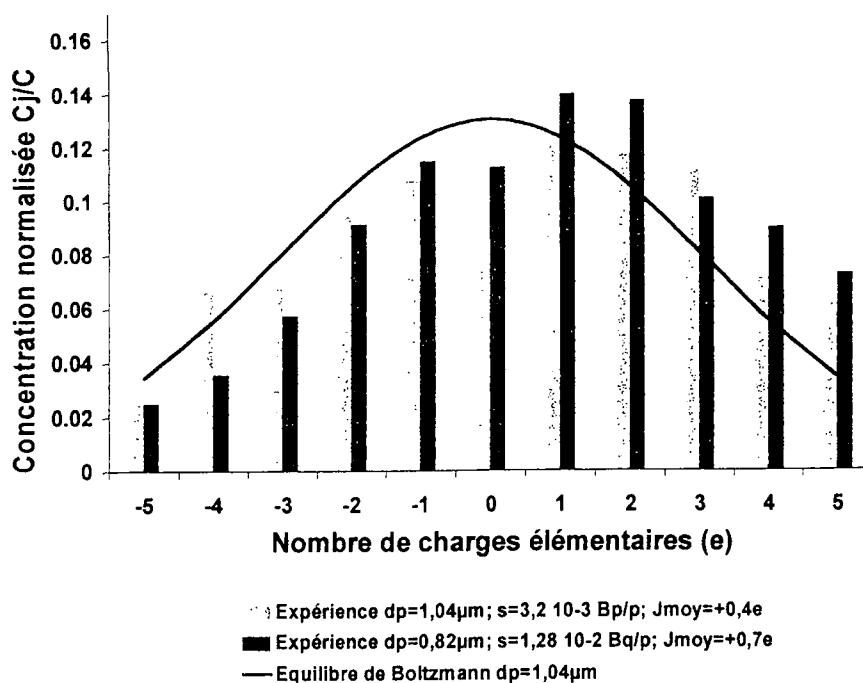


Figure 5 : évolution de la distribution de charges en fonction de l'activité spécifique.

## CONCLUSIONS

Le dispositif expérimental que nous avons conçu et réalisé permet donc d'une part, de produire un aérosol radioactif monodispersé étalon, d'autre part d'analyser sa distribution de charges électriques. Notre dispositif expérimental permet également de faire varier les paramètres influents sur la charge électrique de l'aérosol radioactif, principalement l'activité spécifique des particules et l'intensité d'ionisation. Nous avons donc étudié expérimentalement l'effet de ces paramètres pour un aérosol contenant du <sup>137</sup>Cs.

Nos résultats expérimentaux montrent un accroissement de la charge moyenne de l'aérosol lorsque son activité spécifique augmente ceci conformément à la prévision du modèle. De plus, nos résultats expérimentaux montrent une variation de la charge électrique de l'aérosol radioactif en fonction de l'intensité d'ionisation dans le milieu. En effet, la distribution de charges est négative lorsque l'intensité d'ionisation est maximum ( $I \cong 4870$  paires d'ions/désintégration), mais elle devient positive lorsque l'intensité d'ionisation est réduite ( $I \cong 100$  paires d'ions/désintégration). Nous constatons une variation conforme, qualitativement aux prévisions du modèle de Clement et Harrison. Cependant, le modèle sous-estime l'état de charge électrique de l'aérosol lorsque le milieu n'est pas considéré comme "infini". Cette différence entre nos résultats et le modèle peut s'expliquer par une mauvaise approximation de la concentration en ions à l'équilibre, lorsque la géométrie du milieu est réduite. En effet, les calculs ne prennent pas en compte l'effet de la diffusion des ions sur les parois du volume de vieillissement. Or, cet effet entraîne une diminution des concentrations en ions dans le milieu.

Finalement l'ensemble de nos résultats montre que plusieurs facteurs peuvent déterminer la distribution de charges d'un aérosol radioactif. La géométrie du milieu où évolue l'aérosol peut notamment modifier l'intensité d'ionisation et ainsi la distribution de charges de façon appréciable.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Berglund R.N., Liu B.Y.H. (1973) Generation of monodisperse aerosol standards. *Environmental Science and Technology*. 7-2, 147-153.
- Clement C.F., Harrison R.G. (1990) Electric charge effects on aerosol behaviour. Proc. Workshop on aerosol behaviour and thermal hydraulics in the containment. OECD/CSNI report n°176, 449-461.
- Clement C.F., Harrison R.G. (1992) The charging of radioactive aerosols. *J. Aerosol Science*. 23, 481-504.

- Clement C.F., Clement R.A., Harrison R.G. (1995) Charge distribution and coagulation of radioactive aerosols. *J. Aerosol Science*. **26**, 1207-1225.
- Clement C.F., Harrison R.G. (1996) The motion of radioactive aerosol in electric field. *J. Aerosol Science*. **27**, s191-s192.
- Cohen B.S. Xiong J.Q. Li W. (1996) The influence of charge on the deposition behavior of aerosol particles with emphasis on singly charged nanometer sized particles. In *Aerosol Inhalation: Recent Research Frontiers*. Edited by Marijnissen J.M.C. and Gradon L. 153-164.
- Gensdarmes F., Boulaud D., Renoux A. (1997) La charge électrique des aérosols radioactifs artificiels émetteurs alpha et bêta. Actes du Congrès Français sur les Aérosols 1997.
- Gensdarmes F., Boulaud D., Renoux A. (1999) The electric charging of aerosols in high ionized atmosphere. *J. Aerosol Science*. **30**, s559-s560.
- Ivanov V.D., Kirichenko V.N., Petryanov I.V. (1969) Charging of alpha-active aerosols by secondary electron emission. *Soviet Physics - Doklady*. **13-9**, 902-904.
- Ivanov V.D., Kirichenko V.N. (1970) Spontaneous unipolar charging of beta-active "hot" aerosol particles. *Soviet Physics Doklady* **14-9**, 859-862.
- Melandri C. Tarroni G. Prodi V. De Zaiacomo T. Formignani M. Lombardi C. (1983). Deposition of charged particles in the human airways. *J. Aerosol Science*. **14**, 657-669.
- Mesbah B. (1994) Le Spectromètre de Mobilité Electrique Circulaire. Théorie, performances et applications. Thèse de doctorat. Université Paris XII. Rapport CEA-R-5693.
- Yeh H.C., Newton G.J., Raabe O.G., Boor D.B. (1976) Self-charging of <sup>198</sup>Au labelled monodisperse gold aerosols studied with a miniature electrical spectrometer. *J. Aerosol Science*. **7**, 245-253.
- Yeh H.C., Newton C.J., Teague S.V. (1978) Charge distribution on plutonium-containing aerosols produced in mixed-oxide reactor fuel fabrication and the laboratory. *Health Physics*. **35**, 500-503.



# PEHD : DOMAINES DE STABILITE ET LOIS D'ECHELLE DU MODE CONE-JET-GLOW SELON LA TENSION, LE DEBIT ET LA CONDUCTIVITE

EHOARN P., UNGER L., BORRA J-P.

Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas, UMR 8578, CNRS

Equipe Décharges Electriques et Environnement,

Ecole Supérieure d'Electricité, Plateau de Moulon, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

## I. Introduction

Le but de cette étude est de caractériser un procédé de production de gouttes d'eau chargées produites par Pulvérisation Electro-HydroDynamique (PEHD), dans l'air à pression atmosphérique, pour l'application au lavage électrique. Le principe repose sur la coagulation électrique de polluants, chargés négativement, avec des gouttes d'eau de polarité opposée. Afin d'obtenir les conditions optimales de coagulation électrique, il est nécessaire de pouvoir contrôler la stabilité temporelle du procédé et donc de pouvoir contrôler et faire varier les propriétés des particules (diamètre, charge massique, courant) selon les paramètres de régulation (tension, conductivité et débit de liquide, géométrie des électrodes).

Concernant les particules polluantes, un système de production de particules sub-microniques chargés négativement par décharge électrique est étudié afin de disposer d'une source de polluants dont les propriétés sont définies et calibrées dans le temps [1].

Concernant les gouttes de liquide, la méthode de production par PEHD a été choisie. Les propriétés de ces gouttes dépendent des modes de pulvérisation (i.e. de la stabilité temporelle du procédé) et varient selon les paramètres expérimentaux (tension, débit de liquide, géométrie de la buse) et selon les paramètres intrinsèques du liquide (conductivité, tension de surface, viscosité, masse volumique et permittivité relative). Pour des liquides à faible tension de surface ( $\gamma \leq 0.055$  N/m), le champ électrique à la surface du liquide nécessaire à la stabilité du procédé de PEHD est inférieur au champ d'ionisation du gaz. La PEHD est déjà connue (mode (multi-)cône-jet) et différents modèles permettent de déterminer les propriétés des gouttes en fonction des paramètres expérimentaux [2, 3, 4]. Pour des liquides à forte tension de surface, tels que l'eau ( $\gamma > 0.055$  N/m), pour lesquels le champ électrique est supérieur au champ d'ionisation, aucune loi d'échelle n'a été établie jusqu'à présent permettant de définir les propriétés des gouttes, dans l'air, à pression atmosphérique. Différentes études ont été effectuées et les phénomènes d'ionisation impulsions empêchent la stabilisation du procédé [5].

L'objectif de cette étude a donc été d'étudier l'influence des décharges électriques sur la stabilité temporelle du procédé, i.e. sur les modes de PEHD. Dans l'article précédent [Asfera 98 : 6], nous avons démontré qu'une décharge glow permettait de stabiliser le procédé de PEHD. En effet, le régime de décharges électriques (glow continu / dard impulsif) induit des variations temporelle et spatiale de densité de charge dans l'espace inter-électrodes (constante / transitoire) et ainsi du champ électrique à la surface du liquide (nulle / variable). Ces variations contrôlent la stabilité du procédé, i.e. les modes de PEHD (mode stable cône-jet-glow / mode instable goutte-à-goutte-électrique), et donc les propriétés des gouttes (distribution granulométrique en taille bi-modale / poly-modale).

Dans un premier temps, le but de cet article est de déterminer les domaines d'existence de ces modes, selon la tension, la conductivité, et le débit de liquide. Dans un deuxième temps, les propriétés des gouttes sont définies, en mode cône-jet-glow, afin d'établir les lois d'échelle (courant, diamètre et charge massique) selon les paramètres de régulation.

## II. Dispositif expérimental & Traitement des données

Le dispositif expérimental est placé dans l'air, à pression atmosphérique.

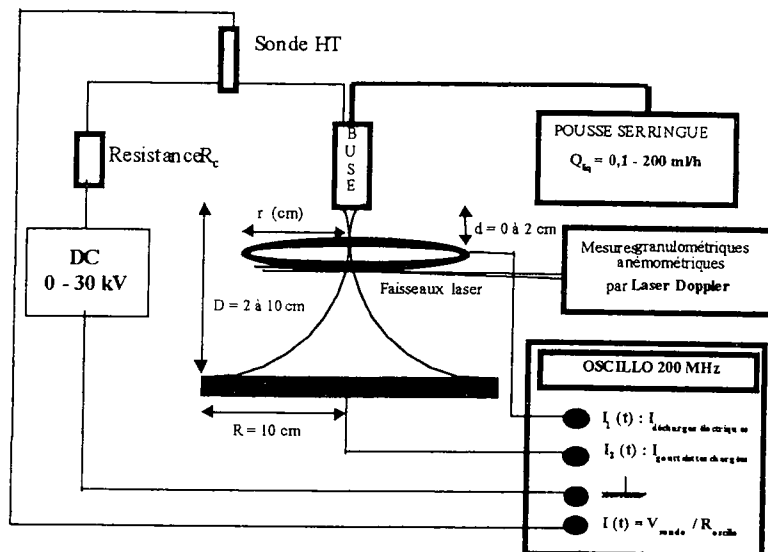


Figure 1 : Dispositif expérimental

Une buse alimentée en liquide ( $Q_{liq}=0.1$  à  $200$  ml/h) est polarisée par une alimentation haute tension positive et continue ( $V=0$  à  $30$  kV). Une plaque et un anneau métallique reliés à la masse sont placés perpendiculairement à la buse, à quelques centimètres de celle-ci. L'étude est effectuée avec un liquide à forte tension de surface, l'eau ( $\gamma = 0,072$  N/m), pour lequel la PEHD coexiste toujours avec des décharges électriques.

Deux techniques de mesures sont utilisées :

Mesures électriques de courant instantané (oscilloscope de  $200$  MHz)

Mesures granulométriques et anémométriques (Laser Doppler : DANTEC).

## III. Résultats expérimentaux

### III.1. Contraintes physiques de la PEHD en mode cône-jet-glow

Deux contraintes physiques permettent de stabiliser la PEHD en mode cône-jet-glow :

Tout d'abord, une première contrainte est liée à l'équilibre électro-hydrodynamique du liquide : en effet, le transport de charge par conduction doit prédominer par rapport au transport de charge par convection, afin de permettre la formation du cône de liquide et la stabilisation du procédé. En termes de temps de relaxation du liquide, il est nécessaire que le temps de relaxation électrique du liquide soit inférieur au temps de relaxation hydrodynamique du liquide [3] :

$$\tau_{\text{électrique}} = \epsilon_0 \epsilon_r / \lambda \ll \tau_{\text{hydrodynamique}} = L_{\text{jet}} R_{\text{jet}}^2 / Q_{\text{liq}}$$

(avec  $L_{\text{jet}}$  et  $R_{\text{jet}}$  les longueurs caractéristiques axiale et radiale du jet de liquide, avec  $R_{\text{jet}} \sim D_p / 1.8$ )

Cette contrainte doit être respectée afin de créer un champ électrique à la surface du liquide qui permet de stabiliser le procédé. Expérimentalement, ce champ varie avec la tension ou la conductivité, pour un liquide donné.

Or, pour des liquides à forte tension de surface, le champ électrique à la surface du liquide nécessaire à la stabilisation de la PEHD est supérieur au champ critique d'ionisation du gaz. La PEHD coexiste toujours avec des décharges électriques. Une contrainte supplémentaire est donc liée au régime de décharges électriques, i.e. au régime de décharge continue qui permet de stabiliser le procédé. Le régime de décharge électrique est caractérisé selon l'intensité du champ électrique à la surface du liquide et selon la longueur d'ionisation du gaz. Celle-ci est définie comme étant la longueur sur laquelle le champ dans le gaz est supérieur au champ critique d'ionisation du gaz, et dépend donc du divergent du champ dans l'espace inter-électrodes, pour un champ à la surface donné. Elle varie selon la forme du cône du liquide (i.e. tension, débit de liquide, géométrie de la buse, ...).

