

ASFERA

Association Française d'Etudes et de Recherches sur les Aérosols

LPATC-UFR Sciences Université Paris XII

Avenue du Général de Gaulle 94010 Créteil Cedex

Tél. : 01.45.17.13.55 - Fax : 01.45.17.13.61

E-mail : info@asfera.org - site : www.asfera.org

CFA 2001

ACTES du 17^{ème} CONGRES FRANÇAIS

sur les AEROSOLS

PARIS, 11 - 12 DECEMBRE 2001

17^e CONGRES FRANÇAIS SUR LES AEROSOLS C F A 2001

11 et 12 Décembre 2001

SOMMAIRE

	<i>Pages</i>
Editorial par le Dr. D. BOULAUD, Président de l'ASFERA.	1
AEROSOLS ET SANTE	
Mise au point et évaluation d'un nouveau nébuliseur pour administrer la tobiTM. L. VECELLIO NONE ^(1,2) , D. GRIMBERT ⁽¹⁾ , J. BORDENAVE ⁽³⁾ , G. BENOIT ⁽³⁾ , G. CHANTREL ⁽²⁾ , P. DIOT ⁽¹⁾ ; (1) INSERM, Tours (2) D.T. F., Saint Etienne ; (3) Service Pharmacie, Hôpital Trousseau, Paris.	4
Détermination expérimentale de l'efficacité physique d'échantillonnage de deux échantillonneurs de bioaérosols. J.F. FABRIÈS, R. WROBEL, P. GÖRNER ; INRS, Vandoeuvre	9
Radon et thermalisme. R. AMEON ; Service d'Etudes et de Recherches sur la Géosphère et l'Elimination des Déchets. IPSN, CEA Fontenay-aux-Roses.	16
Etude de la bioadhésion d'un aérosol d'aspergillus niger sur trois supports inertes. M. BOISSIER ^(1 ;2) , E. ROBINE ⁽¹⁾ , I. LACAZE ⁽¹⁾ , S. MOULARAT ⁽¹⁾ , A. RENOUX ⁽²⁾ , R. MOREAU ⁽²⁾ (1) CSTB, Champs sur Marne ; (2) LPATC, Paris XII.	22
PHYSIQUE DES AEROSOLS	
Diffusion de la lumière par un ellipsoïde : Implications en réfractométrie d'arc-en-ciel. Y. HAN ⁽¹⁾ , S.Z. WU ⁽¹⁾ , K.F. REN ⁽²⁾ , L. MEES ⁽²⁾ , G. GOUESBET ⁽²⁾ , G. GREHAN ⁽²⁾ ; (1)Laboratoire de Radiophysique, Université de Xidian, Xi'an, Chine (2)LESP, Université et INSA de Rouen.	29
Interaction entre impulsions laser courtes et particules. L. MEES, G. GREHAN ; G. GOUESBET ; LESP, Université et INSA de Rouen.	35
Granulométrie et caractérisation chimique de particules submicroniques par analyse de l'intensité et de la polarisation d'un rayonnement diffusé. P. HERVE, F. HOU ; LEEE, Université Paris X.	41
Atomisation de liquide : post-traitement des séries temporelles issues de jets complexes. G. BOULNOIS ⁽¹⁾ , W. LIU ⁽²⁾ , S. MEUNIER-GUTTIN-CLUZEL ⁽¹⁾ , G. GOUESBET ⁽¹⁾ G. GREHAN ⁽¹⁾ ; (1) LESP, Université et INSA de Rouen ; (2) Dept. Aerospace Technology, National University of Defense Technology Changsha, Chine.	47

Etude expérimentale des dépôts par thermophorèse de particules microniques au sein d'une conduite de section rectangulaire. B. ASSAF, J.L. TANGUIER, M.O. RIGO, A. ZOULALIAN, LERMAB, Université Henri Poincaré Nancy.	48
Mesure du réentraînement par écoulement d'air d'un dépôt de poudre polydispersée. L. ALLOUL-MARMOR ^{(1) (2)} , O. WITSCHGER ⁽¹⁾ , A. RENOUX ⁽²⁾ , J. MONNATTE ⁽³⁾ ; (1) IPSN, Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols et du Confinement, Gif sur Yvette (2) LPATC, Université Paris XII (3) COGEMA, Saint Quentin en Yvelines.	54
DISCO : Une enceinte expérimentale pour l'étude de la dispersion de contaminant-application à la chute de poudres. F. GENSDARMES ⁽¹⁾ , O. WITSCHGER ⁽¹⁾ , G. BASSO ⁽¹⁾ ET J. MONNATTE ⁽²⁾ ; IPSN, Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols et du Confinement, Gif-sur-Yvette ; (2) COGEMA, Saint Quentin en Yvelines.	61
Charge d'aérosol par décharge électrique : effet de la forme des particules sur les lois de charges. L. UNGER, J.P. BORRA ; Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas, Ecole Supérieure d' Electricité.	68
Modélisation de la dynamique des aérosols atmosphériques : un point sur la simulation numérique. E. DEBRY ⁽¹⁾ , B. SPORTISSE ⁽¹⁾ ; (1) Centre d' Enseignement et de Recherche sur l'Eau, la ville et l'environnement, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, Champs sur Marne.	74

AEROSOLS ET ENVIRONNEMENTS

Conférence plénière Interactions aérosols - Climat. Y. BALKANSKI Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, Gif-sur-Yvette	81
Esquif 2000 : Surveillance des aérosols en région Ile de France. H. RANDRIAMIARISOA ⁽¹⁾ , P. CHAZETTE ⁽¹⁾ , J. SANAK ⁽¹⁾ , C. FLAMANT ⁽²⁾ , M. SICARD ⁽²⁾ , S. ALFARO ⁽³⁾ , (1) Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, CE-Saclay, (2) Service d'Aéronomie du CNRS, Paris (3) LISA, Univ. Paris XII.	84
Fractionnement des particules dans un nuage à la station du Puy de Dôme. R. DUPUY, K. SELLEGRI ET P. LAJ ; Laboratoire de Météorologie Physique, Université Blaise Pascal, Aubière.	91
Variation rapide de la composition inorganique des aérosols lors de la campagne escompte. N. GUITARD, M. SCHULZ, H. CACHIER, Y. BALKANSKI ; LSCE/CFR, Gif sur Yvette.	98
Etude d'aérocontamination croisée d'aérosols entre l'extérieur et l'intérieur d'une station du métro parisien. N. FISCHER ^(1,2) , S. MAZOUÉ ⁽¹⁾ , A. RENOUX ⁽²⁾ ; (1) RATP, Département Sécurité et Environnement, Paris ; (2) LPATC, Université Paris XII.	103
Caractérisation granulométrique des particules présentes dans un tunnel routier : éléments chimiques et partition gaz-particules des composés aromatiques polycycliques : cas de l'A14 sous la défense. J.P. QUISEFIT, S. GARIVAIT, E. STEINER, V. TESSAURO, NICOLAS GOUALIN ; LISA, Université Paris 7 et Paris XII.	109
Dispositif expérimental pour l'étude de l'émission des aérosols fibreux par des matériaux de construction. H. ANTOINE ^(1,2) , D. LARZILLERE ⁽¹⁾ ; J.P. QUISEFIT ⁽²⁾ , A. GAUDICHET ⁽²⁾ ; (1) CSTB, Champs sur Marne. (2) LISA Paris VII Paris XII.	115

METROLOGIE DES AEROSOLS ET INSTRUMENTATION

Principe d'un compteur à flux continu de particules par condensation d'humidité ambiante (COPACHA). E. GEHIN ⁽¹⁾ , B. GAFFET ⁽²⁾ , A. RENOUX ⁽³⁾ ; (1) CERTES, Université Paris XII, (2) CERAMO Ingénierie, La Rochette, (3) LPATC, Université Paris XII.	121
Mesure du taux de renouvellement d'un aérosol dans une enceinte ventilée. C. PREVOST ⁽¹⁾ , L. PAUGAN ⁽²⁾ , J.C. LABORDE ⁽¹⁾ ; (1) IPSN, Laboratoire d'Etude des transferts de Contamination, Epuration et Ventilation, CEA-Saclay ; (2) DESS SAGA.	127

Un nouvel instrument pour mesurer la distribution dimensionnelle de la fraction non-attachée des produits à vie courte du radon-222.	135
G. TYMEN ⁽²⁾ , V. VOISIN ⁽¹⁾ , N. MICHELSEN ⁽¹⁾ ; (1) IPSN, CEA-Saclay ; (2) Laboratoire de Recherches Appliquées Atmosphère-Hydrosphère, Université de Bretagne Occidentale.	
Sélection aérodynamique des particules d'un aérosol à l'aide de mousses poreuses en polyuréthane.	141
P.GÖRNER ⁽¹⁾ , R.J. AITKEN ⁽²⁾ , L.C. KENNY ⁽³⁾ , C. MOEHLMANN ⁽⁴⁾ , R. WROBEL ⁽¹⁾ , J.-F. FABRIES ⁽¹⁾ ; INRS, Vandoeuvre ; (2) IOM, Grande Bretagne ; (3) HSE, Grande Bretagne ; (4) BIA, Allemagne.	
Développement d'un outil pour l'évaluation in situ des performances des échantillonneurs individuels d'aérosols.	148
O. WITSCHGER ⁽¹⁾ , D. MARK ⁽²⁾ , R.J. AITKEN ⁽³⁾ , G. BEAUMONT ⁽³⁾ , G. LIDEN ⁽⁴⁾ , W. KOCH ⁽⁵⁾ , H. KOMHOUT ⁽⁶⁾ , (1) Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols et du Confinement, CEA/ Saclay ; (2) Health and Safety Laboratory, UK ; (3) Institute of Occupational Medicine, Edinburgh ; (4) National Institute for Working Life, Sweden ; (5) Fraunhofer Institut für Toxikologie und Aerosolforschung (FHG), Hannover ; (6) Environmental and Occupational Health Group, Department of Environmental Sciences, The Netherlands ;	
Performance d'échantillonnage de préleveurs individuels d'aérosols en environnement d'air calme et à proximité d'une source de contamination.	155
O. WITSCHGER ⁽¹⁾ , S. FAUVEL ⁽¹⁾ , G. BASSO ⁽¹⁾ , S. GRINSHPUN ⁽²⁾ (1) Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols et du Confinement, CEA/Saclay ; (2) AREAL, Cincinnati.	
Filtration des aérosols solides microniques et submicroniques sur média plans : influence de la vitesse de filtration	163
J.C. APPERT-COLLIN ⁽¹⁾ , E. MAILFERT ⁽¹⁾ , P. CONTAL ⁽¹⁾ , D. THOMAS ⁽¹⁾ , S. CALLE ⁽¹⁾ et D. BEMER ⁽²⁾ (1) LSGS/CNRS, Nancy Cédex ; (2) INRS, Vandoeuvre-les-Nancy Cédex.	
<u>EXPOSANTS :</u>	
ECOMESURE Etude Contrôle Mesure B.P. n° 13 3 rue du Grand Cèdre 91640 JANVRY	169
ITS Inchcape Testing Service 91 rue du Général de Gaulle 27109 LE VAUDREUIL Cedex	175
<u>L'EUROPEAN AEROSOL CONFERENCE, EAC</u>	177
Liste des auteurs	179
Liste des participants	180



ASFERA

ASSOCIATION FRANCAISE D'ETUDES ET DE RECHERCHES SUR LES AEROSOLS

LPATC - UFR Sciences Université Paris XII 94010 CRETEIL

Avenue du Général de Gaulle

Tél : 01 45 17 13 62 Fax : 01 45 17 13 61

www.asfera.org

Le Président

Notre 17^{ème} Congrès Annuel (CFA 2001) s'est donc tenu à l'INA Paris les 11 et 12 décembre 2001. A cette occasion, nous avons pu réunir près de 100 participants qui ont assisté à 29 communications dont deux conférences plénières présentées par le Docteur Claude LESNE du département de santé publique de la faculté de médecine de Rennes et Monsieur Yves BALKANSKI du Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement du CEA. Ces conférences ont particulièrement intéressé l'assistance en abordant des sujets très différents mais touchant, toutes deux, à des thèmes d'actualité, l'effet des aérosols sur la santé et leur rôle dans les évolutions climatiques.

Le CFA 2001 est dans la tradition des CFA précédents, nous y retrouvons les quatre grandes sessions habituelles :

- Aérosols et santé,
- physique des aérosols,
- aérosols et environnements,
- la métrologie des aérosols et instrumentation.

Du 3 au 7 septembre 2001 s'est tenue à Leipzig l'European Aerosol Conference 2001 qui a réuni environ 580 participants dont 26 venant de France. Au cours de cette conférence, Loic MEES, a présenté brillamment ses travaux sur l'interaction entre un pulse femtoseconde et une particule sphérique qui lui ont valu le prix Jean Bricard 2001 décerné par notre association. Cette communication a été reprise au cours de notre CFA 2001 lors de la session « Physique des Aérosols ». A cet égard, ce prix a été remis solennellement à la fin de la première journée de notre conférence afin de donner plus de visibilité à un prix qui récompense un jeune chercheur pour une contribution importante et originale dans le domaine de la Science des aérosols .

Par ailleurs, durant cette conférence de Leipzig, le Docteur Jean-François FABRIES et moi-même avons représenté l'ASFERA au bureau directeur de l'European Aerosol Assembly (EAA). A cette occasion, nous avons retenu la proposition faite par l'association Hongroise de tenir l'EAC 2004 à Budapest du 6 au 10 septembre.

A Leipzig, toujours, le Docteur Jean-François FABRIES et moi-même avons représenté l'ASFERA au bureau directeur de l'International Aerosol Research Assembly. Les principales discussions ont concerné, une fois de plus, la création et le développement d'un site web pour l'IARA avec un projet ambitieux appelé "*Aerosolonline.com*" où l'on devrait trouver une vaste documentation scientifique et technique sur la physique et la métrologie des aérosols. Ce site encore en construction devrait être opérationnel au cours de l'année 2002.

A cet égard, l'ASFERA, aussi, s'est dotée de son site www.asfera.org qui est opérationnel depuis le mois de septembre de l'année 2001. Ainsi, pour les prochains CFA, une grande partie des informations et des renseignements pourront y être trouvés. Olivier WITSCHGER, membre du bureau directeur de l'ASFERA, est le correspondant pour notre site et je le remercie chaleureusement.

Je tiens à remercier également nos fidèles soutiens : la revue "*Pollution Atmosphérique*" et le "*Journal of Aerosol Science*" qui publient les résumés des communications respectivement en Français et en Anglais. Je salue, une fois de plus, la présence de deux exposants lors de notre conférence (*Ecomesure* et *ITS*).

Une fois encore, je remercie le bureau de l'ASFERA qui a construit ce programme du CFA 2001, avec une mention toute particulière pour notre secrétaire générale le Dr. Evelyne GEHIN qui est la cheville ouvrière de nos CFA depuis plusieurs années.

Mes remerciements vont également vers, d'une part, les étudiants du DESS "SAGA" qui ont su si bien vous accueillir pendant les deux journées de la conférence, d'autre part, Madame Isabelle PORCON secrétaire du LPATC de l'université Paris 12 qui a assuré la préparation et l'édition des résumés et des actes.

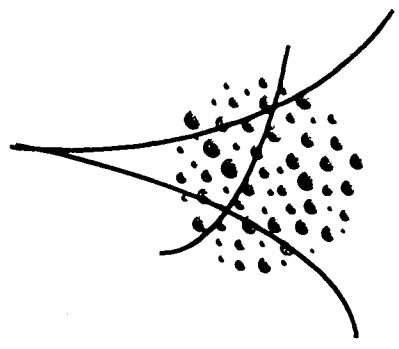
Enfin, je vous invite à participer activement à l'IAC 2002 qui se tiendra à Taipei, Taiwan, du 8 au 13 septembre 2002 (<http://caart.org.tw>) montrant ainsi le dynamisme de notre recherche en Science des Aérosols, et je vous donne rendez-vous pour le CFA 2002, toujours début décembre et certainement à l'INA.

Denis BOULAUD
Président de l'ASFERA

L'ASPERA décerne le

Prix Jean Bricard

2001



*À Monsieur Loïc MEES,
étudiant chercheur au CORIA / Université de Rouen*

*En accord avec sa vocation de promotion de la recherche scientifique,
l'Association Française d'Etudes et de Recherches sur les Aérosols décerne ce prix
pour une contribution importante et originale dans le domaine de la Science des Aérosols.*

Le Secrétaire

Le Président

Le Vice-Président

MISE AU POINT ET EVALUATION D'UN NOUVEAU NEBULISEUR POUR ADMINISTRER LA TOBI™

L. Vecellio None(1,2), D. Grimbert(1) J. Bordenave(3), G. Benoit(3), G. Chantrel(2), P.Diot(1).

(1) INSERM EMI-U 00-10, Groupe de Pneumologie et Imagerie de Ciblage, CHU Bretonneau, 37044 TOURS Cedex.