La Figure 2 représente des exemples de profil spatial de champ électrique en fonction de la normale à la surface du liquide.

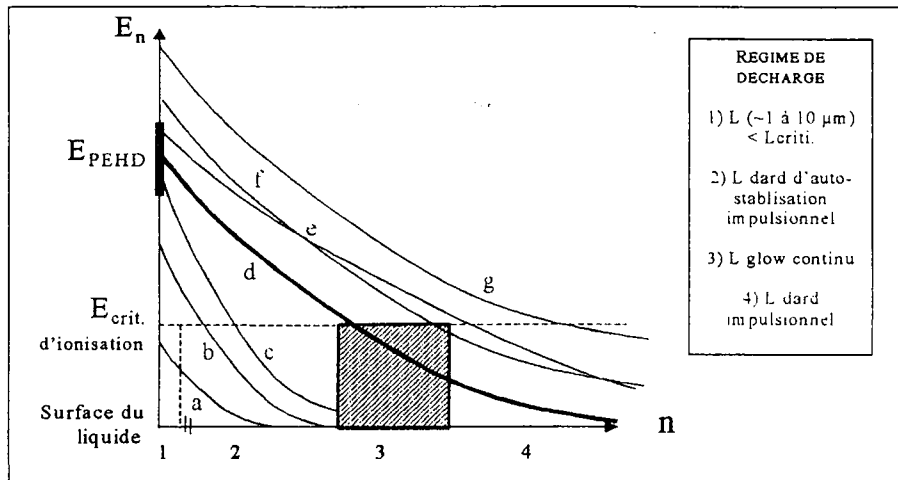


Figure 2 : Profil spatial du champ électrique selon le régime de décharges électriques, i.e. selon les modes de PEHD

D'après la Figure 2, nous observons différents modes de PEHD :

- Le champ électrique à la surface du liquide est inférieur au champ critique d'ionisation du gaz :

(a) Le champ électrique à la surface du liquide est inférieur au champ électrique de PEHD: des gouttes millimétriques sont produites à fréquence constante, qui dépend de la tension appliquée. Ce mode stable de production, sans décharge, est appelé **le mode goutte-à-goutte**.

- Le champ électrique à la surface du liquide est supérieur au champ critique d'ionisation du gaz :

(b et c) Le champ électrique à la surface du liquide est inférieur au champ de PEHD et/ou le divergent du champ est trop fort pour induire une décharge glow. La longueur d'ionisation est caractéristique d'un régime impulsional de décharge électrique (d'auto-stabilisation) qui induit un mode instable appelé **le mode goutte-à-goutte-électrique-I**.

(d) Le champ électrique à la surface du liquide permet de stabiliser le procédé de PEHD et la longueur d'ionisation est caractéristique d'un régime continu de décharge couronne (glow). Le mode de PEHD est stable et appelé **le mode cône-jet-glow**.

(e, f et g) Le champ électrique à la surface du liquide est supérieur au champ de PEHD et/ou le divergent du champ est trop faible pour induire une décharge glow. La longueur d'ionisation est caractéristique d'un régime impulsional de décharge électrique (dard filamentaire) qui induit un mode instable appelé **le mode goutte-à-goutte-électrique-II**.

Afin de stabiliser le procédé de PEHD en mode cône-jet-glow, il est donc nécessaire de satisfaire aux 2 contraintes physiques (la première liée à l'équilibre électro-hydrodynamique et la seconde liée au régime de décharge glow). Ces contraintes vont permettre d'expliquer les variations des pentes qui délimitent les domaines du mode stable selon les paramètres de régulation.

### III.2. Domaines d'existence du mode cône-jet-glow selon ( $\lambda$ , $Q_{liq}$ , $V$ )

Dans cette première partie, le but est de déterminer expérimentalement les domaines d'existence du mode cône-jet-glow selon les paramètres de régulation (tension, conductivité et débit de liquide). La Figure 3 représente un exemple de domaines de stabilité du mode cône-jet-glow dans l'espace ( $\lambda$ ,  $Q_{liq}$ ,  $V$ ).

1) Tout d'abord, pour une conductivité et un débit de liquide constants, nous retrouvons à tension croissante, la succession des modes de PEHD (goutte-à-goutte, goutte-à-goutte-électrique-I, cône-jet-glow, goutte-à-goutte-électrique-II) induit par le régime de décharges électriques (sans décharge, dard d'auto-stabilisation, glow, dard) [6].

A titre d'exemples, différentes variations expérimentales (a à d) sont représentées sur la Figure 3, afin d'expliquer les variations des pentes qui définissent les limites du domaine du mode stable :

2) Pour une conductivité fixe, lorsque le débit de liquide augmente, la force de tension de surface diminue (le volume du cône augmente). Dans le but de stabiliser le procédé de PEHD, les contraintes physiques imposent une variation des paramètres de régulation :

- contrainte liée à l'électro-hydrodynamique du liquide : les forces électriques (i.e. la tension) doivent être diminuées afin de diminuer le champ électrique à la surface du liquide nécessaire à la stabilité du procédé (a).

- la contrainte liée au régime continue de décharge électrique : l'augmentation du débit de liquide, induit une augmentation du rayon de courbure du liquide et donc une diminution de l'intensité du champ électrique à la surface du liquide, modifiant le régime de décharge électrique (glow  $\rightarrow$  dard). Il est donc nécessaire

d'augmenter la tension afin d'augmenter le champ électrique à la surface du liquide, et d'induire une décharge glow (b).

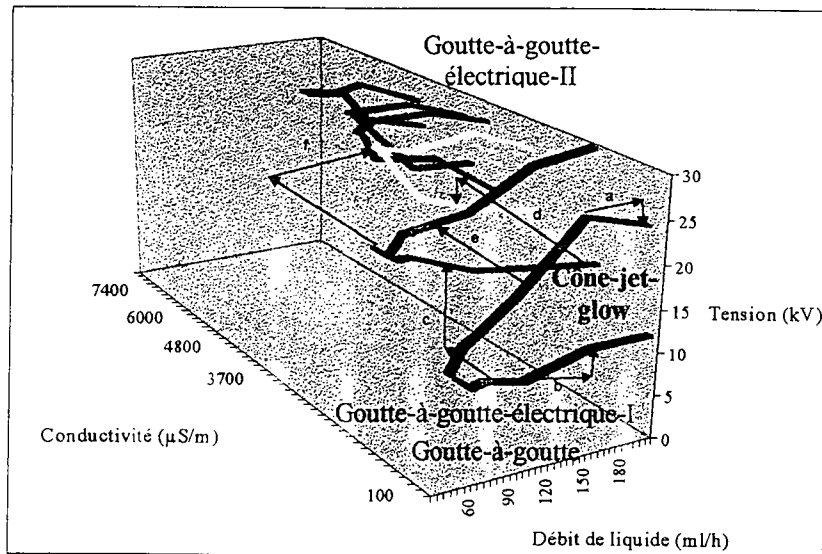


Figure 3 : Domaines de stabilité de PEHD dans l'espace  $(\lambda, Q_{liq}, V)$  pour de l'eau (Configuration buse-plan ;  $D_{i-e}=4\text{ cm}$  ; Buse :  $D_{ext}=0.5\text{ mm}$ ,  $D_{int}=0.25\text{ mm}$ )

3) L'augmentation de la conductivité induit une augmentation des forces électriques et de la force de tension de surface. Dans le but de stabiliser le procédé de PEHD, il est nécessaire de respecter les contraintes physiques :

- contrainte liée à l'électro-hydrodynamique du liquide : la variation selon la force de tension de surface ( $1/R$ ) l'emporte sur la variation des forces électriques (en  $1/R^2$ ). Il est donc nécessaire d'augmenter les forces électriques, i.e. d'augmenter la tension (c).
- contrainte liée au régime continue de décharge électrique : le volume du cône de liquide diminue, et induit une augmentation du champ électrique à la surface du liquide qui augmente la longueur d'ionisation et modifie ainsi le régime de décharge électrique (glow  $\rightarrow$  dard). Il est donc nécessaire de diminuer les forces électriques, i.e. la tension (d).