(2) La Diffusion Technique Française, 114-120 rue Bergson, 42003 Saint Etienne Cedex

(3) Service Pharmacie, Hopital Trousseau, PARIS

La Tobit™ (Chiron, USA) est un médicament qui vient d'obtenir l'autorisation de mise sur le marché en France (AMM). Ce médicament destiné à des patients atteints de Mucoviscidose est administré sous forme d'aérosol à raison de deux séances par jour. Actuellement, un seul nébuliseur est recommandé pour administrer la Tobit™. L'objectif de notre étude était d'améliorer les performances du nébuliseur NL9® (La Diffusion Technique Française, Saint Etienne, France) afin d'optimiser l'efficacité du traitement avec un aérosol de Tobit™. La performance des nébuliseurs est déterminée par la quantité de médicament sous forme d'aérosol susceptible de se déposer dans les poumons du patient (masse respirable). La masse respirable (MR) est le produit de la masse inhalable (MI) de médicament susceptible d'être inhalée par la fraction respirable (FR) de particules constituant l'aérosol susceptible de se déposer dans les poumons.

La première étape de notre étude consistait à étudier le fonctionnement du nébuliseur NL9®. Nous avons d'une part analysé les différents mécanismes intervenant dans la génération de l'aérosol et d'autre part étudié les variabilités intra et inter nébuliseurs. La deuxième étape de notre étude consistait à apporter des modifications au nébuliseur afin d'améliorer la MR et le débit de médicament généré par le nébuliseur NL9®. Les performances du nouveau nébuliseur (NL9T®) étaient ensuite comparées à celles nébuliseur de référence (1) (PariLC+®, Pari, Allemagne) pour administrer la Tobit™.

Etude du fonctionnement du nébuliseur NL9®

Génération de l'aérosol

La génération de l'aérosol par le nébuliseur peut se décomposer en quatre étapes : La première génération, la deuxième génération, la sélection et le transport de l'aérosol. Chacune de ces étapes est expliquée de façon qualitative, une description détaillée dépasserait le cadre de cette étude.

Un jet de gaz comprimé traverse le gicleur du nébuliseur et par effet venturi aspire le liquide.

Le mélange de ces deux phases est ensuite expulsé du gicleur à une vitesse proche de celle du son. Le liquide est instantanément transformé en gouttelettes : c'est la première génération ou l'atomisation. Ce spray est ensuite dirigé sur une surface solide : un déflecteur. Les particules sont déviées et sélectionnées par ce déflecteur : c'est la deuxième génération. Les plus grosses vont s'impacter sur les parois du nébuliseur et les plus petites vont se diriger vers la sortie : c'est la sélection (Pour le nébuliseur NL9®, 99% des particules sont impactées). Pour finir, le gaz vecteur et l'air additionnel transportent l'aérosol hors du nébuliseur.

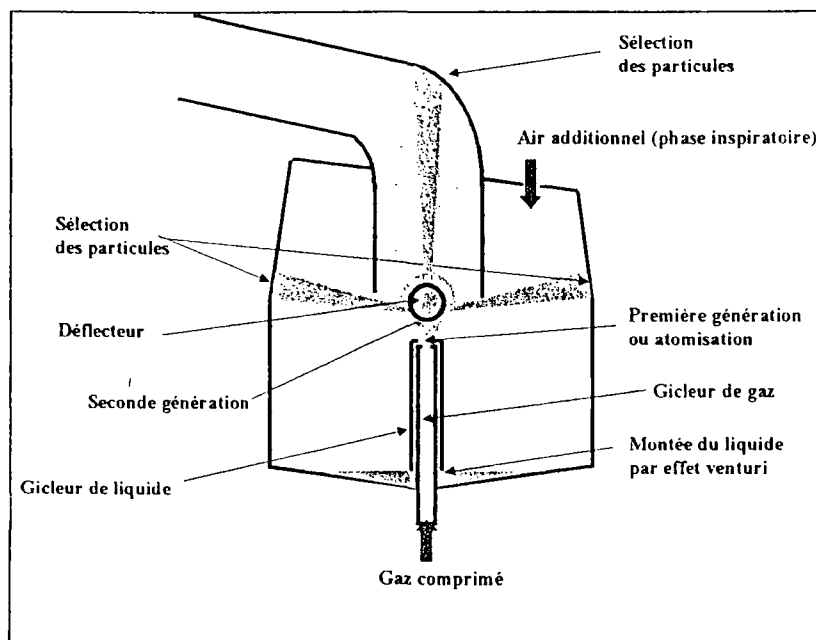


Figure 1 : Principe de fonctionnement du nébuliseur NL9®

Etude de la variabilité du nébuliseur NL9®

Pour déterminer les facteurs impliqués dans la variabilité des performances inter et intra nébuliseurs, nous avons fait varier les composants du nébuliseur indépendamment les uns des autres. Le nébuliseur NL9® étant constitué d'une cuve, d'un gicleur de liquide, d'une tête et d'un déflecteur, ces 4 composants ont été testés selon leur moule de fabrication et selon leur positionnement dans l'assemblage du nébuliseur. A partir de ces observations, nous avons proposé la création de deux nouvelles pièces permettant d'améliorer les performances du nébuliseur NL9®.

Amélioration des performances du nébuliseur NL9®

Amélioration du débit de nébulisation

Une première pièce permettant d'optimiser le débit de nébulisation et de diminuer les différences de débit de nébulisation entre nébuliseurs a été conçue. Sachant que la position

du déflecteur par rapport au gicleur de liquide jouait un rôle majeur, nous avons solidarisé les deux pièces et centré correctement le déflecteur par rapport au gicleur de liquide. Nous avons ensuite fait varier différents paramètres de cette pièce afin d'améliorer le débit de nébulisation : la distance entre le gicleur de liquide et le gicleur de gaz, la distance entre le gicleur de liquide et le déflecteur, le diamètre du déflecteur. Nous avons alors conçu une pièce augmentant le débit de nébulisation au diamètre aérodynamique médian en masse souhaité de 4 μm . De plus, cette pièce permet de diminuer de bruit de fonctionnement du nébuliseur apportant ainsi un meilleur confort au patient.

Amélioration de la masse inhalable(MI)

Pour améliorer le volume résiduel (volume de liquide restant dans le nébuliseur après nébulisation), la stratégie adoptée était de retarder le début du crachotement du nébuliseur (fin de la nébulisation d'après le projet de norme CENTC215WG) et de limiter la surface mouillée dans le nébuliseur.

Une pièce appelée « jupe » (Figure 2) permet de diminuer la surface mouillée du nébuliseur et favorise le recyclage rapide des aérosols. Le principe est le suivant : le liquide à nébuliser passe à travers les dents de la « jupe » puis est transformé en aérosol. Après la seconde génération, les particules sont impactées sur la partie supérieure de la jupe. Puis lorsque leur propre poids est supérieur à leur tension de surface, l'aérosol transformé en liquide glisse le long des dents vers la base du gicleur de liquide.

Ces modifications (jupe et déflecteur solidaire du gicleur de liquide) ont donné lieu à la création du nébuliseur NL9T®.

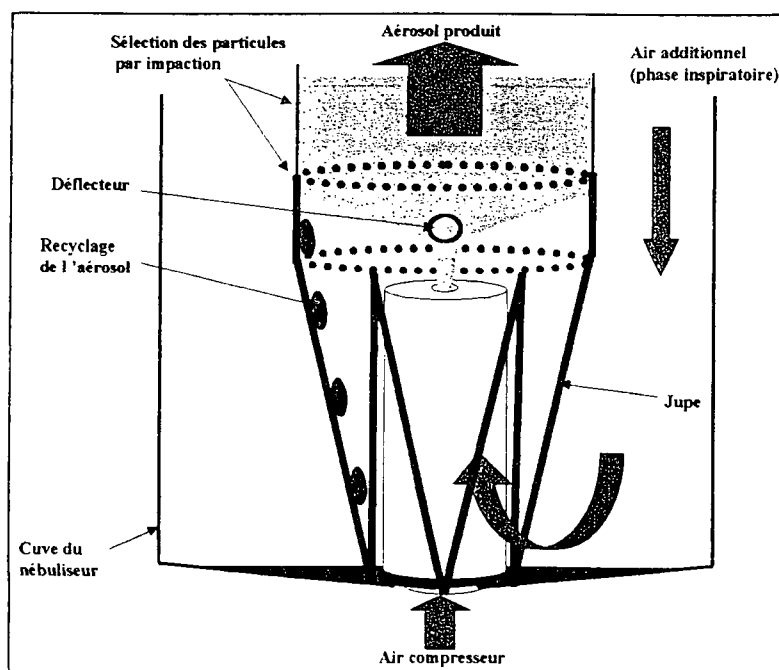


Figure 2 : Principe de la jupe

Evaluation des performances du nébuliseur NL9T® avec une solution de TobitTM

6 nébuliseurs NL9® étaient testés selon le protocole de T. A. Standaert (1) et les résultats étaient comparés à ceux obtenus par T. A. Standaert avec le nébuliseur de référence (1). La TobitTM était nébulisée à l'air libre et la MI était déterminée par gravimétrie corrigée de la concentration de TobitTM en fin de nébulisation (dosage HPLC) selon l'équation suivante.

$$MI=C1(P2-P1)-C2(P3-P1)$$

C1: Concentration initiale de Tobit (300mg/5ml)

C2 : Concentration finale de Tobit (dosage HPLC)

P1 : Poids du nébuliseur vide

P2 : Poids du nébuliseur rempli de Tobit

P3 : Poids du nébuliseur en fin de nébulisation

La FR des particules (fraction de particules comprises entre 1 micromètre et 5 micromètres) était déterminée par diffraction laser (Mastersizer X, Malvern, UK).

La MR était le produit de la FR par la MI

$$MR=FR \times MI$$

Nébuliseur	Compresseur	MR (mg)	MMAD (μ m)	Temps de nébulisation (min)	% Standard
Pari LC Plus	PulmoAide	71.4	4.93	14.8	100%
NL9T	Abox+	85.1	4.12	13.5	119%

Tableau 1

Conclusion :

Avec la solution de TobitTM, les performances du nouveau nébuliseur NL9T® (MR=85.1 milligrammes) (Tableau1) étaient supérieures de 19% à celles du nébuliseur Pari LC+® (MR=71.4 milligrammes) (1).

Le nébuliseur NL9T® est donc adapté pour la nébulisation de la TobitTM

1. T.A. Standaert et al. 2000. The choice of compressor effects the aerosol parameters and the delivery of Tobramycin from a single model nebulizer. .J Aerosol. Med. 13. 147-153

DETERMINATION EXPERIMENTALE DE L'EFFICACITE PHYSIQUE D'ECHANTILLONNAGE DE DEUX ECHANTILLONNEURS DE BIOAEROSOLS

J.F. Fabriès, R. Wrobel, P. Görner

Institut National de Recherche et de Sécurité (INRS)
Laboratoire de Métrologie des Aérosols
Avenue de Bourgogne, BP 27, 54501 Vandoeuvre Cedex

TITLE

EXPERIMENTAL ASSESSMENT OF THE SAMPLING EFFICIENCY OF TWO
BIOAEROSOL SAMPLERS

KEYWORDS: Sampling efficiency/Bioaerosol/sampler

ABSTRACT

Two bioaerosol samplers: MAS-100 (Merck, Darmstadt, Germany) and M Air T (Millipore, USA) were studied with regard to their physical sampling efficiency in a wind tunnel using a test aerosol made of glass microspheres and a particle-size analyser Aerosizer® (Amherst Process Instruments, Inc. Hadley, USA). Both instruments are multiple-hole single-stage impactors. The collection efficiency of the multiple-hole grid was also measured. It is shown that the grid is responsible for some retention of particles with an aerodynamic diameter larger than about 8 μm . The measured cut-off diameter for the impactor is 1.6 μm for the MAS-100 sampler at the measured flowrate: 97 $\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$ and 2.2 μm for the M Air T sampler whatever its flowrate (133 or 175 $\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$).

MOTS-CLEFS : Efficacité d'échantillonnage/Bioaérosol/échantillonneur

RESUME

L'efficacité d'échantillonnage de deux appareils de prélèvement de bioaérosols : MAS-100 (Merck, Darmstadt, Germany) et M Air T (Millipore, USA) a été mesurée dans un tunnel aéraulique avec un aérosol d'essai constitué de particules sphériques de verre en utilisant un analyseur Aerosizer® (Amherst Process Instruments, Inc. Hadley, USA). Les deux biocollecteurs sont de type impacteur à un étage. On a pu mesurer également au cours de l'étude l'efficacité de collecte de la grille multi-orifices qui constitue à la fois une des pièces de l'impacteur et la tête de prélèvement. Il apparaît que cette grille retient partiellement les particules aspirées de l'air ambiant au-dessus d'un diamètre aérodynamique de l'ordre de 8 μm . Le diamètre de coupure de l'impacteur mesuré est 1,6 μm pour l'appareil MAS-100 au débit de 97 $\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$ et 2,2 μm pour l'appareil M Air T quel que soit son débit. Ce dernier appareil utilise en effet séquentiellement deux valeurs : 133 et 175 $\text{l}\cdot\text{min}^{-1}$ au cours d'un cycle d'échantillonnage.

INTRODUCTION

Les micro-organismes présents dans l'air sous forme de bioaérosols peuvent induire un certain nombre d'effets nocifs pour les personnes exposées, et être à la source de pathologies non seulement infectieuses, mais aussi de type immuno-allergique ou toxinique. En milieu de travail les réservoirs potentiels de micro-organismes sont nombreux. On peut rencontrer des bioaérosols dans des procédés tels que par exemple ceux mis en œuvre dans le traitement des déchets urbains ou spécifiques (industriels, hospitaliers), le compostage, le traitement des eaux usées ou des boues, ou encore dans la manutention de produits contaminés. L'évaluation de la qualité microbiologique de l'air est une étape qui peut s'avérer nécessaire dans une démarche d'évaluation des risques. Elle met en œuvre des techniques d'échantillonnage spécifiques, dont une grande famille utilise le dépôt des bioaérosols sur un support gélosé par impaction inertielle. La mise en culture dans des conditions maîtrisées (type de gélose, température et durée d'incubation) permet ensuite le dénombrement de colonies de micro-organismes à partir duquel on calcule la concentration dans l'air. L'identification des micro-organismes est également possible à partir des colonies obtenues.

Cette étude porte sur l'évaluation de l'efficacité physique d'échantillonnage de deux appareils de type impacteur mono-étage [1], qui constitue une catégorie d'appareils actuellement très utilisée notamment pour des ambiances faiblement contaminées. Cette propriété conditionne le recueil des particules de l'air supportant les micro-organismes et influe sur les résultats de mesurage. La méthode expérimentale choisie est détaillée dans le chapitre suivant, et elle sera appliquée à l'avenir à d'autres types d'échantillonneurs.

MATERIEL ET METHODE

Les deux appareils étudiés sont le modèle MAS-100 (Merck, Darmstadt, Allemagne) et le modèle M Air T (Millipore, USA) (Figures 1 et 2). Chaque appareil comporte une grille perforée d'un grand nombre d'orifices : 400 orifices de diamètre 0,7 mm répartis radialement dans le cas du MAS-100 ; 2 séries distinctes d'orifices répartis de manière plus complexe sur une grille légèrement sphérique dans le cas du M Air T, avec 859 orifices de diamètre 0,5 mm et 108 orifices de diamètre 0,6 mm. L'air est aspiré par un petit ventilateur à travers les orifices de la grille où les particules sont accélérées et précipitées par impaction sur la surface de la gélose, qui est contenue dans une boîte cylindrique positionnée en dessous de la grille (Figure 3).

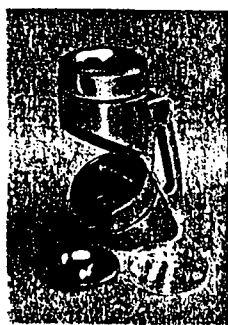


Figure 1 : Echantillonneur MAS-100 (Merck)

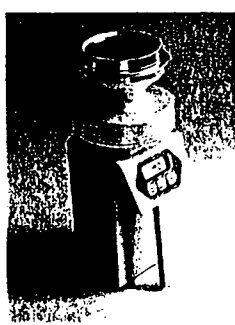


Figure 2 : Echantillonneur M Air T (Millipore)

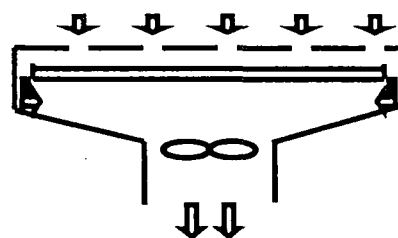


Figure 3 : Schéma de principe d'un bioimpacteur mono-étage

L'appareil M Air T présente la particularité de fonctionner séquentiellement avec deux valeurs du débit : 133 et 175 l.min⁻¹. Nous avons étudié les propriétés de l'appareil pour ces deux valeurs.

L'étude expérimentale a été conduite dans un tunnel aérodynamique avec une faible vitesse de déplacement horizontal d'air, de l'ordre de 15 cm.s⁻¹ [2]. Un aérosol constitué de particules sphériques de verre (Potters-Ballotini 3000, Barnsley, UK) a été généré dans la zone de mesure. La concentration était de l'ordre de 7 mg.m⁻³. Pour chaque appareil quatre configurations différentes ont été étudiées, correspondant chacune au mesurage d'un aérosol bien défini : aérosol ambiant ou aérosol récupéré à la sortie d'un élément de la tête d'échantillonnage. Ces aérosols étaient introduits à l'extrémité supérieure d'un tube vertical de diamètre 4,2 cm relié à un analyseur à temps de vol Aerosizer[®] (Amherst Process Instruments, Inc., Hadley MA, USA) (Figure 4). Celui-ci, dont le principe consiste à mesurer le temps de passage des particules de l'aérosol à la sortie d'une buse sonique grâce à deux faisceaux laser parallèles, permet de mesurer au cours d'une séquence la concentration en particules suivant différentes tranches granulométriques adjacentes. Une buse de diamètre 1500 µm a été utilisée pour ces expériences. Les informations de taille de particules étaient converties en valeurs de diamètre aérodynamique après correction de densité des particules. En raison des débits relativement élevés des bioimpacteurs (100 à 175 l.min⁻¹ environ) il était nécessaire de réaliser dans le tube vertical un prélèvement isocinétique afin d'accorder le débit d'aérosol mesuré et le débit de fonctionnement de l'analyseur (20,3 l.min⁻¹). Le débit principal dans le tube vertical était assuré par une turbine régulée en vitesse, le débit étant mesuré par un système venturi. Un débit d'air filtré d'appoint était envoyé sur l'analyseur afin de diluer l'aérosol échantillonné.

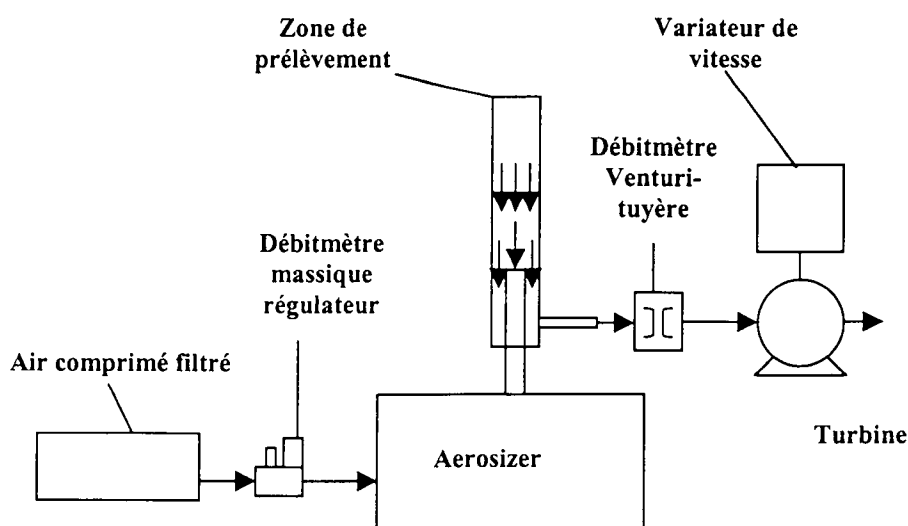


Figure 4 : Schéma du montage en vue du mesurage des propriétés d'échantillonnage des bioimpacteurs

Les quatre configurations étudiées sont les suivantes (Figure 5) :

Configuration A : extrémité supérieure du tube ouverte librement, mesurage de l'aérosol ambiant à l'altitude 1 dans le tunnel.

Configuration A' : extrémité coiffée par une pièce conique pouvant supporter la grille de l'impacteur, mesurage de l'aérosol ambiant à l'altitude 2 > altitude 1.

Configuration B' : extrémité coiffée de la grille de l'impacteur ; l'aérosol mesuré est l'aérosol ayant traversé la grille. Le support conique permet de limiter fortement le dépôt de l'aérosol à la sortie de la grille.

Configuration C : extrémité coiffée de la tête complète de prélèvement comprenant la grille et le support de gélose ; l'aérosol mesuré est l'aérosol ayant traversé la grille qui n'a pas été retenu par l'impacteur.

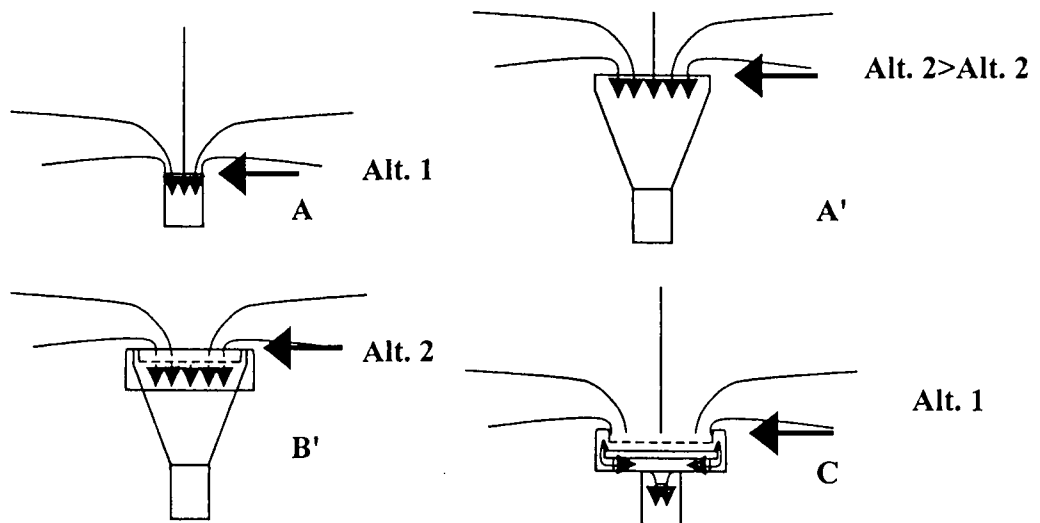


Figure 5 : Configurations d'échantillonnage A, A', B' et C en vue de déterminer les propriétés des appareils étudiés

Il faut noter que deux échantillonnages de l'aérosol ambiant sont prévus (configurations A et A') à deux altitudes différentes dans la zone de mesure, en raison de la stratification verticale de la concentration et de la granulométrie de l'aérosol due à la faible vitesse d'écoulement horizontal. Dans les deux cas on peut montrer que l'efficacité de captage de l'aérosol par l'orifice supérieur (du tube vertical ou de la pièce conique) est proche de l'unité pour les diamètres aérodynamiques des particules D_{ae} inférieurs à $30 \mu m$. La propriété physique la plus intéressante vis à vis de l'échantillonnage d'un aérosol est l'efficacité d'échantillonnage E_s , définie pour chaque valeur de D_{ae} comme étant le rapport de la concentration en particules collectées sur le substrat terminal (ici la gélose) $A_{gél}$ à la concentration correspondante de l'aérosol ambiant A au niveau de la position "normale" de l'appareil (altitude 1):

$$E_s = \frac{A_{gél}}{A} \quad (1)$$

L'efficacité de passage des particules à travers la grille E_{pg} peut être mesurée à l'aide du montage utilisant la pièce conique :

$$E_{pg} = \frac{B'}{A'} \quad (2)$$

où A' désigne la concentration ambiante au niveau de l'orifice supérieur du cône (altitude 2) et B' la concentration de l'aérosol à la sortie de la configuration B'. En fait les particules de l'aérosol peuvent être aspirées à travers les orifices, ou être déposées sur les bords des orifices par effet d'inertie, ou bien encore ne pas être captées en raison de l'écoulement d'air extérieur ou des effets de sédimentation et échapper au processus d'échantillonnage. Dans le cas de nos expériences dans l'air calme menées avec la grille en position horizontale il est légitime de négliger les pertes de particules qui échapperaient à l'effet d'aspiration soit par effet d'inertie soit en raison de la sédimentation, et de considérer que les particules ambiantes sont soit aspirées à travers les orifices, soit déposées à la surface de la grille. Dans ce qui suit on désignera par E_g le complément à l'unité de E_{pg} pour désigner l'efficacité de dépôt des particules sur la grille.

Le rapport de la concentration collectée sur la gélose à la concentration ambiante peut être calculé à partir de bilans matière. On en déduit une nouvelle expression de l'efficacité d'échantillonnage qui ne fait intervenir que les grandeurs mesurées :

$$E_s = E_{pg} - \frac{C}{A} \quad (3)$$

Pour chaque configuration étudiée A, A', B' et C deux séries de deux mesurages successifs (séquences de 1 minute) ont été réalisées, le même support de gélose n'étant utilisé que pour une seule série en raison du creusement de la gélose au regard de chaque orifice facilité par l'effet de jet du aux vitesses élevées. Par ailleurs trois expériences indépendantes ont été répétées pour le même échantillonneur.

RESULTATS ET DISCUSSION

Les Figures 6 et 7 montrent par exemple les résultats correspondant à l'efficacité de collecte de la grille E_g et à l'efficacité d'échantillonnage E_s , respectivement dans le cas de l'appareil MAS-100 dont le débit a été mesuré à 97 l.min^{-1} . Ces résultats sont des valeurs moyennes pour l'ensemble des 3 expériences, représentées avec un intervalle de confiance au niveau 95 % calculé à partir des erreurs sur les quantités mesurées en utilisant les règles de propagation des erreurs expérimentales. On peut constater que la grille, qui comporte les orifices de l'impacteur, retient de manière significative les particules au-dessus de $8 \mu\text{m}$ en diamètre aérodynamique, avec une efficacité proche de 60 % vers $20 \mu\text{m}$. Chaque orifice se présente en effet individuellement comme un orifice de captage à bord épais avec dans le cas général un écoulement d'air divergent en surface combiné à un écoulement convergent près de l'axe, et la collecte des particules par ce bord augmente avec leur inertie [3]. La vitesse moyenne de l'air à travers les orifices est de $10,8 \text{ m.s}^{-1}$ pour le MAS-100, environ 11 m.s^{-1} pour le M Air T à 133 l.min^{-1} pour l'ensemble des orifices et $14,5 \text{ m.s}^{-1}$ à 175 l.min^{-1} . On peut représenter au moins qualitativement le phénomène à l'aide du modèle d'efficacité d'aspiration (ou captage) qui a été développé par Vincent [4] pour les échantillonneurs réels. Cette efficacité de grille a une incidence sur la partie droite des points représentant l'efficacité d'échantillonnage dans la Figure 7, où elle est responsable de la décroissance de ce paramètre. Dans la même figure où E_s présente un maximum, la partie gauche des points est très proche de l'efficacité d'impaction puisque dans ce domaine de diamètre des particules l'efficacité de dépôt sur la grille est faible. Le diamètre de coupure D_{50} est voisin de celui qui peut être déduit de la théorie des impacteurs inertiels [5], soit $D_{50} = 1,63 \mu\text{m}$.

MAS-100 97 l/min

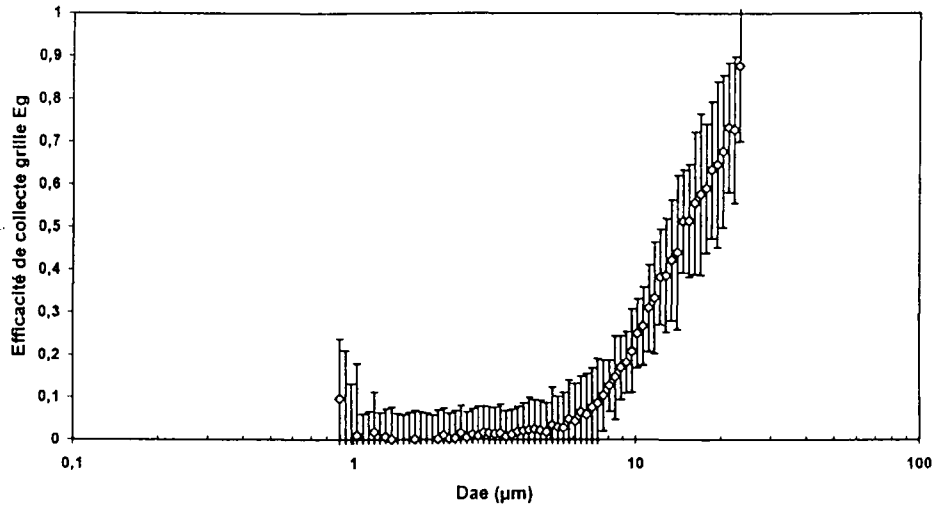


Figure 6 : Efficacité moyenne de collecte de la grille (N = 3 exp.) pour l'appareil MAS-100.

MAS-100 97 l/min

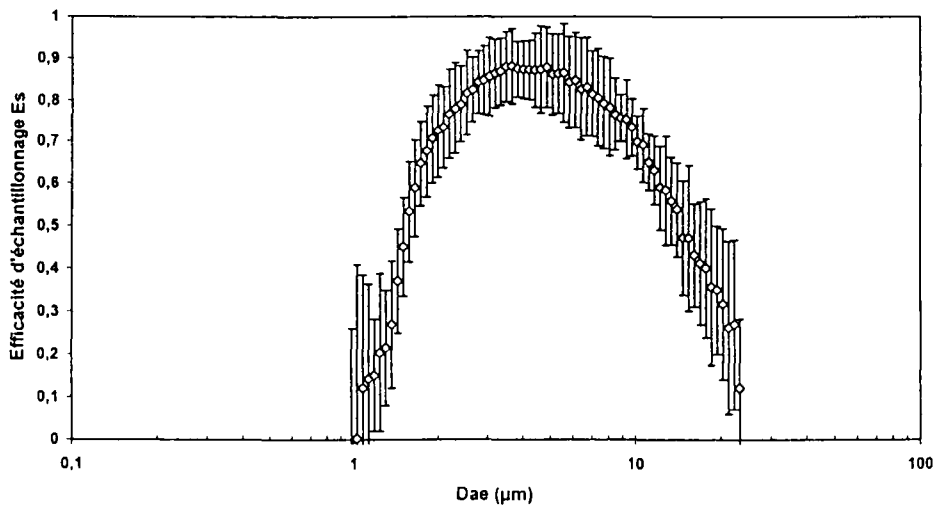


Figure 7 : Efficacité moyenne d'échantillonnage (N = 3 exp.) pour l'appareil MAS-100

Des résultats semblables ont été obtenus pour l'appareil M Air T. Ils sont globalement peu dépendants du débit en raison de la géométrie très particulière de la grille et des orifices, comme on peut le voir dans la Figure 8 qui regroupe l'ensemble des résultats sans les écarts-types par souci de lisibilité.

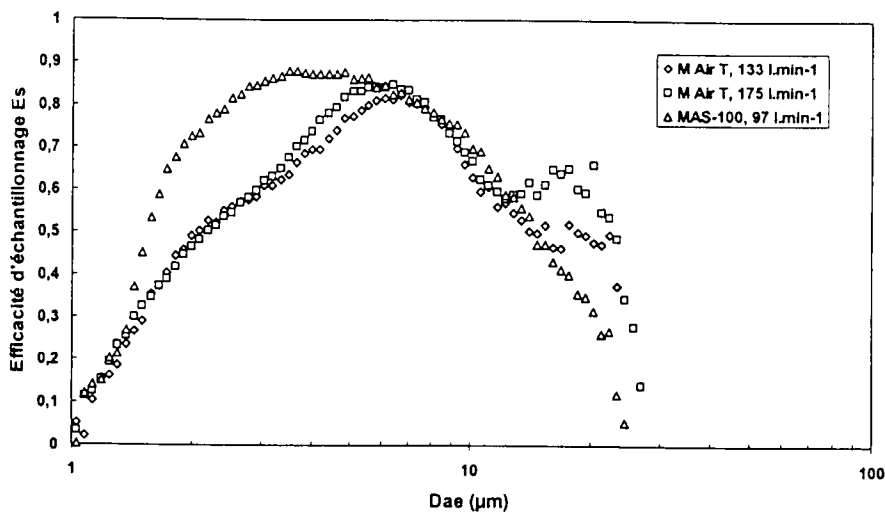


Figure 8 : Valeurs mesurées de l'efficacité d'échantillonnage Es des bioimpacteurs MAS-100 et M Air T

CONCLUSION

L'efficacité d'échantillonnage des appareils de type bioimpacteurs mono-étage présente un maximum dans le domaine des particules micrométriques. Elle est relativement faible vers les diamètres aérodynamiques de l'ordre de 1 μm en raison de la limite inférieure de collecte due au système d'impaction constitué des orifices de la grille et de la surface de la gélose. Au-delà de 8 μm environ la limitation est due au phénomène de dépôt des particules par effet d'inertie sur les bords des orifices de la grille. Dans le domaine micronique le diamètre de coupure mesuré est 1,6 μm pour l'appareil MAS-100 et 2,2 μm pour l'appareil M Air T indépendamment du débit. Ces résultats montrent qu'il n'est donc pas possible d'échantillonner avec ces dispositifs la totalité des micro-organismes en suspension dans l'air, qui sont habituellement portés par des particules non biologiques.