4) De plus, pour de faible conductivité ( $\lambda \leq 1000\ \mu\text{S/m}$ ), la Figure 3 indique que lorsque la conductivité augmente, le débit de liquide nécessaire à l'établissement du mode cône-jet-glow diminue. En effet, lorsque la conductivité et la tension augmentent, l'intensité du champ électrique à la surface du liquide augmente ; la tension de surface doit donc augmenter afin de contrebalancer l'augmentation des forces électriques. Pour cela, la pression hydrostatique dans le liquide (i.e. le débit de liquide) est diminuée afin de créer un cône et un jet plus petit. D'autres études ont déjà montré que le diamètre du jet diminuent avec l'augmentation de la conductivité et la réduction du débit en mode cône-jet sans décharge [4]. Du point de vue des décharges électriques, la réduction du volume du cône et du diamètre du jet induit une augmentation du divergent du champ électrique favorable à l'établissement d'un glow [7], augmentant ainsi la gamme de tension du mode cône-jet-glow à conductivité croissante (e).

Toutefois, pour de fortes conductivités ( $\lambda > 1000\ \mu\text{S/m}$ ) et de fortes tensions, le débit de liquide nécessaire à l'établissement du mode cône-jet-glow augmente. En effet, les forces électriques deviennent supérieures aux forces hydrostatiques, malgré l'augmentation de la tension de surface, induisant une déstabilisation du procédé (éjection du liquide de la buse avant la formation du cône). Il est donc nécessaire d'augmenter les forces hydrostatiques (i.e. le débit de liquide) afin d'augmenter le volume du cône (f).

Les domaines de fonctionnement du mode cône-jet-glow sont donc définis selon les différents paramètres de régulation (tension, débit de liquide, et conductivité), qui vont permettre de contrôler et de faire varier les propriétés des gouttes.

### III.2. Propriétés des gouttes en mode cône-jet-glow

L'objectif de cette seconde partie est de déterminer les propriétés des gouttes et donc les lois d'échelle empiriques (courant du nébulisât, diamètre, charge massique) dans le domaine d'existence du mode cône-jet-glow défini précédemment. L'influence du débit de liquide et du courant de décharge glow est présentée sur les propriétés des gouttes. Un anneau à la masse, positionné à quelques millimètres de la buse, permet d'une part d'induire le champ électrique à la surface du liquide nécessaire à l'équilibre de PEHD (contrainte n°1) ; d'autre part de différencier la composante de courant d'ions gazeux produits par décharge glow en périphérie du cône, et la composante de courant de gouttes chargées, sans perturber la fragmentation du jet (exclusivement hydrodynamique).

### III.2.1. Courant du nébulisât

La Figure 4 montre l'influence du débit de liquide (a) et du courant de décharge glow (b) sur le courant du nébulisât en mode cône-jet-glow, en configuration buse-anneau-plaque.

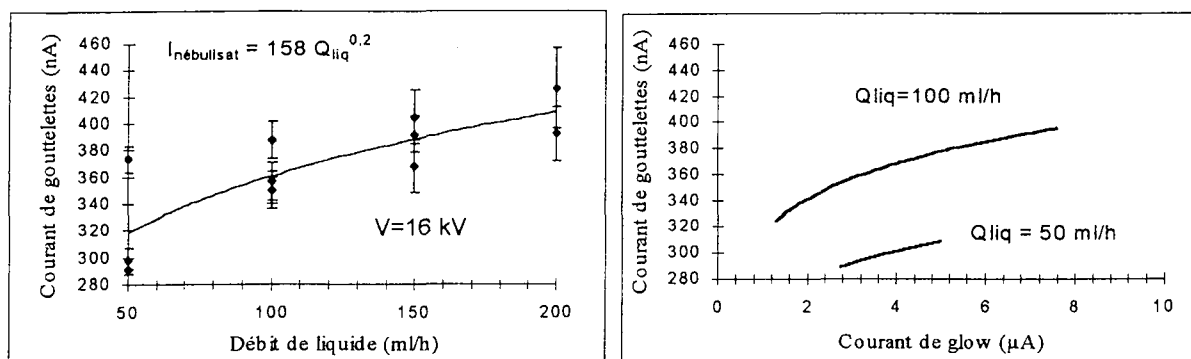


Figure 4 : Influence du débit de liquide (a), et du courant de glow (b) sur le courant du nébulisât (Configuration buse-anneau-plaque ;  $\lambda_{eau} = 100 \mu S/m$  ;  $D_{i-e} \sim 4 \text{ cm}$ )

Nous observons que le courant de gouttes est proportionnel au débit de liquide similairement au mode cône-jet sans décharge électrique : lorsque le débit de liquide augmente, la densité de charge par goutte augmente, induisant une augmentation du courant de gouttes ( $I \sim Q_{goutte} * v_{goutte}$  ; avec  $Q_{goutte}$  la charge par goutte et  $v_{goutte}$  la fréquence de production des gouttes).

De plus, pour un débit de liquide fixe, l'augmentation du courant de glow (i.e. l'augmentation de la tension), augmente le champ électrique à la surface du liquide, et induit une augmentation du courant du nébulisât.

Nous obtenons :  $I_{nébulisât} \sim Q_{liq}^a + A * I_{glow}^{0.1}$  (avec  $0,2 < a < 0,3$  et  $A = f(Q_{liq}) > 0$ )

### III.2.2. Diamètre

La Figure 5 représente l'évolution du diamètre des particules en fonction du débit de liquide (a), et en fonction du courant de décharge glow (b).

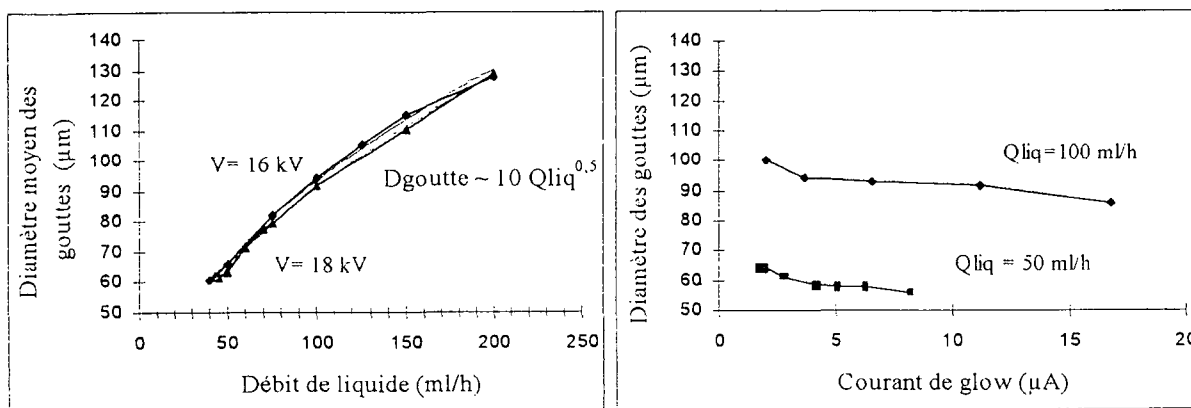


Figure 5 : Influence du débit de liquide (a) et du courant de glow (b) sur le diamètre des gouttes (Configuration buse-anneau-plaque ;  $\lambda_{eau} = 100 \mu S/m$  ;  $D_{i-e} \sim 4 \text{ cm}$ )