REFERENCES

- [1] Willeke, K., Macher, J.M. (1999) Air Sampling. *In: Bioaerosols – Assessment and control*. J.M. Macher, ed., ACGIH, Cincinnati, pp. 11.1-11.25.
- [2] Fabriès, J.F., Carton, B., Wrobel, R. (1984) Equipment for the study of air sampling instruments with real time measurement of the aerosol concentration. *Staub Reinhalt. Luft*, 44, 405-409.
- [3] Vincent, J.H. (1989) Aerosol sampling – Science and practice. John Wiley, New-York, pp. 119-143.
- [4] Vincent, J.H. (1987) Recent advances in aspiration theory for thin-walled and blunt aerosol sampling probes. *J. Aerosol Sci.*, 18, 487-498.
- [5] Marple, V.A. (1970) A fundamental study of inertial impactors. Ph.D. Thesis, Un. Of Minnesota, Minneapolis, MN.

RADON ET THERMALISME

R. Améon

Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire

DPRE/SERGD/LEIRPA, BP 6, 92265 Fontenay-aux-Roses cedex, France

Depuis ses origines, l'homme est exposé à des rayonnements ionisants, issus de diverses sources naturelles. Le radon, gaz naturel radioactif, intervient pour une part importante de cette exposition. La directive 96/29/Euratom a identifié le thermalisme comme étant une activité professionnelle pendant laquelle les travailleurs sont exposés à des sources naturelles de rayonnement tels que les produits de filiation du radon ou du thoron (cas du naturel renforcé). Des évaluations dosimétriques étrangères réalisées sur les différentes catégories de personnels des stations thermales ainsi que sur les curistes montrent que l'exposition des travailleurs peut atteindre plusieurs dizaines de millisievert par an. Les rares études françaises traitant de ce sujet montrent des niveaux d'exposition similaires. Afin d'anticiper la transposition de cette directive dans la législation française, la nouvelle circulaire de la Direction Générale de la Santé¹, définissant la politique de gestion du risque lié au radon dans les établissements recevant du public, incite les établissements thermaux à réaliser des mesures de l'activité volumique de radon. Cette étude bibliographique qui s'inscrit dans le cadre de l'évolution des recommandations en termes de radioprotection permet de réaliser la synthèse des données disponibles dans la littérature.

1. Thermalisme

La crénothérapie, appelée par tradition le thermalisme, est une pratique médicale qui propose des soins basés sur l'utilisation de l'eau thermale, des vapeurs, des boues et des gaz thermaux comme le gaz carbonique mais également le radon. En France, au début du siècle il n'était pas rare de voir afficher sur les publicités des établissements thermaux, le caractère radioactif des eaux minérales. Officiellement, le nombre de stations possédant des sources thermales radioactives n'est pas connu et aucune ne fait état de la pratique d'une thérapie radon. En revanche, dans d'autres pays d'Europe, non seulement l'utilisation du radon comme agent principal thérapeutique perdure mais il est clairement plébiscité. La thérapie radon est pratiquée de manière spécifique et officielle dans un grand nombre d'établissements thermaux, comme Jachymov en république tchèque, ou Bad Steben, Bad Münster am Stein, Bad Kreuznach, Sibyllenbad et Bad Brambach en Allemagne, ou bien encore Misasa, la 'Radium Spa' du Japon (*Morinaga et al., 1984*). Des thérapies inhalatoires ou cutanées sont pratiquées dans de nombreuses grottes thermales ou galeries souterraines, qui possèdent des atmosphères fortement chargées en radon. L'ancienne union soviétique est vraisemblablement le pays où la "thérapie alpha", terme officiel de la thérapie radon, a été la plus étudiée et la plus appliquée (un million de 'cures radon' par an dans les années 70) (*Tauchert, 1972*) (*Sansoni, 1994*). Tous ces établissements spécialisés dans la thérapie radon, sont contrôlés par les autorités des pays concernés car la reconnaissance officielle d'une source thermale, comme source impose une concentration minimale en radionucléide dans cette eau ('3,7 Bq.kg⁻¹ de radium 226 et 370 Bq.kg⁻¹ de radon 222' en Autriche (*Steinhäusler, 1988*) ; 185 Bq.l⁻¹ de radon dans l'eau en union soviétique ; 670 Bq.l⁻¹ de radon dans l'eau et 37 000 Bq.m⁻³ dans l'air en Allemagne (*Schmitz et Fritsche, 1993*)). Le développement important de la thérapie radon dans certains pays eurasiens, est notamment dû au grand nombre de pathologies traitées par l'utilisation du radon, sous différentes formes, dont les principales sont les maladies rhumatismales et les pathologies respiratoires (*Soto et Gómez, 1998*).

2. Eau minérale et radioactivité

Les eaux minérales peuvent être d'origine météorique (infiltration d'eaux de pluie dans les terrains perméables), juvénile (l'eau provient de l'écorce terrestre) ou fossile (cas des eaux liées aux gisements de sel et de pétrole). La radioactivité des eaux minérales est en relation directe avec la nature géologique des roches traversées par ces eaux tout au long de leur périple jusqu'à la surface. Les sources les plus radioactives émergent généralement des terrains anciens (*Remy et Lemaitre, 1990*). Cependant, les eaux profondes ne sont pas les seules, les eaux superficielles ayant pour réservoir des roches anciennes affleurantes peuvent aussi présenter une radioactivité importante. Cette radioactivité est une conséquence de la présence d'éléments radioactifs dissous des familles

¹ n°2001/303 du 2 juillet 2001

de l'uranium, du thorium et de l'actinium existant dans la croûte terrestre. Les teneurs en radium 226 dans les eaux minérales varient de quelques millibecquerels à quelques becquerels par litre d'eau. L'uranium naturel est présent à hauteur du microgramme par litre d'eau. La teneur en thorium est généralement inférieure à $10\mu\text{g.l}^{-1}$ du fait de la faible solubilité de cet élément dans les conditions géochimiques habituelles des gisements d'eau. Comparée à certaines eaux d'Europe centrale, la majorité des eaux françaises est peu radioactive.

3. Le radon dans les stations thermales

Certaines régions, dans lesquelles se trouve un grand nombre de sources thermales riches en radon (Bad Gastein, Misasa) sont identifiées comme "zones à haut niveau de radioactivité naturelle" (High Levels of Natural Radiation Areas), car la présence de ces sources engendre une augmentation de la radioactivité atmosphérique.

3.1 Le radon dans l'eau thermale

Les concentrations de radon dans l'eau thermale sont très variables et comprises entre quelques centaines et plusieurs dizaines de milliers de becquerels par litre (cf. tableau 1). Les teneurs les plus élevées sont généralement rencontrées dans les pays où les eaux sont issues d'anciennes mines d'uranium (Sansoni, 1994). Le radon est d'autant plus soluble que la température de l'eau est basse, les eaux thermales contiennent donc moins de radon que les eaux froides provenant de formations géologiques comparables.

Pays	Localité	Source	Radon 222 dans l'eau (Bq.l ⁻¹)	Référence
France	Bagnères-de-Luchon	Lepape 1	1 369	(Grandpierre et al., 1962)
	Evaux-les-bains	César	269	(Améon et al., 2000)
	St-Amand-les-Eaux	Vauban	1 406	(Fontan et al., 1980)
Allemagne	Bad Münster	Maximilianquelle	250	(Sansoni, 1994)
	Bad Steben	Tempelquelle	2 190	(Sansoni, 1997)
	Bad Brambach	Obere Grenzquelle	3 737	
Autriche	Bad Hofgastein	Elisabethquelle	1 850	(Deetjen, 1997)
Italie	Abano	Ermitage	481	(Biancotto et al., 1991)
URSS / Oural	Uwildy		66 600	(Taichert, 1972)
République tchèque	Jachymov	Step spring	68 000	(Spurny, 1980)

Tableau 1 : exemples d'activité volumique de radon dans les eaux de sources thermales

Un déséquilibre entre la teneur en radium 226 et celle en radon 222 est généralement constaté. Il est dû principalement à une différence de solubilité, provoquant ainsi un excès de radon pouvant être de l'ordre de 10^4 (Bad Gastein, Bagnères-de-Luchon, etc.).

Le transfert de l'eau thermale des griffons aux différents postes d'utilisation dans une station peut provoquer par dégazage une diminution de la teneur en radon initiale. Le stockage plus ou moins prolongé de l'eau thermale dans des réservoirs favorise nettement ce phénomène. Une perte d'activité en radon d'environ 80 % est constatée entre l'émergence et les bains (Fontan et al., 1980)(Améon et al., 2000). Pour limiter ce dégazage et ainsi conserver une teneur en radon la plus élevée possible, certains postes de soins sont alimentés directement par l'eau issue des griffons (buvettes, étuve, etc.).

3.2 Le radon dans les gaz thermaux

Au griffon les gaz thermaux se dégagent spontanément des sources minérales en proportion parfois très importante par rapport à l'eau. Dans les provinces carbo-gazeuses, il peut se dégager jusqu'à quatre fois plus de gaz que de liquide à l'émergence et ceci avec des débits assez considérables ($150\text{ m}^3.\text{h}^{-1}$ à Royat). Associés à ces gaz thermaux, on peut trouver du radon ainsi que du thoron à des teneurs de l'ordre de la dizaine de milliers de becquerels par mètre cube (Degranges et al., 1978).

3.3 Le radon dans l'atmosphère intérieure des stations thermales

L'activité volumique de radon dans l'atmosphère intérieure des stations thermales est tributaire de deux facteurs, l'alimentation en eau thermale et donc en radon et la ventilation des différents locaux. Elle est généralement plus faible dans les établissements récents dotés de ventilation mécanique.

Locaux	Activité volumique de radon (Bq.m ⁻³)	Remarques	Station thermale	Référence
Galeries techniques	> 100 000			Schmitz et Frische, 1993
Halls des bains	4 300 – 7 000	jour – nuit	Rudas	Szerbin, 1996
Aérobains	22 000		Bagnères-de-Luchon	Grandpierre et al., 1962
	1 300 150	sans ventilation avec ventilation	Evaux-les-Bains	Améon et al., 2000
	40 5 000	hors soins pendant les soins	Radenci	Kobal et Renier, 1987
Galeries thermales	166 000		Bad Gastein	Uzunov et al., 1981
Grottes thermales	2 700		Misasa	Morinaga et al., 1984
	20 000	valeur estivale	Hospital	Szerbin, 1996
	14 000	valeur estivale	Bagnères-de-Luchon	Grandpierre et al., 1962
Etuves	7 500		Evaux-les-Bains	Améon et al., 2000
Salles d'inhalation	103 000	dans les masques d'inhalation	Las Caldas	Soto et al., 1995
	128 000		Bad Münster	Sansoni, 1998

Tableau 2 : exemples de concentration de radon dans l'air intérieur des stations thermales

Les atmosphères les plus riches en radon se trouvent dans les galeries techniques qui situées souvent au sous-sol des établissements thermaux sont des endroits mal ventilés et dans les salles liées à l'hydrothérapie du fait du dégazage important du radon dissous dans l'eau pendant les soins (cf. tableau2). Ce dégazage est accéléré par l'insufflation d'air comprimé dans les baignoires (cas des aérobains). L'activité volumique de radon mesurée dans ces salles varie au cours de la journée en fonction de l'utilisation de l'eau thermale (renouvellement continu de l'eau des bains) et de la ventilation des locaux (cf. figure 1). Les galeries et les grottes thermales sont des sites naturels qui possèdent des atmosphères chaudes, humides et fortement chargées en radon utilisées dans le traitement de pathologies rhumatismales (cf. tableau2). Certaines grottes non isolées de l'extérieur montrent des variations saisonnières de la teneur en radon avec des valeurs fortes en été et plus faibles en hiver du fait de contraste thermique entre l'intérieur et l'extérieur de la grotte. Dans les stations thermales, l'étuve, pièce non ventilée, permet de recomposer une ambiance typique de ces galeries thermales où la concentration en radon est fonction de la teneur en radon de l'eau minérale issue des griffons. Dans les salles d'inhalation, le curiste respire par un masque un mélange d'air, de radon et parfois d'aérosols de tailles diverses.

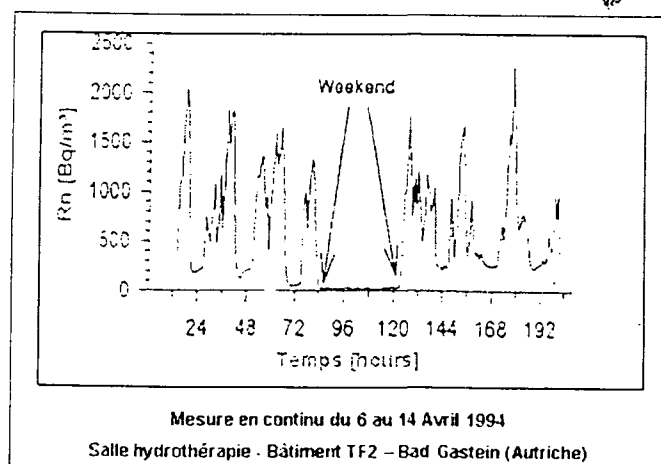


Figure 1 : exemple de variation de la concentration de radon dans une station thermale (Lettner et al., 1996)

Les hôtels thermaux sont souvent alimentés par l'eau thermale de la station, l'utilisation des baignoires dans les chambres, contribue donc à enrichir l'ambiance en gaz radon. L'assimilation des hôtels à l'habitat classique permet d'estimer que 10 Bq.l⁻¹ de radon 222 dans l'eau contribuent à générer 1 Bq.m⁻³ de radon dans l'air intérieur (Nazaroff et al., 1987).

3.4 Descendants à vie courte du radon dans l'air des établissements thermaux

Il est désormais établi que la principale cause d'exposition n'est pas due au gaz radon mais à ses descendants à vie courte, atomes solides radioactifs qui une fois inhalés se déposent dans les voies respiratoires et délivrent leur énergie alpha aux tissus. Bien que la quantification de ces dérivés du radon soit une phase importante dans le processus de l'évaluation des doses reçues, peu de travaux sur la mesure des descendants dans les établissements thermaux sont disponibles dans la littérature car la mise en œuvre des techniques de mesure classiques des descendants du radon (prélèvement d'aérosols sur filtre) est difficile dans les atmosphères thermales très humides.

Tout comme pour le radon gaz, les variations journalières de la concentration des descendants dans l'atmosphère d'une station thermale sont importantes et sont dépendantes de l'activité thermique qui provoque un enrichissement en descendants et de la ventilation des locaux (cf. figure 2).

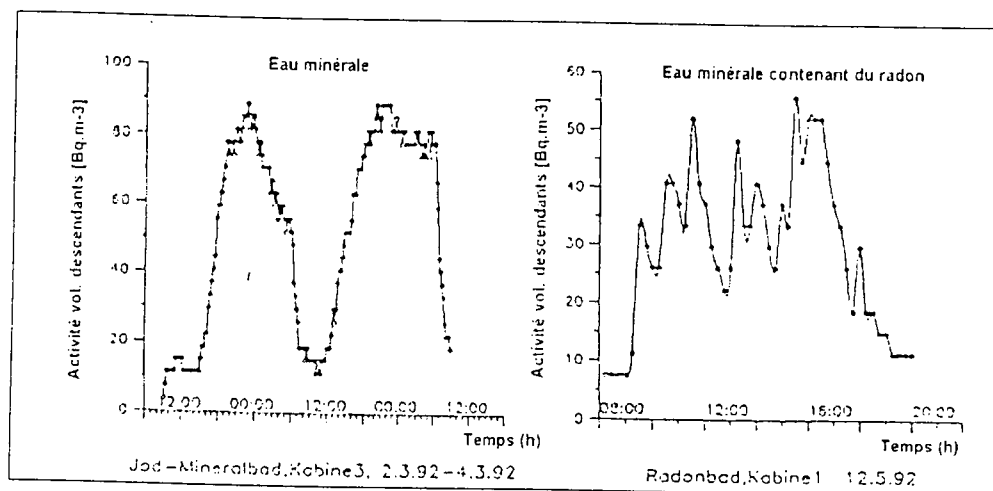


Figure 2 : évolution temporelle de la concentration des descendants à vie courte du radon dans deux stations thermales allemandes (Schmitz et Fritsche, 1993)

Le facteur d'équilibre, F, qui traduit le déséquilibre radioactif entre le radon gaz et ses descendants à vie courte varie fortement selon le type d'activité thermique pratiquée dans les salles concernées (cf. tableau 3). Il semble être plus élevé dans les galeries thermales que dans les salles d'hydrothérapie dans lesquelles la ventilation mécanique élimine les descendants. Une évolution saisonnière du facteur d'équilibre corrélée avec la variation saisonnière de la concentration de radon dans les grottes a été mise en évidence avec des valeurs plus élevées l'été que l'hiver (Vaupotič et al., 2001). F tend à diminuer lorsque le taux d'humidité relative augmente (Reichelt, 1996) et il atteint parfois son maximum lorsque la teneur en radon est la plus faible, la concentration en descendants montrant une évolution inverse de celle du radon gaz (Lettner et al., 1996).