Le diamètre des gouttes augmente selon le débit de liquide comme en mode cône-jet, sans décharge : à débit de liquide croissant, le volume du cône et du jet augmente induisant une fragmentation du jet en gouttes plus grandes. De plus, l'augmentation du courant de glow, i.e. l'augmentation du champ électrique à la surface du liquide, induit une diminution du volume du cône et du jet, et donc du diamètre des gouttes.

Le diamètre des gouttes varie :  $d_{goutte} \sim Q_{liq}^b - B * I_{glow}$  (avec  $0,4 < b < 0,5$  et  $B = f(Q_{liq}) > 0$ )

### III.2.3. Charge massique

La charge électrique par goutte est calculée comme étant le courant du nébulisât divisé par la fréquence de production des gouttes (fréquence =  $Q_{liq} / \text{volume d'une goutte}$ ). Nous obtenons une charge massique qui varie en fonction du débit de liquide et du courant de glow selon :

$$q/m \sim Q_{liq}^{-c} + C * I_{glow}^{0.1} \quad (\text{avec } 0,8 < c < 0,9 \text{ et } C = f(Q_{liq}) > 0)$$

La Figure 6 représente la charge massique en fonction du débit de liquide. L'influence du courant de décharge glow est considérée comme négligeable par rapport à l'influence du débit de liquide.

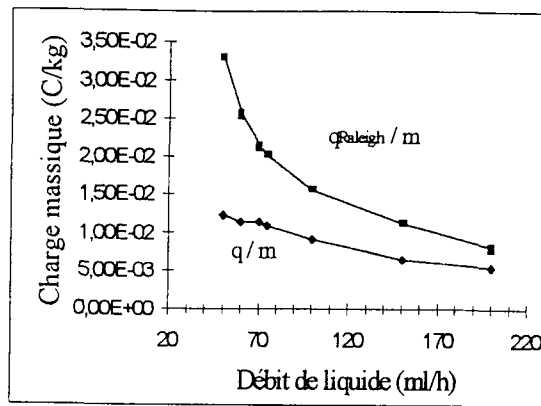


Figure 6 : Charge massique en fonction du débit de liquide  
(Configuration buse-anneau-plaque ;  $\lambda_{eau} = 100 \mu S/m$  ;  $D_{i-e} \sim 4 \text{ cm}$ )

Nous observons que la charge massique tend vers la charge massique maximale, définie comme la charge limite d'une goutte avant son explosion par répulsions électrostatiques divisée par sa masse :

$$(q_{\text{Rayleigh}} / m) = (8\pi / m) * (\epsilon_0 \gamma r^3)^{1/2}.$$

Le procédé de PEHD permet donc de produire des gouttes microniques fortement chargées, de propriétés variables selon les paramètres de régulation.

#### IV. Conclusions et perspectives

Cette étude a permis de définir les domaines du mode cône-jet-glow selon les paramètres de régulation : tension, débit de liquide, et conductivité. Nous avons constaté que les limites de ces domaines dépendent d'une part de phénomènes physiques liés à l'électro-hydrodynamique du liquide (similairement à la PEHD de liquide sans décharge électrique) et d'autre part, de phénomènes physiques liés au régime de décharge électrique.

Pour la première fois, des lois d'échelle empiriques ont été définies en mode stable cône-jet-glow, dans l'air, à pression atmosphérique, d'une part selon le débit de liquide (similairement au mode cône-jet sans décharge électrique), et d'autre part selon l'intensité du courant de décharge glow :

$$\begin{aligned} I_{\text{nébulisat}} &\sim Q_{\text{liq}}^{0.2} + A * I_{\text{glow}}^{0.1} \\ d_{\text{goutte}} &\sim Q_{\text{liq}}^{0.5} - B * I_{\text{glow}}^{0.1} \\ q/m &\sim Q_{\text{liq}}^{-0.8} + C * I_{\text{glow}}^{0.1} \end{aligned}$$

avec  $A, B, C = f(Q_{\text{liq}}) > 0$

Après avoir caractérisé les propriétés des gouttes collectrices, il est maintenant envisageable de tester l'efficacité de coagulation électrique des polluants particulaires avec les gouttes collectrices, selon les différents paramètres de régulation.

#### Références :

- [1] Unger L., Ehouarn P. et Borra J-P., (1999) « Influence d'un aérosol submicronique sur le fonctionnement d'une décharge fil-cylindre », 15<sup>ème</sup> Congrès Français sur les Aérosols, 8-9 décembre 1999, France, à paraître.
- [2] Cloupeau M. and Prunet-Foch, (1989) « Electrostatic spraying of liquids in cone-jet mode » *Journal of Electrostatics*, Vol. 22, pp.135-159.
- [3] Ganan-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.
- [4] Hartman R.P.A. (1998) « Electrohydrodynamic atomization in the cone-jet mode » Netherlands, 3 November, Delft university.
- [5] 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.
- [6] Ehouarn P. et Borra J-P., (1998) « Caractérisation des modes de Pulvérisation Electro-HydroDynamique et propriétés des gouttes d'eau en mode cône-jet-glow », 14<sup>ème</sup> Congrès Français sur les Aérosols, Paris, France, pp. 235-240.
- [7] 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.

The Aerosol Society will host the European Aerosol Conference from 3rd to 8th September 2000 in Dublin, the capital of the Republic of Ireland. The Aerosol Society is the association for the promotion of aerosol science in the United Kingdom and the Republic of Ireland. The Conference will be held under the auspices of the European Aerosol Assembly, which was established to promote co-operation between aerosol research associations based in European countries. The EAA currently has member organisations from Hungary, France, Israel, Finland, the Netherlands and Belgium, Germany, the Nordic countries, and the United Kingdom and Ireland. Its role is to provide a European forum for aerosol science, and the specialist working groups of the EAA assist the national organisation hosting the European Aerosol Conference.

## Aims and Scope of the Conference

The annual European Aerosol Conference provides opportunities for aerosol scientists to present their work to the wider community, to discuss the latest developments in the field, and to take home new ideas to influence their own research programme. It is the aim of the organisers that the Conference should provide participants with a stimulating and fruitful experience. The scientific scope of the conference covers all aspects of aerosol science, including the following:

- *Aerosol Chemistry*
- *Aerosol Generation*
- *Aerosol Physics*
- *Aerosol Sampling*
- *Aerosol Standards*
- *Atmospheric Aerosols*
- *Bioaerosols*
- *Coarse Dusts*
- *Combustion Aerosols*
- *Environmental Effects*
- *Gas Cleaning and Separation*
- *Health effects*
- *Indoor Aerosols*
- *Instrumentation*
- *Nanomaterials*
- *Nuclear Aerosols*
- *Pharmaceutical aerosols*
- *Ultrafine Aerosols*

## Organisers

### Organising Committee

Dr Miriam Byrne (chair)  
 Mrs Ethne Hawkins (administrator)  
 Prof. Don Clark  
 Mr Alan Cussens  
 Prof. Paul Kaye  
 Mr David Mark

### Programme Committee

Dr Ian Ford (chair)  
 Dr Charles Clement  
 Dr Ian Colbeck  
 Prof. Mike Smith

### International Advisory Committee

Dr Harry ten Brink  
 Prof. Joachim Heytler  
 Dr Jorma Jokiniemi  
 Dr Einar Kruijs  
 Dr Jan Marijnissen  
 Dr Margit Schwikowski  
 Dr Frank Stratmann  
 Prof. Władysław Szymanski  
 Dr Alfred Wiedensohler

### Conference Website

*Information about the city of Dublin, the Conference, and templates for the submission of abstracts, are to be found at:*

<http://www.aerosol-soc.org.uk/2000.htm>.

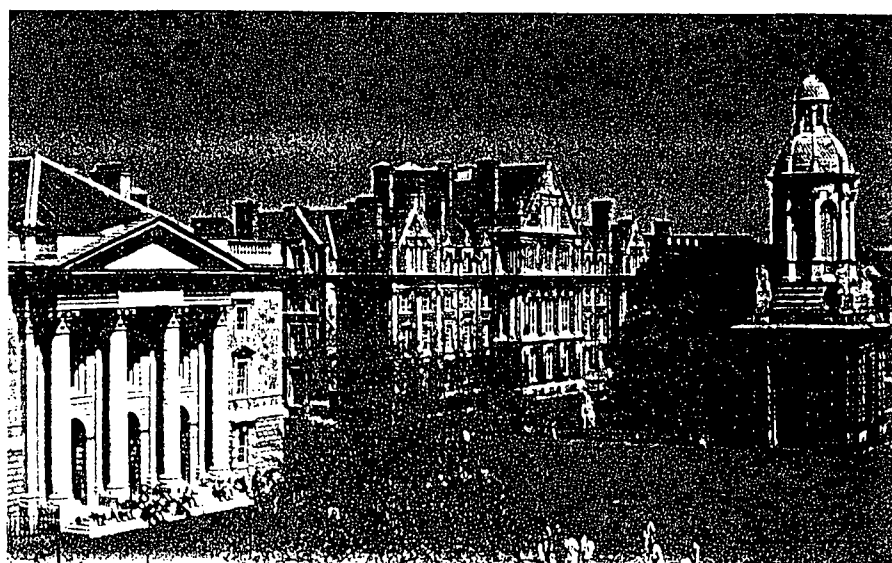
*The conference programme will be posted on this site prior to the Conference itself. Queries may be emailed to:*

[admin@aerosol-soc.org.uk](mailto:admin@aerosol-soc.org.uk).

*Further information about the EAA can be obtained from:*

[denis.boulaud@ipsn.erf](mailto:denis.boulaud@ipsn.erf).

*Front Square, Trinity College*





# THE CONFERENCE VENUE

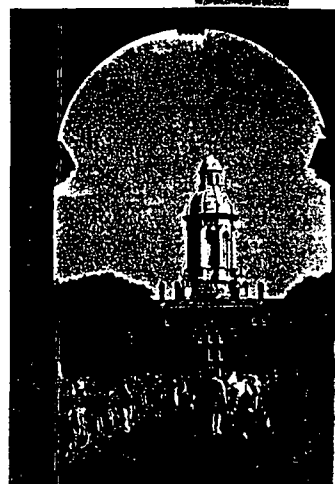


## Trinity College

The campus of Trinity College Dublin lies in the centre of Ireland's capital city. Trinity is one of the oldest universities in the British Isles, founded in 1592 by Queen Elizabeth I. Graduates of Trinity include writer Samuel Beckett and mathematician Rowan Hamilton. More recently, Mary Robinson, past President of Ireland, and United Nations Commissioner for Human Rights, attended Trinity.

The College is in an enviable position in the very heart of Dublin, within walking distance of major cultural attractions, sporting and entertainment venues. Trinity itself is the guardian of some of Ireland's greatest historical treasures; the most celebrated of which is the book of Kells, a 9th century illuminated manuscript. Although surrounded by Dublin's bustling streets, Trinity's cobbled squares and colourful gardens retain the peaceful seclusion of former times. In recent years, Trinity has undertaken an extensive building programme and now its modern facilities and location make it an ideal centre for self-contained conferences.

The technical sessions of the conference programme will take place in the Trinity College Conference Centre, a centrally located modern building containing spacious tiered lecture theatres equipped with the latest audio-visual technology, ample exhibition space, and numerous small meeting rooms. Poster presentations will be displayed in the magnificent surroundings of Trinity College's 18th century Examination Hall.



## Conference Catering

Breakfast for residential delegates will be available in a newly built restaurant in the centre of the campus. Lunch can be included in the registration package for both residential and non-residential delegates, and this will be taken in the centrally-located formal Dining Hall. As Trinity College is in close proximity to an extensive range of restaurants, to suit all tastes and budgets, it should be noted that evening dining facilities will not be made available on-campus for delegates. However, on Tuesday September 5th an Irish Night will take place at Trinity, with traditional Irish dinner menu and musical accompaniment. On Thursday September 7th, the Conference Banquet will take place in the sumptuous surroundings of the Royal Hospital Kilmainham, home of the Irish Museum of Modern Art. As both of these events are likely to be popular, delegates and their partners who wish to attend are strongly advised to register on the booking form, as numbers will be limited.

## Dublin

Situated on the east coast of Ireland overlooking the Irish Sea, Dublin, which celebrated its millennium in 1988, serves as the country's political, economic, social and cultural nerve-centre. Dublin's origins are rich in Viking history and archaeology and the city's oldest building dates from 1038. Architecture of later eras is also strongly featured: Dublin, untouched by 20th century World Wars, contains a wealth of unspoilt Georgian architecture which is unmatched anywhere else in the British Isles.

Although steeped in history, Dublin enjoys all the amenities of a modern city, with excellent shopping facilities, restaurants and nightlife. Trinity College is situated at the centre of Dublin's fashionable shopping district and is only a short walk from high-quality craft shops where Irish textiles, crystal and pottery can be purchased. Synonymous with Dublin's social life is Guinness, the world-famous creamy stout, and this can be enjoyed at any of the city's 500 pubs.

Dublin has a maritime climate, and although visitors should be prepared for rain at any time, mild weather is often experienced until the end of September. Outdoor pursuits in Dublin should include the exploration of the spectacular coastline of Dublin Bay. Most popular sporting interests are catered for in Dublin, with golf enthusiasts being particularly well served.

Overall, Dublin is a centre of infinite interest and activity, with something to delight every visitor.



## Travelling to Dublin

Dublin International Airport is 10 km north of Dublin City Centre, and Trinity College. The airport has direct international flights from more than twenty major European and American cities including Amsterdam, Boston, New York, Paris, Frankfurt, Rome, Chicago and Stockholm. In addition, there are frequent flights to Dublin from London and many regional UK airports, thus allowing convenient connections to the widest possible range of international flights. The flying time from London to Dublin is approximately one hour. Passengers arriving at the airport can reach Dublin City Centre by taxi or public bus.