Station thermale	Lieu de mesure	Facteur d'équilibre	Référence
Bad Gastein (Autriche)	Galerie Thermale	0,6	Lettner et al., 1996
	Salles hydrothérapie	$0,21 \leq F \leq 0,45$	
Bad Münster (Allemagne)	Cloche inhalation	0,001	Sansoni, 1998
	Salles hydrothérapie	0,33	
Hongrie	Grottes naturelles et tunnel artificiel	0,5	Szerbin, 1996
Postojna (Slovénie)	Grotte naturelle	$0,42 \leq F \leq 0,69$ en hiver $0,33 \leq F \leq 0,86$ en été	Vaupotič et al., 2001
Bagnères-de-Luchon (France)	Galerie 'Bordeu'	~ 1	Grandpierre et al., 1962
	Poste de humage	0,3	

Tableau 3 : exemple de valeurs de facteur d'équilibre mesurées dans différentes stations thermales

Le facteur d'équilibre mesuré dans les cloches à inhalation de Bad Münster est très faible car la filtration des descendants est réalisée en amont du système. Cette filtration n'est pas toujours réalisée (en Italie et en Autriche) mais de par les dépôts des aérosols dans les canalisations des postes d'inhalation ou de humage, F est généralement inférieur à 0,5. *Soto et Gómez*, (1999) ont montré un facteur d'équilibre variable selon le descendant pris en compte (0,8 pour le ^{218}Po et entre 0,2 et 0,6 pour les autres).

4. Aspect dosimétrique

La dose est surtout due à l'inhalation des descendants à vie courte du radon et non pas à l'ingestion d'eau radioactive. Les variations temporelles des teneurs en radon et en descendants montrent la nécessité d'utiliser des dosimètres individuels pour une estimation plus précise de la dose reçue à chaque poste de travail au lieu des mesures intégrées, qui sous-estiment de 20 à 50% la teneur en radon dans l'air pendant la période d'application des soins d'une station thermale (*Améon et al.*, 2000). Il est montré que le personnel des établissements thermaux (médecins, masseur, agents thermaux, techniciens de surface, etc.) peut être exposés très significativement à quelques dizaines de millisievert par an (cf. tableau4).

Etablissement thermal	Lieux d'exposition	Catégorie de personnels	Dose efficace (mSv.an ⁻¹)	Référence
Bad Gastein (Autriche)	(avant 1980)	Intendants aux bains, docteurs et travailleurs	30 – 55	Steinhäusler, 1988
	Galerie thermale	Docteurs	7 – 132	Uzunov et al., 1981
Momin Prohod (Bulgarie)	Bains thermaux	Intendants	25 – 66	
Ischia (Italie)	Station thermale	Intendants aux bains, docteurs et travailleurs	1 - 120	Steinhäusler, 1988
Las Caldas de Besaya	Inhalation	Curiste	4	Soto et Gómez, 1998
Hospital Cave	Inhalation	curiste	1,5	Szerbin, 1996

Tableau 4 : exemple de valeurs de dose efficace calculées pour le personnel et les curistes de différentes stations thermales

Les doses élevées ne sont pas l'apanage des stations thermales qui présentent des eaux riches en radon, la ventilation étant également un facteur important (*Soto et Gómez*, 1999). Au niveau de l'évaluation des doses reçues par les patients lors de leur cure, plusieurs paramètres sont à prendre en compte comme la présence ou non de descendants à vie courte du radon lors des traitements par inhalation, la durée des traitements et le temps de présence à chaque poste thérapeutique. Généralement, les cures sont de l'ordre de trois semaines (durée nécessaire à l'efficacité thérapeutique des cures en France) limitant ainsi le temps d'exposition (cf. tableau4).

5. Conclusion

Cette étude bibliographique montre que l'activité volumique de radon mesurée dans les eaux thermales peuvent atteindre plusieurs milliers de becquerels par litre. L'utilisation de l'eau thermale en crénothérapie engendre par dégazage de très fortes concentrations de radon dans l'atmosphère intérieure des salles de soins des établissements thermaux. Dans des conditions de ventilation défavorables voire inexistantes, il n'est pas rare de mesurer des teneurs en radon de l'ordre de plusieurs milliers de becquerels par mètre cube d'air. Ces fortes valeurs de concentration de radon, accompagné ou non de ses descendants à vie courte, peuvent conduire, selon des études étrangères, à une exposition des travailleurs de l'ordre de la dizaine à quelques dizaines de millisievert par an. L'exposition des curistes au radon est généralement inférieure à 2 mSv.an⁻¹ mais peut parfois s'avérer non négligeable du point de vue de la radioprotection. Les rares études françaises traitant de ce sujet montrent des niveaux d'expositions des travailleurs au radon du même ordre de grandeur que ceux obtenus à l'étranger, démontrant ainsi la nécessité d'étudier plus avant la situation des établissements thermaux au regard du radon.

Bibliographie

- Améon, R., Beneito, A. et Thoreux, A. *Etude de l'activité volumique en radon dans une station thermale française. Cas d'Evau-les-bains. Rapport DPRE/SERGD/00-51. IPSN, 2000.*
- Biancotto, R., Lafisca, S., Lucchese, R., Martinelli, C., Predicatori, F., Rosa, M., Tacconi, A. and Trotti, F. *Radon concentration in mineral and thermal waters of veneto : an estimate of ingestion and inhalation doses. Radiation Protection Dosimetry, 36, pp129-135, 1991.*
- Deetjen, P. *Scientific Principles of the Health Treatments in Bad Gastein and Bad Hofgastein. Sem. Reports Salzburg – Austria ISSN 0256-4173, 1997.*
- Degranges, P. et collaborateurs. *Etude chimique et isotopique de l'eau minérale et des gaz thermaux de Royat (P.-de-D.). Rapport BRGM, code SGN064 MCE, 1978.*
- Fontan, M., Caridroit, M., Erb, F., Tauziède-castel, C. *Quelques études sur l'action des eaux, boues et gaz thermaux radioactifs de Saint-Amand-les-eaux. Journal Français d'Hydrologie, 11, n°31, pp55-62, 1980.*
- Grandpierre, R., Pellerin, P., Arnaud, Y., Blanquet, P., Moroni, J. *La radioactivité des eaux et gaz de Bagnères-de-Luchon. Ann. Institut Hydrologie Climatologie, 33, pp22-39, 1962.*
- Kobal, I., Renier, A. *Radioactivity of the atomic spa at Podčetrtek, slovenia, Yugoslavia. Health Physics, 53, no 3, pp307-310, 1987.*
- Lettner, H., Hubmer, A.K. Rolle, R., Steinhäusler, F. *Occupational exposure to radon in treatment facilities of the radon-spa Badgastein, Austria. Environment International, 22, suppl. 1, ppS399-S407, 1996.*
- Morinaga, H., Mifume, M., Furuno, K., *Radioactivity of water and air in Misasa spa, Japan. Radiation Protection Dosimetry, 7, no 1-4, pp295-297, 1984.*
- Nazaroff, W.W., Doyle, S.M., Nero, A.V., Sextro, R.G. *Potable water as a source of airborne 222Rn in U.S. dwellings. A review and assessment. Health Physics, 52, pp281-295, 1987.*
- Reichelt, A. *Radon and its decay products in water purification plants. Environment International, 22, S1, ppS761-S768, 1996.*
- Remy, M.L. et Lemaitre, N. *Eaux minérales et radioactivité. Hydrogéologie, no 4, pp267-278, 1990.*
- Sansoni, B., *Selected Topics in Radon Balneology, Europe 1993/94 : Springs, Spas, Therapy. Radiation Protection, 47. Jahrestagung der Japanischen Gesellschaft für Balneologie, pp30-31, 1994.*
- Sansoni, B. *Planungen Radonheilbad Naturpark Fichtelgebirge. Internat. Environ. Consult. Newsletter, 3, pp40-41, 1997.*
- Schmitz, J. and Fritsche, R. *Radon exposure at Workplaces. Final Report of a survey in German Balneotherapy. Austrian-Italian-Hungarian Radiation Protection Symposium. Radiation in neighbouring countries in Central Europe. pp345-348, 1993.*
- Soto, J., Gómez, J. *Radon Balneology in Spain. Internat. Environ. Consult. Newsletter, 4, 1/98, pp48-55, 1998.*
- Soto, J., Fernández, P.L., Quindós, L.S., Gómez-Arozamena, J. *Radioactivity in Spanish spas. The Science of the Total Environment 162, pp187-192, 1995.*
- Soto, J., Gómez, J. *Occupational Doses from Radon in Spanish Spas. Health Physics, 76, 4, pp398-401, 1999.*
- Spurný, Z. *A New Approach to the Dosage in Radon Water Spas. Jaderná energie, 26, pp140-142, 1980.*
- Steinhäusler, F. *Radon spas : Source term, doses and risk assessment. Radiation Protection Dosimetry, 24, No 1/4, pp257-259, 1988.*
- Szerbin, P. *Natural radioactivity of certain spas and caves in Hungary. Environment International, 22, suppl. 1, pp S389-398, 1996.*
- Tauchert, D., *Aspekte der Radon-Therapie in der sowjetunion Bericht über einen Studienaufenthalt in der UdSSR. Zeitschrift für Physiotherapie, 24, pp73-79, 1972.*
- Uzunov, I., Steinhäusler, F., Pohl, E. *Carcinogenic risk of exposure to radon daughters associated with radon spas. Health Physics, 41, no 6, pp807-813, 1981.*
- Vaupotič, J., Csige, I., Radolič, V., Hunyadi, I., Planinič, J. and Kobal, I. *Methodology of radon monitoring and dose estimates in Postojna cave, Slovenia. Health Physics, 80, 2, pp142-147, 2001.*

ETUDE DE LA BIOADHESION D'UN AEROSOL D'*ASPERGILLUS NIGER* SUR TROIS SUPPORTS INERTES

M. Boissier^{1,2} ; E. Robine¹ ; I. Lacaze¹ ; S. Moularat¹ ; A. Renoux² ; R. Moreau²

1. Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, 84 avenue Jean Jaurès, Champs-sur-Marne, BP 02,
77421 Marne-la-Vallée Cedex 2, m.boissier@cstb.fr

2. Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations; Université Paris XII ;
61, avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil Cedex

RESUME

L'objectif de ce travail est d'étudier la bioadhésion d'*Aspergillus niger* sur 3 surfaces inertes aux propriétés physico-chimiques différentes.

Cette recherche a nécessité l'élaboration d'un montage expérimental destiné à simuler la contamination de supports par un aérosol fongique. La caractérisation de cet outil selon différents facteurs physiques et biologique a été réalisée.

Les premiers essais d'adhésion ont été effectués avec des spores d'*Aspergillus niger* et ont permis de mettre en évidence une adhésion préférentielle de ces bioaérosols sur le support le plus hydrophobe (PTFE).

Mots-clé : Bioadhésion, aérosol, *Aspergillus niger*, PTFE, PVC, Verre.

I. INTRODUCTION

Omniprésents dans notre environnement, les micro-organismes (virus, bactéries, champignons...) peuvent avoir un rôle non négligeable sur la santé des occupants [Gravesen, 1979 ; Flannigan & Miller, 1994 ; Nolard, 1997 ; Yang & Johanning, 1997].

Dans les environnements intérieurs, les matériaux de construction et de décoration sont des supports potentiels pour la croissance des micromycètes [Denizel *et al.*, 1974 ; Hunter *et al.*, 1988]. La colonisation de ces substrats se produit si les moisissures franchissent deux étapes : la fixation au support (bioadhésion) puis la survie selon les facteurs biotiques et abiotiques du milieu.

Le Centre Scientifique et Technique du Bâtiment a engagé dans ce contexte une large réflexion sur les aspects « moisissures et habitat », dont une étude sur le rôle potentiel des matériaux de construction comme support et réservoir de prolifération fongique. La démarche adoptée repose en partie sur la contamination aérienne des produits de construction par un aérosol contrôlé de moisissures et par l'étude des différentes composantes et interactions du système moisissures / matériaux / environnement.

II. MATERIELS ET METHODES

A. Souches fongiques

Dans le cadre de cette étude des souches d'*Aspergillus niger* (IHEM 05077), de *Cladosporium sphaerospermum* (IHEM 03169) et de *Penicillium brevicompactum* (IHEM 04891) (IHEM : Institut de Santé Publique de Bruxelles – Section Mycologie) ont été utilisées. Ces moisissures sont reconnues responsables de problèmes de santé et fréquemment isolées dans les environnements intérieurs, notamment dans les poussières (Mallea, 1974 ; Beguin & Nolard, 1996).

Les souches sont conservées dans de l'eau distillée à 4°C. Avant essais, les souches sont mises en culture sur un milieu Avoine (CELNAT)-Agar (DIFCO), incubées à l'obscurité pendant 7 jours (25°C). Le degré d'hydrophobicité de ces souches a été évalué par la méthode des angles de contact entre la surface des cultures fongiques et l'eau. Les valeurs des angles mesurés sont reportées dans le Tableau 1. Ces angles étant supérieur à 90°, les trois espèces fongiques peuvent être considérées hydrophobes.

Souches	Moyenne des angles (°)
<i>Aspergillus niger</i>	132 ± 5
<i>Cladosporium sphaerospermum</i>	139 ± 13
<i>Penicillium brevicompactum</i>	137 ± 4

Tableau 1: Mesure des angles de contact avec l'eau des 3 souches fongiques (Moularat, 2001)

B. Matériaux

Trois supports ont été utilisés pour l'étude de l'adhésion des spores sur les surfaces :

- polytétrafluoroéthylène (PTFE) (Goodfellow),
- polychlorure de vinyle (PVC) (Goodfellow),
- et verre (lame de microscope Menzel Superfrost Objektträger).

Les éprouvettes d'essai sont des carrés de 1,5 cm de côté, nettoyées à l'éthanol puis fixées sur des lames en verre.

Les surfaces sont lisses de manière à s'affranchir de l'effet potentiel de leur topographie sur l'adhésion.

Support	Moyenne des angles (en degrés)	ΔG hydratation
Verre	27,9 ± 1,5	-134,9 ± 4,0
PVC	79,9 ± 1,5	-99,8 ± 4,0
PTFE	112,0 ± 2,9	-47,8 ± 4,0

Tableau 2: Mesure des angles de contact avec l'eau (Moularat, 2001)

Les valeurs du Tableau 2 permettent d'ordonner les matériaux selon leur degré d'hydrophobicité. Le support le plus hydrophobe est le PTFE, suivi du PVC, et enfin le verre considéré comme hydrophile, le caractère hydrophile d'une surface en verre est admis si $|\Delta G_{\text{hyd}}| > 113 \text{ mJ/m}^2$.

D. Montage expérimental

1. Descriptif

Ce montage est composé de deux parties :

- une chaîne de production de l'aérosol fongique constitué d'un générateur rotatif et d'un système de dilution/désagrégation spécifiquement développé pour cette étude (Boissier *et al.*, 2000).
- un bloc d'aérobiocontamination.

La concentration de l'aérosol biologique est évaluée à l'aide d'un compteur aérodynamique de particules (APS 3320-ITS). Cet appareil prélève au niveau d'une sphère d'homogénéisation.

Les surfaces à contaminer sont placées dans un impacteur (Andersen à 1 étage).

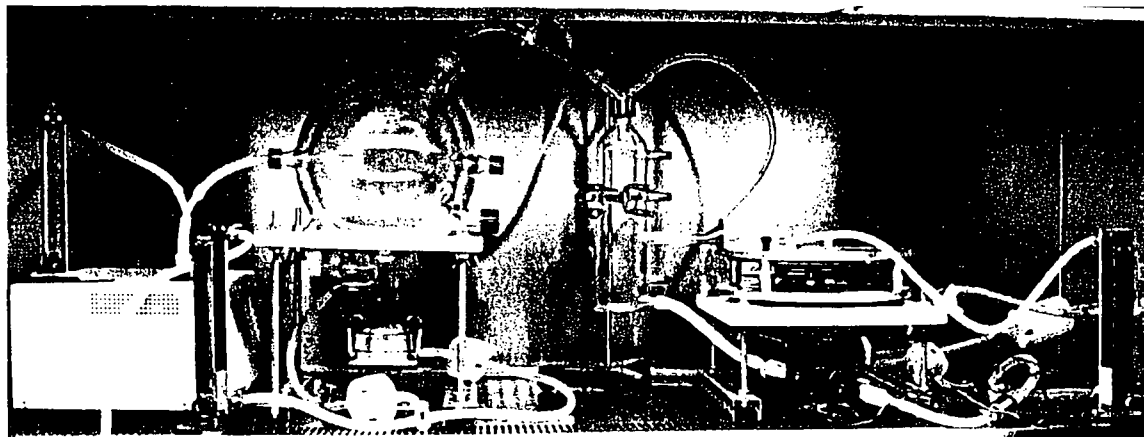


Figure 1: Photographie du montage d'aérocontamination

2. Procédures d'aérocontamination

Deux procédures d'aérobiocontamination sont utilisées : la génération en continu ou la contamination séquencée. Le premier mode utilise un aérosol biologique stable et permet d'obtenir une concentration élevée de particules sur le support. L'aérobiocontamination séquencée, basée sur la décroissance de la concentration au cours du temps après arrêt du générateur, est utilisée pour obtenir une quantité faible et précise de spores sur le support.