There are two ferry ports serving Dublin, and these are 4 km and 12 km from the city centre, respectively. Frequent catamaran (journey time 99 minutes) and ferry (journey time 3 hours) services operate between Dublin and the west coast of the UK. In addition, there are overnight ferry crossings from Le Havre and Cherbourg to Rosslare, a port 120 km south of Dublin.

The official website of the Irish Tourist Board provides specific travel information for a range of European and international departure points. The website can be found at

<http://www.ireland.travel.ie/home/>

*Limited car-parking facilities may be available at Trinity College; further information will be available closer to the conference date.*





## LISTE ALPHABETIQUE DES AUTEURS

ALLAIN N.  
ALLIANIC A.  
ALLOUL L.  
ANTOINE H.  
ARMAND P.  
ARMAND X.  
ATTOUI M.

BEMER D.  
BILDGEN P.  
BORRA J.P.  
BOULAUD D.  
BRUN P.

CALE S.  
CALOZ F.  
CANDAU Y.  
COLLIN F.  
CONTAL P.  
COTTE H.

DEL FABBRO L.  
DERANGERE D.  
DESPIAU S.  
DONATI J.  
DUFOUR A.L..

EHOUARN P.

FABRIES J.F.  
FAUVEL S.  
FEUILLEBOIS F.  
FISSAN H.

GALLOO J.C.  
GAUCHET N.  
GENSDARMES F.  
CLADTKE D.  
GILG J.P.  
GIRAZOLE T.  
GOUESBET G.

GÖRNER P.  
GREHAN G.  
GUILLERMO R.

HERLIN-BOIME  
HERVY F.  
HUET C.

IONESCU H.

JOHN A.C.

KUHLBUSCH T.A.J.

LABORDE J.C.  
LE BIHAN O.  
LE CALVE O.  
LECLERC D.  
LE DUR D.

MASSOUH L.

MATHE F.  
MAYNE M.  
MEUNIER-GUTTIN-CLUZEL S.  
MICHIELSEN N.  
MONNATTE J.

REBOURS A.  
REN K.F.  
RENOUX A.  
RESCH F.  
ROBACHE A.  
ROBINE E.  
ROBINE D.  
ROGER F.  
ROSSI M.

SPURNY K.

THOMAS D.  
TYMEN G.

UNGER L.

VENDEL J.

WALTER C.  
WROBEL R.  
WITSCHGER O.

## LISTE DES PARTICIPANTS

ALLOUL L.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
tél : 01 69 08 60 00

AMMERICH M.  
CEA  
CE Saclay Bât. 395  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
tél : 01 69 08 93 89  
fax : 01 69 08 57 53

ANTOINE H.  
CSTB B.P. 02  
84 rue Jean Jaurès  
77421 Marne la Vallée cedex 02  
tél. 01 64 68 82 66  
fax. 01 64 68 84 73

ARMAND P.  
DAM/DIF/DASE/SRCE B.P. 12  
91680 Bruyères le Châtel  
tél. 01 69 26 45 36  
fax. 01 69 26 70 65

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

BABU S.  
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

BEGUIN L.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
tél : 01 45 17 13 60  
fax : 01 45 17 13 61

BEMER D.  
INRS B.P. 27  
Av. de Bourgogne  
54501 VANDOEUVRE  
tél : 03 83 50 20 00

BERTIN P.  
I. C. S. I. T. S.  
91 rue du Gal de Gaulle  
27109 LE VAUDREUIL  
tél : 02 32 09 36 26  
fax : 02 32 09 36 28

BETIS F.  
CILAS  
8 ave Buffon  
45063 ORLEANS  
tél. 02 38 64 59 01  
fax. 02 38 64 59 07

BOISSIER M.  
CSTB B.P. 02  
84 rue Jean Jaurès  
77421 Marne la Vallée cedex 02  
tél. 01 64 68 82 66  
fax. 01 64 68 84 73

BORRA J.P.  
LPGP URA 073  
Ecole Sup. D'Electricité  
Plateau du Moulon  
91191 Gif sur Yvette  
tél. 01 69 85 17 76  
fax. 01 69 41 03 34

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

CALLE S.  
LSGC/CNRS  
1 rue Grandville B.P. 541  
54001 NANCY Cedex  
tél.: 03 83 17 51 97  
fax : 03 83 32 29 75

CAZIN S.  
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

CETIER Ph.  
CEA/IPSN/DPEA/SERAC  
CE Saclay  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
tél : 01 69 08 60 00

CHAMBRE C.  
ECOMESURE B.P. 13  
3 rue du Grand Cèdre  
91640 JANVRY  
tél : 01 64 90 55 55  
Fax : 01 64 90 55 66

COLLIN F.  
DCMR  
91128 PALAISEAU cedex  
tél. 01 69 33 33 99  
fax. 01 69 33 30 41

COUTY B.  
RATP/SEC/D2E/EQA  
13 rue J. Vallès  
75011 PARIS  
tél : 01 48 04 18 55

CREPAT G.  
ISBE/IUT DIJON  
Rue des Ducs de Bourgogne  
21110 ROUVRES EN PLAINE  
tél. 03 80 39 88 27  
fax. 03 80 39 77 83

DANCER P.  
ROWENTA B.P. 1162  
27950 St. Marcel  
tél.  
fax.

DE BUSTOS K.  
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

DEL FABBRO L.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
tél : 01 69 08 60 00

DELPONT B.  
ECOMESURE  
3 rue du Grand Cèdre  
91640 JANVRY  
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/ISITV B.P. 56  
Ave G. Pompidou  
83162 La valette du Var  
tél. 04 94 14 23 63  
fax. 04 94 14 25 72

DHUGUES C.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
tél : 01 45 17 13 60  
fax : 01 45 17 13 61

DONATI  
Laboratoire Central de  
la Préfecture de Police  
39 bis rue de Dantzig  
75015 PARIS  
tél : 01 55 76 20 00

EHOUARN P.  
LPGP URA 073  
Ecole Sup. D'Electricité  
Plateau du Moulon  
91191 Gif sur Yvette  
tél.01 69 85 17 76  
fax. 01 69 41 03 34

FABRIES J.F.  
I N R S B.P.27  
Av. de Bourgogne  
54501 VANDOEUVRE  
tél : 03 83 50 20 29  
fax : 03 83 50 20 97

FAUVEL S.  
CEA/IPSN/DPEA/SERAC  
CE Saclay  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
tél : 01 69 08 60 00

FEUILLEBOIS F.  
URA CNRS 857  
Laboratoire PMMH  
10 rue Vauquelin  
75231 PARIS CEDEX 05  
tél : 02 40 79 45 53

FISCHER N.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
tél : 01 45 17 13 60  
fax : 01 45 17 13 61

GAUCHET N.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
tél : 01 69 08 60 00

GAUFFRE F.  
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

GAILLOT D.  
FILTRAUTO/LABINAL  
5 Ave Newton B.P. 265  
78053 St Quentin en Yvelines  
tél. 01 30 85 49 99  
fax. 01 30 85 36 36

GENSDARMES F.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
tél : 01 69 08 60 00

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.  
I. C. S. ITS  
91 rue du Gal de Gaulle  
27109 LE VAUDREUIL  
tél : 02 32 09 36 26  
fax : 02 32 09 36 28

GREHAN G.  
LESP  
INSA de Rouen URA  
CNRS 230, CORIA BP 08  
76131 MONT St AIGNAN  
tél : 02 35 52 83 87

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

HERVE P.  
Université Paris X LEEE  
1 chemin Desvallières  
92410 Ville d'Avray  
tél. 01 47 09 70 13  
fax. 01 47 09 16 45

HERVY F.  
URA CNRS 857  
Laboratoire PMMH  
10 rue Vauquelin  
75231 PARIS CEDEX 05  
tél : 02 40 79 47 52  
fax. 01 40 79 47 95

HUET C.  
L A R A H  
U.B.O. B.P.809  
6, Av. V. Le Gorgeu  
29285 BREST CEDEX  
tél : 02 98 01 62 44  
fax : 02 98 01 67 23

JARDINIER M.  
AERECO  
9 Allée du Clos des Charmes  
77615 Marne La Vallée  
tél. 01 60 06 44 65  
fax 01 64 80 47 26

KRAMER H.  
Andersen Instruments GmbH  
Frauenauracherstr. 96  
D-91056 ERLANGEN  
tél.: 49 9131 909 487  
fax : 49 9131 909 156

LABORDE J.C.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
Cedex  
tél : 01 69 08 60 00

LACAN J.  
CEA/IPSN/DPEA/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
tél. : 01 69 08 60 00

LATERRADE C.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
tél : 01 45 17 13 60  
fax : 01 45 17 13 61

LE BIHAN O.  
Ecole Pol. Féd. de Lausanne  
EPFL/LPAS  
CH-1015 Lausanne  
Suisse  
tél : (41) 21 693 53 15

LEVEQUE J.Y.  
CEPN/SACLAY  
91895 ORSAY Cedex

MASSOUH L.  
LEPI/ISITV  
avenue G. Pompidou B.P. 56  
83162 La Valette du Var cedex  
Tél. 04 94 14 24 46  
fax: 04 94 14 25 72

MARUANI S.M.  
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

MAYNE M.  
CEA Saclay  
DRECAM/SPAM Bât. 522  
91191 GIF SUR YVETTE  
tél. 01 69 08 52 62  
fax. 01 69 08 87 07

MAZOUÉ S.  
RATP/DZE/EQA/SEC  
13 rue Jules Vallès  
75011 PARIS  
tél : 01 48 04 18 55

MONIER R.  
PEUGEOT CITROEN  
DDRH/CTLG/PER/FOR  
18 rue des Fauvelles  
92250 La Garenne Colombes  
tél. 01 56 47 22 67  
fax. 01 56 47 23 18

MOCHO V.  
CEA/IPSN/DPEA/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
tél : 01 69 08 60 00

PAGLIARDINI  
CEA/IPSN/DPEA/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
tél. : 69 08 60 00

PAPAZIAN P.  
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

PARFAIT C.  
RATP/DZE/EQA/SEC  
13 rue Jules Vallès  
75011 PARIS  
tél : 01 48 04 18 55

PAUL V.  
GlaxoWellcome  
23 rue Lavoisier  
27091 EVREUX Cedex  
tél. 02 32 23 55 00  
fax. 02 32 23 55 22

PERRIN M.L.  
IPSN/DPHD/SEGR B.P.6  
92265 Fontenay aux Roses  
tél. 01 46 54 86 13  
fax. 01 46 54 88 29

PERROT C.  
LNE  
1 rue Gaston Boissier  
75724 PARIS CEDEX 15  
tél.. 01 40 43 38 79  
fax. 01 40 43 37 37

PHAM C.  
DESS Aérosol  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
tél : 01 45 17 13 60  
fax : 01 45 17 13 61

PILOT G.  
CEA/IPSN/DPEA/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
tél : 01 69 08 60 00

POEUF P.  
CLIMESPACE  
185 rue de Bercy  
75012 PARIS  
tél. 01 44 74 89 47  
fax. 01 44 74 89 49

PREVOST C.  
CEA/IPSN/DPEI/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
tél. : 69 08 60 00

PUCCINI S.  
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

QUILICHINI X.  
PMMH/ESPCI  
10 rue Vauquelin  
75231 PARIS cedex 05  
tél. 01 40 79 47 52

REBOURS A.  
AIR PAYS de la LOIRE  
2 rue A. Kastler B.P. 30723  
44307 NANTES  
tél. 02 51 85 80 80  
fax 02 40 18 02 18

RESCH F.  
LEPI/ISITV B.P. 56  
Ave G. Pompidou  
83162 La valette du Var  
tél. 04 94 14 23 63  
fax. 04 94 14 25 72

RICCI S.  
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

RICCIARDI L.  
CEA/IPSN/DPEA/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
tél. : 69 08 60 00

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

RIGUET  
Université Paris X LEEE  
1 chemin Desvallières  
92410 Ville d'Avray  
tél. 01 47 09 70 13  
fax. 01 47 09 16 45

SUTEAU C.  
ENVIRONNEMENT S.A.  
111 bd. Robespierre  
78300 POISSY  
tél. 01 39 22 38 00  
fax. 01 39 65 38 08

ROBACHE A.  
Ecole des Mines de Douai  
941 rue Charles Bousseul  
59508 DOUAI cedex  
tél. 03 27 71 26 24  
fax. 03 27 71 25 25

THOMAS D.  
LSGC/CNRS  
1 rue Grandville B.P. 541  
54001 NANCY Cedex  
tél.: 03 83 17 51 97  
fax : 03 83 32 29 75

ROBINE E.  
CSTB B.P. 02  
84 rue Jean Jaurès  
77421 Marne la Vallée cedex 02  
tél. 01 64 68 82 66  
fax. 01 64 68 84 73

TIRET C.  
CENTRE D'ETUDE DU  
BOUCHET Sce PHD  
B.P. N° 3  
91710 VERT LE PETIT  
tél : 01 69 90 83 45  
fax. 01 64 93 52 66

ROGER F.  
L P A T C  
Université Paris XII  
Av. du Général de Gaulle  
94010 CRETEIL CEDEX  
tél : 01 45 17 13 56  
fax : 01 45 17 13 61

TYMEN G.  
L A R A A H  
U.B.O. B.P.809  
6, Av. V. Le Gorgeu  
29275 BREST CEDEX  
tél : 02 98 01 62 44  
fax : 02 98 01 67 23

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

UNGER L.  
LPGP URA 073  
Ecole Sup. D'Electricité  
Plateau du Moulon  
91191 Gif sur Yvette  
tél.01 69 85 17 76  
fax. 01 69 41 03 34

SENECHAL H.  
INSERM  
28 rue du Dr. Roux  
75724 PARIS Cedex 15  
tél : 01 45 68 82 44  
fax : 01 40 61 33 83

VENDEL J.  
CEA Saclay Bât. 383  
DPEA/SERAC/LPMC  
91191 GIF sur Yvette  
tél. 01 69 37 77  
fax 01 69 08 36 80

SLOIM M.  
Laboratoire Central de  
la Préfecture de Police  
39 bis rue de Dantzig  
75015 PARIS  
tél : 01 55 76 20 00  
fax. 01 55 76 27 05

VICARD F.  
STRATENE  
129 rue Servient  
69326 LYON Cedex 03  
tél. 04 78 38 44 35  
fax. 04 78 38 44 36

SOARES S.  
CEA/IPSN/DPEA/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
tél. : 69 08 60 00

WITSCHGER O.  
CEA/IPSN/DPEA/SERAC  
CE Saclay Bât. 389  
91191 GIF-SUR-YVETTE  
tél : 01 69 08 50 61  
fax. 01 60 19 30 61