3. Evaluation de l'adhésion

L'évaluation de l'adhésion des conidies sur les matériaux est réalisée par observation directe et comptage des conidies adhérentes au support. Elle utilise un système informatique d'analyse d'images (Colonia - Microvision) couplé à un microscopique à fond clair (Zeiss ; objectif X 40). Le comptage est semi-automatique après étalonnage du système.

III. RESULTATS ET DISCUSSION

A. Caractérisation de l'outil expérimental

1. Distribution granulométrique de l'aérosol biologique produit

Des essais ont été réalisés avec une culture pure d'*Aspergillus niger* de 7 jours pour évaluer la distribution granulométrique de l'aérosol produit à l'aide du montage expérimental. Cette distribution est évaluée à l'aide du compteur aérodynamique. Le profil granulométrique obtenu est présenté sur la Figure 2.

La plage granulométrique de l'aérosol généré se situe entre 2.7 et 6 μm . Le générateur d'aérosol rotatif produit un bioaérosol non aggloméré, de diamètre aérodynamique égal à 3.31 μm .

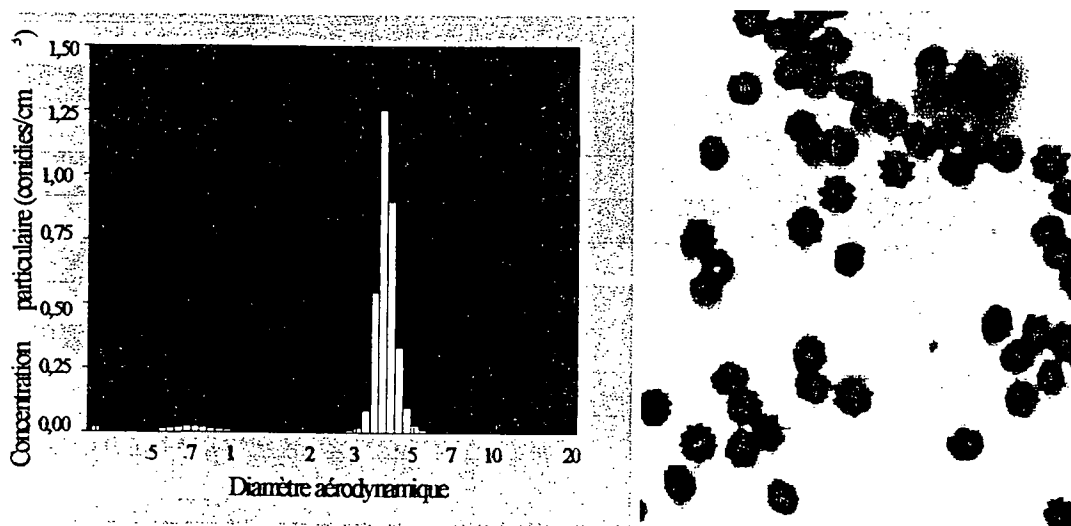


Figure 2 : Profil granulométrique de l'aérosol d'*Aspergillus niger* et photographie de conidies d'*Aspergillus niger* réalisées au microscope optique (x40)

Espèces fongiques	d_{ae} (μm)	σ_g
<i>Aspergillus niger</i>	3.31	1.35
<i>Cladosporium sphaerospermum</i>	2.54	1.30
<i>Penicillium brevicompactum</i>	2.20	1.25

Tableau 3 : Diamètre aérodynamique et écart type géométrique des spores fongiques aérosolisées

L'aérosol généré est quasi-monodispersé pour les trois souches. Le diamètre aérodynamique de *Penicillium brevicompactum* est en accord avec celui publié par Reponen *et al.*, 1996.

2. Effet de l'âge de la culture

L'impact de la durée d'incubation des moisissures sur leur propension à être aérosolisées a été évalué. Des cultures d'*Aspergillus niger* de 5, 7, 14, 21 et 28 jours sont successivement utilisées. La

concentration du bioaérosol produit est mesurée pour chaque culture. Nous avons représenté dans la Figure 3 les différents profils de dispersion obtenus.

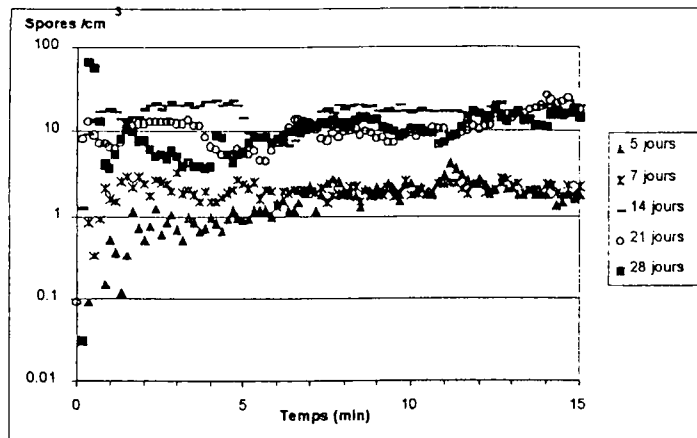


Figure 3: Cinétique de dispersion des spores d'*Aspergillus niger* selon l'âge de la culture

Entre 5 et 15 minutes de génération, deux niveaux de concentration sont mis en évidence : la concentration moyenne de l'aérosol produit à partir des cultures âgées (14, 21 et 28 jours) est 10 fois plus importante que pour les cultures jeunes (5 et 7 jours). Les structures mycéliennes âgées seraient plus aisément dispersées. Cette différence est probablement liée à la dégénérescence des structures fongiques au cours du temps, phénomène probablement rencontré dans les environnements intérieurs à la surface des produits de construction contaminés.

3. Effet de l'état d'hydratation de la culture

L'influence de l'état d'hydratation des cultures sur la libération des spores a été évaluée. Deux cultures d'*Aspergillus niger* de 7 jours ont été utilisées, l'une étant maintenue pendant 24 heures à proximité d'un gel de silice (déshydratation de la culture), l'autre bénéficiant d'une ambiance saturée en eau. Les résultats sont présentés Figure 4.

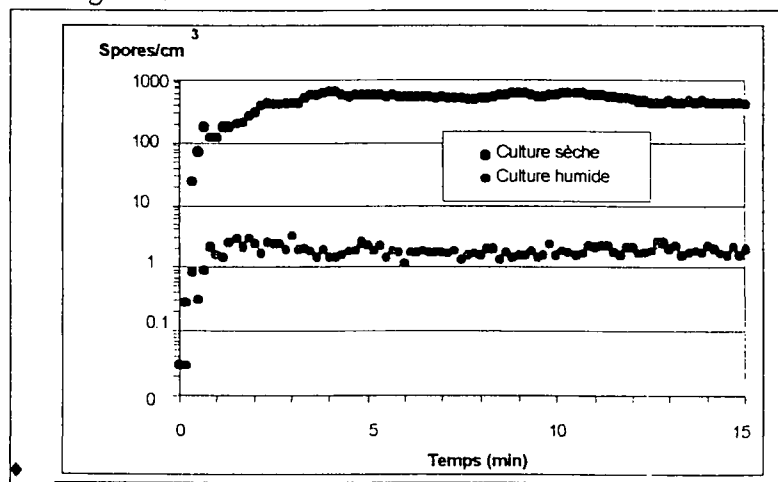


Figure 4: Cinétique de dispersion des spores d'*Aspergillus niger* selon l'état d'hydratation de la culture.

Des concentrations moyennes de 2 et 450 spores/cm³ sont mesurées respectivement pour les cultures humide et sèche. L'état d'hydratation de la culture aurait un effet sur la libération des spores. L'eau est nécessaire à la croissance des moisissures et la déshydratation semble favoriser leur libération.

4. Effet de la vitesse d'air de soufflage

Pour évaluer l'influence de la vitesse de soufflage sur la libération des spores, trois espèces fongiques ont été employées : *Aspergillus niger*, *Penicillium brevicompactum* et *Cladosporium sphaerospermum*. Des cultures sèches âgées de 7 jours et incubées dans les mêmes conditions sont dispersées successivement à l'aide de différents débits d'air de soufflage : 0.5, 1, 1.5, 2, 3, 4 et 5 l/min (de 4.1 à 41.5 m/s en sortie de buse).

Comme attendu, la concentration de spores aéroportées augmente avec la vitesse de l'air de soufflage (Figure 5). La dispersion observée dépend également de la souche fongique considérée, la culture

d'*Aspergillus niger* nécessitant une vitesse d'air moindre que la souche de *Cladosporium sphaerospermum* et de *Penicillium brevicompactum*.

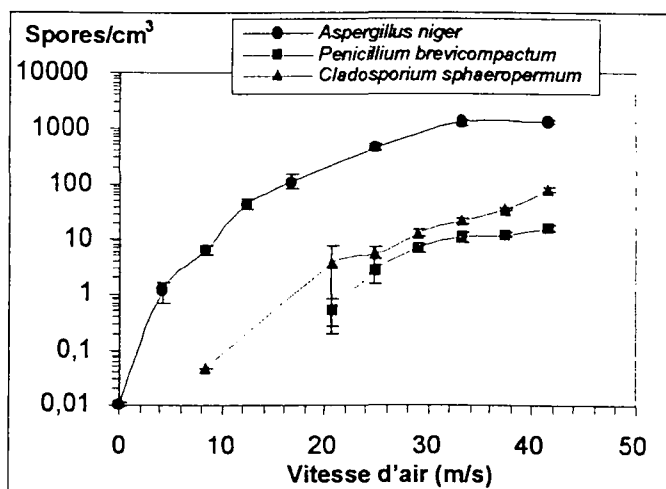


Figure 5 : Cinétique de dispersion des spores d'*Aspergillus niger*, *Penicillium brevicompactum* et *Cladosporium sphaerospermum* selon la vitesse d'air de soufflage (n = 7).

B. Evaluation de l'adhésion des spores fongiques

Ces essais ont été menés avec un aérosol d'*Aspergillus niger* (culture sèche âgée de 7 jours). Les éprouvettes sont contaminées simultanément par l'aérosol biologique. Les mesures sont présentées sous la forme d'histogrammes d'adhésion dans la Figure 6.

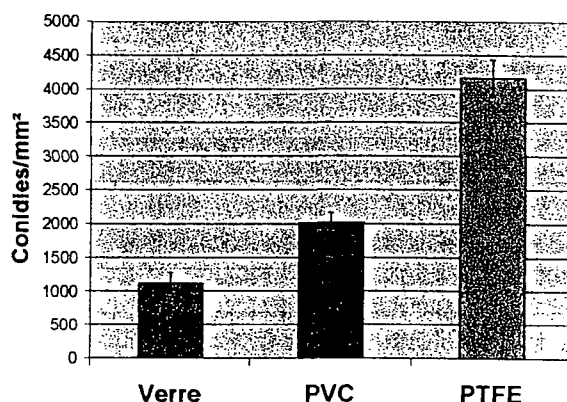


Figure 6 : Nombre de spores issues de l'aérosol d'*Aspergillus niger* fixées par mm² sur différents supports : Verre, PVC et PTFE.

Nous observons des différences significatives d'adhésion entre les surfaces testées : l'aérosol biologique se fixe préférentiellement sur le PTFE puis le PVC et enfin le verre. La différence du niveau d'adhésion entre ces trois supports est approximativement d'un facteur deux (Figure 6).

La fixation des microorganismes sur une surface est un phénomène purement physique qui dépend des différentes énergies interfaciales mises en jeu entre la particule biologique et son support. Dans nos expérimentations, nous avons constaté que le degré d'adhésion apparaissait corrélé avec l'hydrophobicité des matériaux : les spores, fortement hydrophobes, se fixant préférentiellement sur les produits hydrophobes (Figure 7).

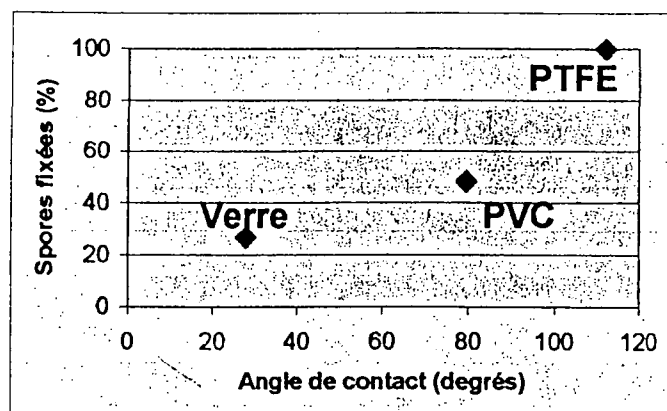


Figure 7 : Pourcentage de spores d'*Aspergillus niger* adhérentes selon l'angle de contact à l'eau qui traduit le niveau d'hydrophobicité des surfaces

IV. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Ce travail avait pour objectif l'étude de la bioadhésion d'un aérosol. Cette recherche a nécessité le développement d'un outil expérimental destiné à simuler la contamination des matériaux par voie aérienne. Ce montage a été étudié selon des critères physiques (granulométrie, concentration de l'aérosol, vitesse d'air de soufflage sur la culture) et biologiques (espèces utilisées, âge et état d'hydratation de la culture). Une procédure d'aérocontamination a été élaborée, elle permet la production d'un bioaérosol stable reproductible et contrôlable. Cet outil a été finalement utilisé pour évaluer l'adhésion d'un aérosol d'*Aspergillus niger*.

Trois surfaces lisses aux hydrophobicités différentes ont été testées. L'aérosol biologique se fixe préférentiellement sur le PTFE, puis le PVC et enfin le verre. Les propriétés physico-chimiques jouent un rôle clef dans le processus d'adhésion, ainsi nous avons observé que plus le matériau était hydrophobe et plus les spores (hydrophobes) se fixaient au support. L'étude de nombreux autres matériaux devrait permettre d'affiner cette relation. La topographie des surfaces peut également avoir un impact sur la bioadhésion. Cet aspect fera l'objet d'une prochaine expérimentation.

Ce travail s'inscrit dans une étude globale de la colonisation des environnements intérieurs par les champignons microscopiques. Il intègre, outre la bioadhésion, l'étude de la croissance fongique selon les propriétés de la surface contaminée et les conditions environnementales. Dans le cadre d'une maîtrise hygiénique des environnements intérieurs, cette recherche devrait permettre à terme de faire un choix raisonné de matériaux moins "réceptifs" aux micro-organismes. Ce choix pourrait s'appuyer sur une prise en compte initiale de leurs propriétés physico-chimiques, et de leur maintien, en fonction des opérations de nettoyage et de désinfection qui leur sont appliqués.

V. REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Beguin, H. and N. Nolard. (1996). Prevalence of fungi in carpeted floor environment: analysis of dust samples from living-rooms, bedrooms, offices and school classrooms. *Aerobiologia*, 12, pp. 113-120.
- Boissier, M., E. Robine, R. Moreau, and A. Renoux. (2000). Mise au point d'un montage destiné à la contamination de matériaux de construction par un aérosol fongique: Premiers résultats. ASFERA 2000, France, pp. 10-16.
- Denizel, T., B. Jarvis, et al. (1974). "A catalogue of potentially biodeteriogenic fungi held in the culture collection of the CBS (Centraalbureau voor Schimmelcultures), CMI (Commonwealth Mycological Institute) and QM (U.S. Army Natick Laboratories)." *Int. Biodeter Bull.* 10, N°1: 3-23.
- Flannigan, B. and J.D. Miller. (1994). Health implications of fungi in indoor environments – an overview. In: *Health Implications of Fungi in Indoor Environments Air Quality Monographs Vol. 2*. R.A. Samson et al., eds., Elsevier, Amsterdam, pp. 3-28.
- Gravesen, S. (1979). Fungi as a cause of allergic disease. *Allergy*, 34, pp. 135-154.
- Hunter, C. A., C. Grant, et al. (1988). "Mould in Buildings : the Air Spora of Domestic Dwellings." *International Biodeterioration* 24: 81-101.
- Mallea, M. (1974). "Etude des moisissures contenues dans les poussières de matelas-Comparaison avec les moisissures des habitations." *Rev. Franç. Allergol.* 14, N°1: 34-36.
- Moularat S. (2001). « Etude de la bioadhésion des aérosols fongiques sur les matériaux de construction : approche physico-chimique ». Stage de DEA Géomatériaux.

- Nolard, N. (1997).** Moulds and respiratory allergies. Expressions on allergen specific immunotherapy. No. 5, pp. 7-9.
- Reponen T., Willeke K., et al. (1996).** "Effect of relative humidity on the aerodynamic diameter and respiratory deposition of fungal spores." Atmospheric environment **30**; N°23: 3967-74.
- Samson, R.A. and E.S Hoekstra. (1994).** Common fungi occurring in indoor environments In: Health Implications of Fungi in Indoor Environments Air Quality Monographs vol. 2. R.A. Samson *et al.*, eds., Elsevier, Amsterdam, pp. 541-546.
- Yang, C. S. and E. Johanning (1997).** Airborne fungi and mycotoxins. Manual of environmental microbiology. C. J. Hurst. Washington, ASM Press: chapitre 70 - p. 656.

Diffusion de la lumière par un ellipsoïde :

Implications en réfractométrie d'arc-en-ciel

Y. Han♥, S.Z. Wu♥, L. Mees♣, K.F. Ren♣, G. Gouesbet♣, G. Gréhan♣

♥Laboratoire de Radio Physique,
Xidian University,
Xi'an, Chine

♣LESP, UMR 6614/CORIA
CNRS/INSA et Université de Rouen, BP 12
Site du Madrillet,
76 801, Saint Etienne du Rouvray, France

Résumé : Cet article est dédié à la description de la diffusion d'un faisceau laser par une particule ellipsoïdale. Une attention particulière est portée aux modifications des diagrammes de diffusion aux alentours des angles d'arc-en-ciel pour des particules d'une dimension suffisante pour être représentative de sprays d'intérêt pratique.

Abstract : This paper is devoted to the scattering of a laser beam by an ellipsoidal particle. A special attention is devoted to the modifications around the rainbow angle when the size of the droplet is large enough to be representative of real sprays (((200).

Introduction

Dans de nombreux domaines d'étude, naturels ou industriels, la matière est présente sous une forme dispersée. La connaissance des propriétés de cette phase dispersée est souvent critique. Ainsi, à titre d'exemple, la compréhension et la maîtrise de la combustion diphasique ont, ces dernières années, bénéficié du développement de la granulométrie phase Doppler qui permet de mesurer la vitesse et la taille d'une goutte individuelle dans un écoulement. Les mesures par phase Doppler reposent, en général, sur l'hypothèse que la particule diffusante est une sphère parfaite. Cette hypothèse est souvent suffisamment vérifiée par les gouttes liquides pour que les mesures PDA soient devenues un standard dans la caractérisation des sprays.

Cependant la demande d'informations plus précises, plus complètes sur ce type de brouillard, impose le développement de nouvelles techniques pour lesquelles l'exigence de sphéricité est telle que même de faibles écarts relatifs à la sphéricité peuvent interdire l'extraction de l'information recherchée. Citons les mesures basées sur les résonances morphologiques (1) ou les techniques dites d'arc-en-ciel (2).

Dans cet article nous étudierons les modifications des diagrammes de diffusion lorsqu'une particule d'une taille conséquente devant la longueur d'onde évolue de la sphère parfaite à l'ellipsoïde. La section 2 rappelle les bases théoriques et présente une validation des codes de calcul développés. La section 3 présente l'évolution de l'arc-en-ciel du premier ordre lorsqu'une sphère se déforme en ellipsoïde. L'analyse, effectuée dans le domaine spatial, montre la

dominance des "rayons" ayant subi une réflexion interne. La section 4 porte sur l'analyse des diagrammes de la section précédente dans le domaine fréquentiel. L'effet du changement de forme sur la contribution des ondes de surface y est quantifié. La section 5 est une conclusion qui souligne les conséquences pratiques des comportements décrits dans cet article.

Validation du code

L'approche choisie est une approche GLMT (3), c'est à dire que les équations de Maxwell sont rigoureusement résolues pour la configuration d'un faisceau laser incident sur un objet. Ici l'objet est un ellipsoïde. Les détails de la résolution analytique ainsi que des exemples de résultats numériques pour un ellipsoïde dont les dimensions sont de l'ordre de quelques longueurs d'onde sont donnés dans les Refs (4, 5, 6). Le travail décrit dans cet article a été rendu possible par une analyse critique des difficultés numériques du code original afin d'étendre son domaine de calcul à des ellipsoïdes dont la taille est de plusieurs dizaines de longueur d'onde. Un code a été développé en MATHLAB. La figure 1-a compare, pour une onde plane incidente, deux prédictions. L'une de ces prédictions a été obtenue par le code pour ellipsoïdes ($2\pi a/\lambda = 200$, $a/b = 1.0001$, où a et b sont les longueurs des axes principaux de l'ellipsoïde) tandis que l'autre correspond aux prédictions pour la sphère parfaite ($2\pi a/\lambda = 2\pi b/\lambda = 200$). L'accord entre ces deux prédictions est excellent. Nous remarquons plus particulièrement, pour ces gouttes d'eau ($m = 1.3 - 0.0i$) les positions des arcs-en-ciel du premier et deuxième ordre aux environs de $\theta = 140^\circ$ et 125° respectivement. La figure 1-b est un agrandissement de la figure 1-a aux alentours des arcs-en-ciel du premier et deuxième ordre. Nous notons que les plus fins détails, créés par les interférences entre les rayons ayant subi une réflexion interne et ceux qui se sont réfléchis sur la surface externe de la goutte (7) sont quasi-parfaitement identiques. Ce fait prouve la qualité des codes développés. Nous allons maintenant utiliser le code pour ellipsoïdes afin de visualiser les modifications engendrées par une déformation de goutte sphérique.

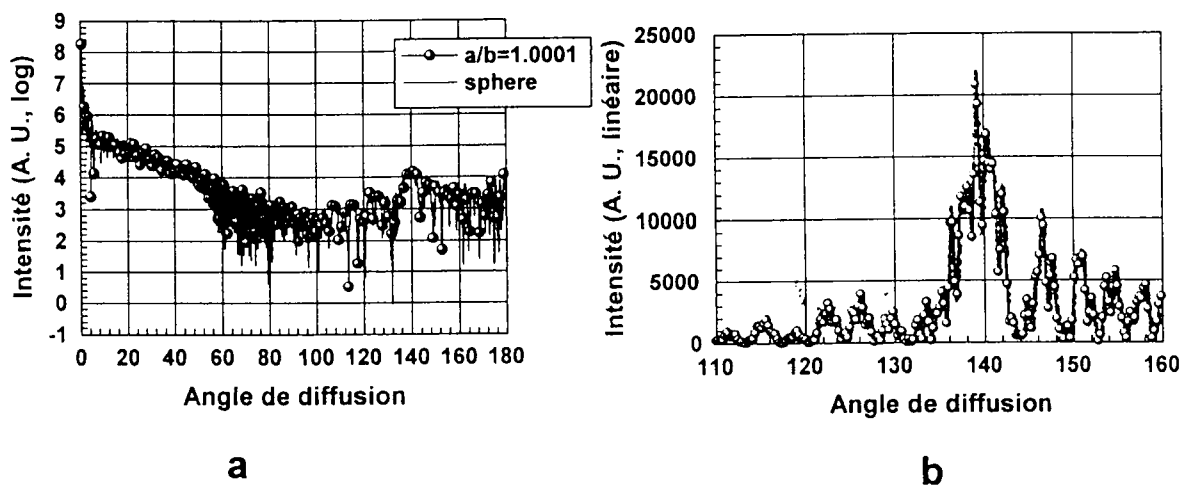


Figure 1 : Comparaison des diagrammes de diffusion calculés avec un code Lorenz-Mie classique et le code pour ellipsoïdes.

Arcs-en-ciel du premier et deuxième ordre

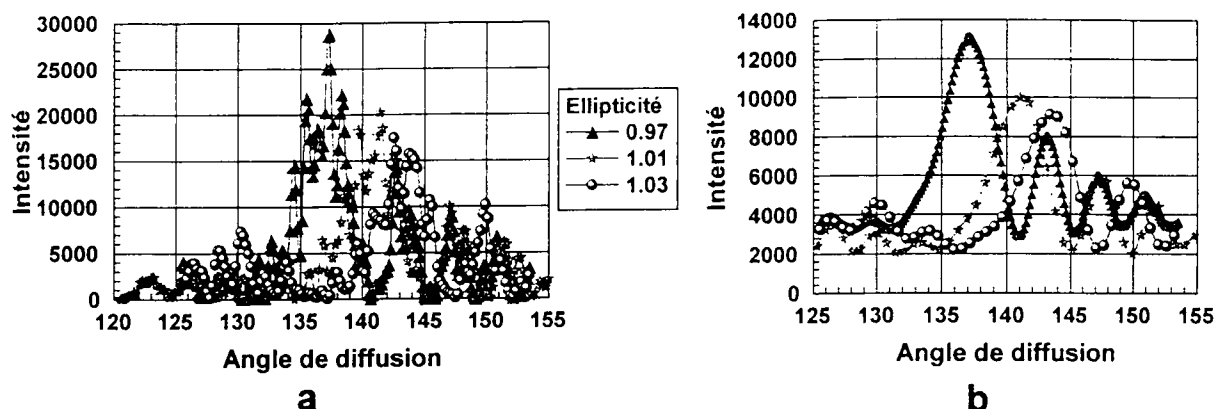
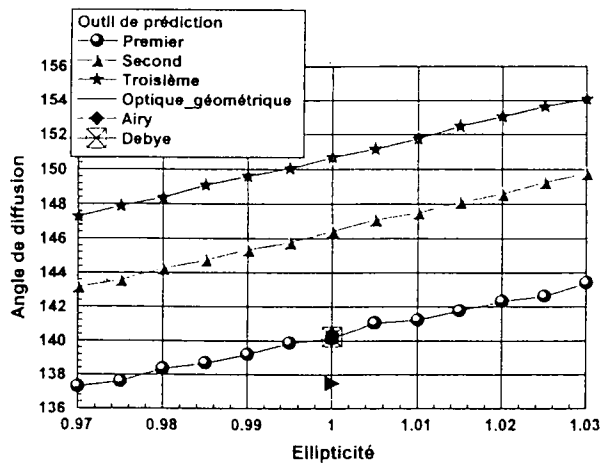


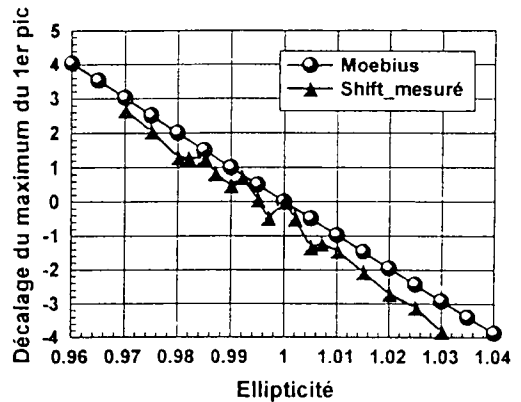
Figure 2 : Arcs-en-ciel avec l'ellipticité comme paramètre

La figure 2-a présente une série d'arcs-en-ciel (du premier ordre) calculés pour des ellipsoïdes de déformation croissante ($2\pi a/\lambda = 200$, $a/b=0.97, \dots, a/b=1.03$). Ces calculs ont tous été effectués pour la même orientation de l'ellipsoïde vis à vis de la direction de propagation du faisceau $\varphi = 0^\circ$. Nous remarquons que, lorsque la déformation de l'ellipsoïde augmente, les arcs-en-ciel sont translatés vers les angles de diffusion les plus importants. Cette translation a fait l'objet d'un nombre important d'étude pour des particules grandes devant la longueur d'onde depuis le travail de Möebius (8). Citons dernièrement les travaux de van Beeck pour des particules d'un diamètre de l'ordre de $100 \mu\text{m}$ (9). Cependant ces travaux intègrent un passage par l'optique géométrique qui limite l'analyse des effets fins. Pour obtenir la position du maximum de l'arc-en-ciel, le signal est d'abord filtré de ses hautes fréquences par FFT, puis la position du maximum absolu est recherchée. La figure 2-b représente les arcs-en-ciel de la figure 2-a filtrés de leurs composantes hautes fréquences.

La figure 3-a représente l'évolution de la position des trois premiers pics de l'arc-en-ciel principal en fonction de l'ellipticité. Cette évolution est bien représentée par une régression linéaire. Pour une sphère parfaite, l'optique géométrique prévoit une localisation de l'arc-en-ciel du premier ordre à 137.48° , à corriger d'une translation du maximum du premier pic, en accord avec Airy, de 2.92° . C'est à dire que le maximum du premier pic de l'arc-en-ciel principal d'une goutte d'eau de $40 \mu\text{m}$ est à 140.41° , en accord avec la figure 3-a pour une ellipticité de 1. Pour l'arc-en-ciel du deuxième ordre, il se situe aux alentours de 124.66° pour une goutte d'eau de $40 \mu\text{m}$. La figure 3-b compare les translations mesurées du premier pic de l'arc-en-ciel principal avec celles prévues par la théorie de Möebius. L'accord sur la position de ce maximum est bon. Cependant, nous devons souligner que la théorie de Möebius ne prévoit pas de changement de l'intensité de ce pic alors que celui-ci varie fortement en fonction de l'ellipticité.



a



b

Figure 3 : Comparaison entre les translations mesurées et celles prévues par la théorie de Moebius en fonction de l'ellipticité

Sensibilité aux ondes de surface

Puis nous affinons l'analyse en calculant la transformée de Fourier de la dérivée du diagramme de diffusion. Cette représentation permet de mettre en évidence les contributions des rayons réfléchis une fois dans la particule (contribution d'Airy), des rayons réfléchis sur la surface extérieure de la particule (contribution dite de ripple), et des "rayons" ayant subi des interactions plus complexes avec la particule (contribution de hauts ordres) (7).

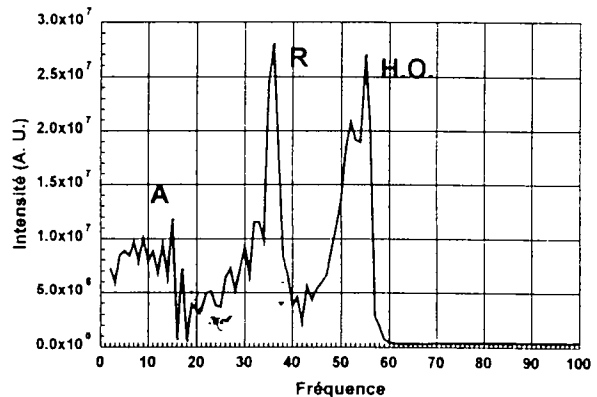
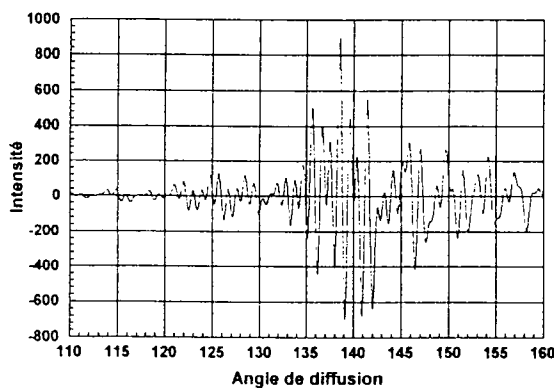


Figure 4 : Pour un paramètre de taille de 200 et une ellipticité de 0.97, la dérivée de l'arc-en-ciel et sa transformée de Fourier.

Ainsi, la figure 4 présente la dérivée de la distribution d'intensité aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel pour une ellipticité de 0.97, avec la transformée de Fourier associée. Les différentes contributions sont clairement distinctes. Elles sont notées par les lettres A pour Airy, R pour ripple et OS pour onde de surface.

Discussion et Conclusion

La réfractométrie d'arc-en-ciel est une technique en développement depuis quelques années. Elle permet potentiellement la mesure de la taille et de l'indice de réfraction de gouttelettes liquides en écoulement (9, 10). Cependant cette technique est très sensible, et donc tout écart aux hypothèses utilisées dans l'analyse des signaux recueillis affecte la mesure. A titre d'exemple, la figure 5 présente les mesures qui auraient été effectuées sur les arcs-en-ciel présentés précédemment. La figure 5a, montre l'indice de réfraction mesuré en fonction de l'ellipticité tandis que la figure 5b montre le diamètre mesuré en fonction de l'ellipticité. La mesure du diamètre ainsi que celle de l'indice représentées par des sphères ont été réalisées à partir de la position des maxima des pics 1 et 2 de l'arc-en-ciel principal (9,10) tandis que la mesure de l'indice de réfraction représentée par des triangles a été obtenue à partir du point d'inflexion de la pente ascendante du premier pic de l'arc-en-ciel principal. Notons cependant que la mesure simultanée du premier et du deuxième arc-en-ciel lève l'ambiguïté sur l'ellipticité, comme pour la présence de gradients d'indice radiaux (10).

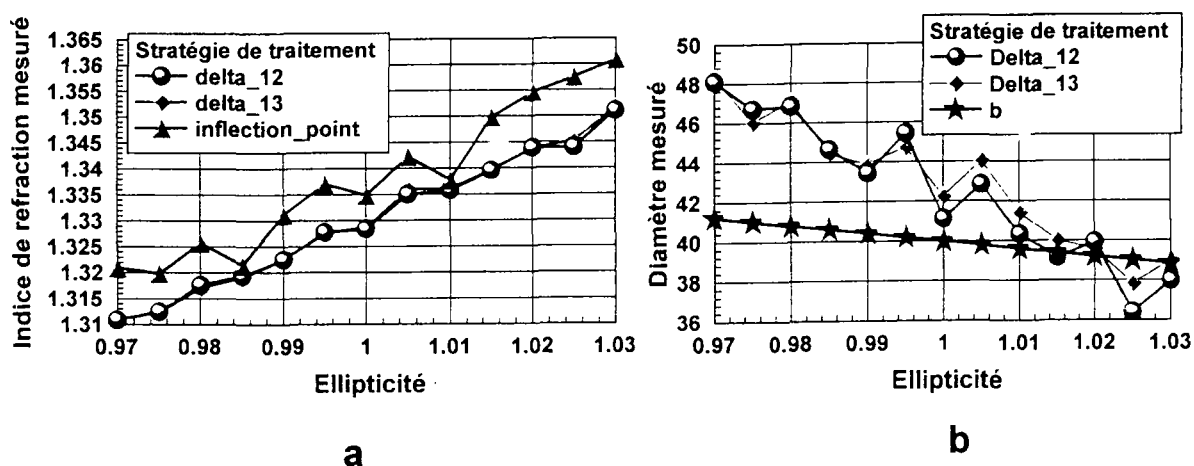


Figure 5 : Simulation de la mesure du diamètre et de l'indice d'une goutte ellipsoïdale par les analyses actuelles des diagrammes d'arc-en-ciel.

Remerciements

Le séjour de Mme Y. Han est supporté par une bourse CNRS/K.C. Wong pour une durée d'une année. Cette collaboration entre également dans le programme de travail entre l'UMR 6614 et le laboratoire de Radiophysique de Xidian University (Xi'an, Chine) supporté par le PRA 00-07.

Références

- 1] G.Chen, Md.M. Mazunder, R.K. Chang, J.C. Swindal, et W.P. Acker. newblock Laser diagnostics for droplet characterization: application of morphology dependent resonances. Prog. Energy Combust. Sci., 22:163-188, 1996.
- 2] J.P.A.J. van Beek et M.L. Riethmuller. Rainbow phenomena applied to the measurement of droplet size and velocity and to the detection of nonsphericity. Appl. Opt., 35(13):2259--2266, 1996.

- 3] G. Gouesbet et G. Gréhan. Generalized Lorenz-Mie theories, from past to future. *Atomization and Sprays*, 10(3-5):277--333, 2000.
- 4] Y. Han. Scattering of a spheroidal particle illuminated by Gaussian beam. PhD thesis, Xidian University, Xi'an, China, March 2000.
- 5] Y. Han et Z.S. Wu. The expansion coefficients of a spheroidal particle illuminated by Gaussian beam. *IEEE Transactions on antennas and transactions*, pages --, 2001.
- 6] Y. Han et Z.S. Wu. Scattering of a spheroidal particle illuminated by a Gaussian beam. *Applied Optics*, 40(15):--, 2001.
- 7] X. Han, K.F. Ren, L. Mees, G. Gouesbet et G. Gréhan. Surface waves/geometrical rays interferences: numerical and experimental behaviour at rainbow angles. *Optics Communication*, 195:49--54, 2001.
- 8] W. Möebius. Zur Theorie des Regenbogens und ihrer experimentellen Prüfung. *Annalen der Physik*, IV(33):1498--1558, 1911.
- 9] J.P.A.J. van Beeck et M.L. Riethmuller. Surface integral method to quantify the droplet non-sphericity effect on rainbow thermometry. *Symposium on Advanced Aerodynamic Measurement Technology*, Seattle Washington, USA, Sept 22-25, 1997.
- 10] F. Corbin, A. Garo, G. Gouesbet et G. Gréhan. Réfractométrie d'arc-en-ciel: Application au diagnostic de gouttes avec gradient d'indice. 5ème congrès Francophone de Vélométrie Laser, Rouen, 24-27 Septembre 1996, pages E1.1--E1.8, 1996.

Interaction entre impulsions laser courtes et particules.

Loïc Méès, Gérard Gréhan et Gérard Gouesbet.

LESP, CORIA / UMR 6614
CNRS, INSA et Université de Rouen
BP 12, Avenue de l'Université
76801 Saint Etienne du Rouvray
FRANCE.

Résumé : Nous présentons dans cet article l'interaction entre une impulsion laser courte et une micro-cavité sphérique, dans un cadre électromagnétique rigoureux. L'évolution temporelle des champs internes et des champs proches de la goutte est détaillée dans le cas d'une impulsion d'extension infinie (onde plane) et d'un faisceau focalisé hors de l'axe de la particule diffusante.

Introduction

L'utilisation croissante de la lumière laser, en particulier dans le domaine de la métrologie, nécessite une compréhension toujours plus fine des phénomènes d'interaction entre lumière et matière. Ces vingt dernières années, des efforts importants ont été menés pour décrire les interactions entre faisceaux laser et particules. Un ensemble de théories électromagnétiques, basées sur la résolution des équations de Maxwell et rassemblées sous la dénomination commune de Théories de Lorenz-Mie Généralisées (TLMG), permet ainsi de décrire l'interaction entre un faisceau laser focalisé continu et une particule de forme régulière (sphère homogène ou multicouche, cylindre de section circulaire ou elliptique, sphéroïde et agrégat de sphères) [1]. Devant l'émergence de sources laser pulsées rapides et faciles à l'emploi, ces théories ont été étendues à la prise en compte d'impulsions laser de durée et de forme arbitraires [2]. Ces récents progrès technologiques ouvrent en effet la voie à de nouvelles techniques de diagnostic. Les aspects temporels de la diffusion s'ajoutent aux informations véhiculées par l'impulsion et permettent en principe de sonder des milieux denses où la diffusion multiple empêche les techniques existantes de fonctionner. D'autre part, l'intensité de ces impulsions courtes est suffisamment élevée pour initier des effets non linéaires dans le milieu sondé mais la faible énergie associée limite les risques d'échauffement et de destruction. Ces potentiels d'application importants nécessitent que l'on comprenne finement les interactions impulsion / particules.

Des programmes de calcul associés aux TLMG permettent de décrire les diagrammes résolus en temps des champs diffusés lointains [3] et les champs internes [4] à une particule sphérique et homogène, éclairée par une impulsion femtoseconde. Cet article est dédié à une description d'ensemble (champs proches et champs internes) de l'interaction entre une impulsion laser de 50 fs, d'extension infinie (onde plane) ou focalisée, et une goutte d'eau sphérique homogène. L'article s'organise de la manière suivante. Une première partie présente la configuration étudiée, la partie suivante examine le cas de l'onde plane et la troisième est dédiée au cas d'un faisceau focalisé.

La configuration étudiée.

On considère une impulsion laser de longueur d'onde porteuse $\lambda_0=0.6 \mu\text{m}$ et de durée 50 fs (à mi-hauteur de chaque composante du champ électromagnétique). Cette impulsion est limitée en transformée de Fourier et sa largeur spectrale est donc de 240 nm environ (à mi-hauteur pour une composante du champ également). Le support spatial de l'impulsion sera selon les exemples une onde plane ou un faisceau focalisé. La particule diffusante est une goutte d'eau sphérique et homogène de diamètre $100 \mu\text{m}$ et d'indice de réfraction $n=1.33 \cdot 10^{-4}i$, éventuellement décentrée par rapport au faisceau. En 50 fs, la lumière ne parcourt que $15 \mu\text{m}$ environ, cette configuration permet donc une séparation temporelle des modes de diffusion (réflexion, diffraction, réfraction,...). D'autre part, cette configuration est hors résonance. Les champs internes ne sont pas dominés par un mode résonant quand la goutte est éclairée par une onde plane continue de longueur d'onde $\lambda=\lambda_0=0.6 \mu\text{m}$ comme on peut le constater figure 1. Pour cet éclairage continu la lumière est focalisée en P1, au centre d'une zone d'ombre à droite de la goutte (l'onde incidente venant de la gauche). Un autre point chaud est créé à l'intérieur de la goutte en P2, proche de l'interface, et deux zones symétriques de faible intensité délimitent une région à laquelle, du point de vue de l'optique géométrique, les rayons ne peuvent accéder directement. Enfin, notons que, tant à l'intérieur qu'à l'extérieur de la goutte, de nombreux phénomènes d'interférence sont observables, du fait de la superposition en tout point de plusieurs modes de diffusion.

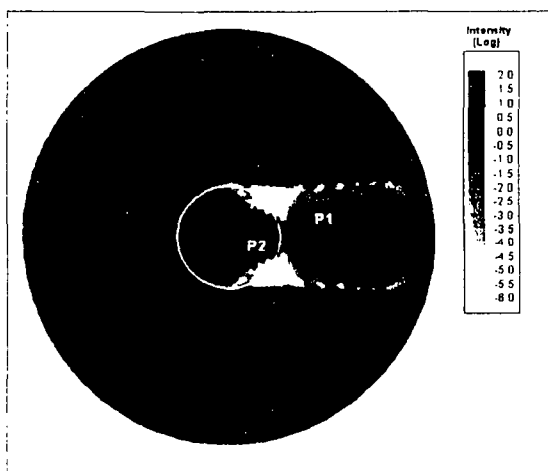


Figure 1 : Intensité diffusée et interne à une goutte d'eau de $100 \mu\text{m}$ éclairée par une onde plane continue de longueur d'onde $\lambda=0.6 \mu\text{m}$.

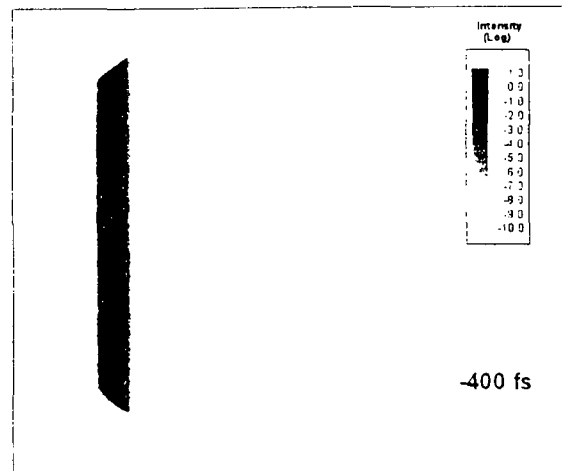


Figure 2 : l'impulsion incidente sur la goutte est une onde plane de durée 50 fs et de longueur d'onde porteuse $\lambda_0=0.6 \mu\text{m}$. La goutte d'eau ($n=1.33 \cdot 10^{-4}i$) a un diamètre de $100 \mu\text{m}$.

Onde plane impulsionnelle.

Nous considérons à présent le cas d'une impulsion de durée à mi-hauteur de 50 fs, incident sur la même goutte d'eau. Sur les figures suivantes, on pourra suivre dans le temps l'évolution des champs internes et des champs proches de la goutte. Le domaine de calcul est un disque de $400 \mu\text{m}$ de diamètre et les limites de la goutte sont matérialisées par un cercle blanc au centre de ce domaine. La figure 2 montre l'impulsion incidente par la gauche sur la goutte au temps -400 fs (les temps sont normalisés de telle sorte que le temps 0 correspond à l'arrivée de l'impulsion au centre du domaine de calcul en absence de particule diffusante). A -100 fs , sur la figure 3, l'impulsion entre en partie dans la goutte par réfraction et est en partie réfléchi. A l'intérieur de la goutte, la partie réfractée est courbe car les « rayons » voyageant plus au centre sont davantage retardés. A l'extérieur, la lumière se réfléchit et s'étend de manière circulaire.

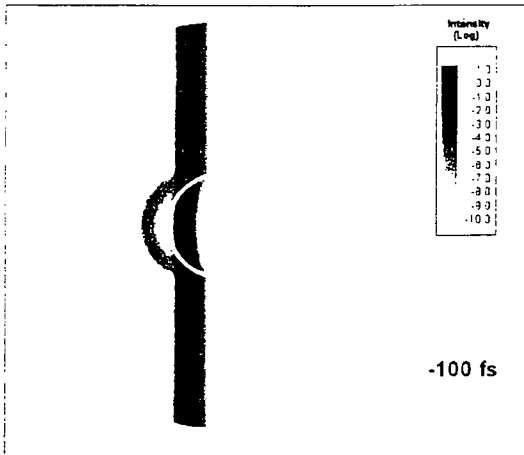


Figure 3 : L'impulsion est réfléchié en partie et en partie réfractée à l'intérieur de la goutte.

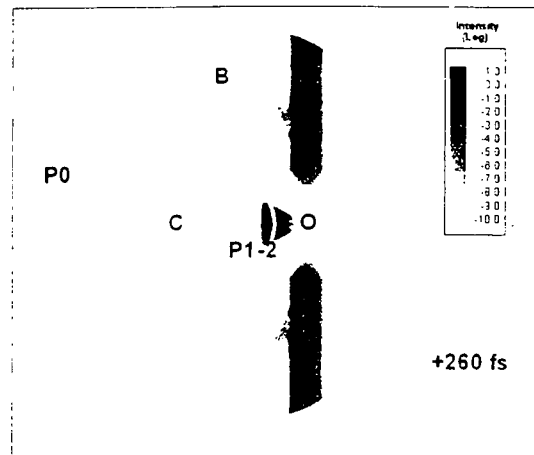


Figure 4 : La lumière est focalisée dans la goutte. On distingue l'ombre de la goutte sous la forme d'une coupure dans le faisceau incident.

Sur la figure 4, à 260 fs, la lumière réfléchié (R) s'étend sur un cercle de centre C, à l'exception d'une zone d'ombre notée O à droite de la goutte et une zone notée B correspondant à l'angle de Brewster (82° pour $n+1.33$). Le pulse incident qui a maintenant dépassé la goutte, est amputé de sa partie centrale en O. C'est l'ombre de la goutte. A l'intérieur de la goutte, la lumière atteint l'interface en P12 où elle est en partie réfléchié et en partie réfractée, hors de la particule. A +400 fs, figure 5, la lumière réfractée atteint son point de focalisation en P1. Seule la partie avant de la réflexion (P0) se trouve encore dans le domaine de calcul et la zone d'ombre en O rétrécit. En champs lointains elle aura totalement disparu pour laisser place à un maximum d'intensité de la figure de diffraction. A l'intérieur de la goutte, la lumière est focalisée sur l'axe après une réflexion interne (un déplacement supra-luminique de ce point de focalisation a été mis en évidence dans la réf. [5]). On distingue en P2 une partie centrale en accord avec l'optique géométrique et deux paquets d'ondes symétriques qui sont essentiellement issus de couplages diffractifs. Ces paquets d'onde ont la particularité de voyager autour de l'angle limite de réfraction et vont par conséquent en grande partie être piégés dans la goutte sous la forme de modes de galerie. Les champs internes ont fait l'objet d'une étude préalable et plus détaillée dans la référence [4].

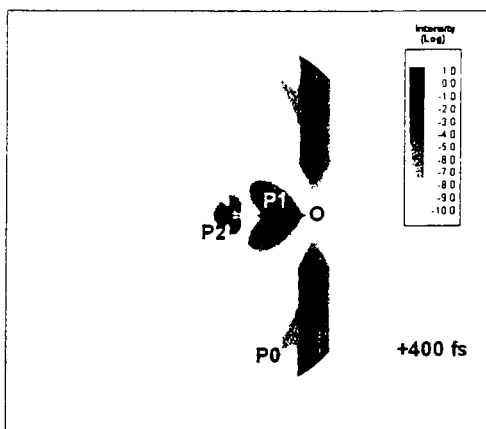


Figure 5 : La lumière réfractée est focalisée à l'extérieur de la goutte, un deuxième point chaud dans la goutte correspond à la lumière focalisée après une réflexion interne.

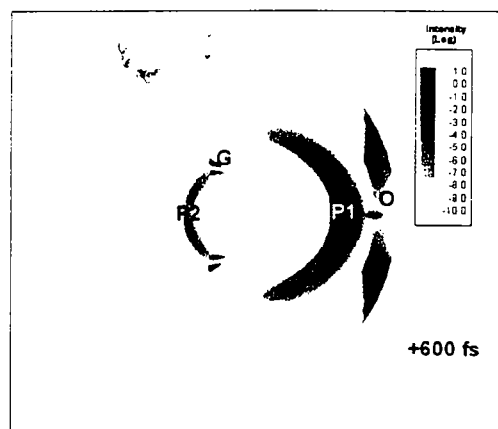


Figure 6 : Les modes de galeries (G) sont réfléchiés à l'intérieur de la goutte, tandis que la lumière réfractée (P1) se propage vers l'avant et que la lumière réfléchié une fois (P2) s'étend vers une deuxième réflexion interne.

La figure 6 correspond au temps +600 fs. Le pulse incident est sur le point de sortir du domaine de calcul et la zone d'ombre rétrécit toujours. On distingue même un maximum local d'intensité correspondant à des interférences constructives entre les deux branches symétriques se rapprochant. La lumière réfractée notée P1 s'étend maintenant selon un quasi-cercle et, à l'intérieur de la goutte, les modes de galerie (G) subissent une nouvelle réflexion interne. A +700 fs, les modes de galerie sont réfléchis dans la goutte (G), quand la lumière ayant subi une réflexion interne en accord avec le modèle géométrique P2 est en partie réfractée et en partie (très faible) réfléchi.

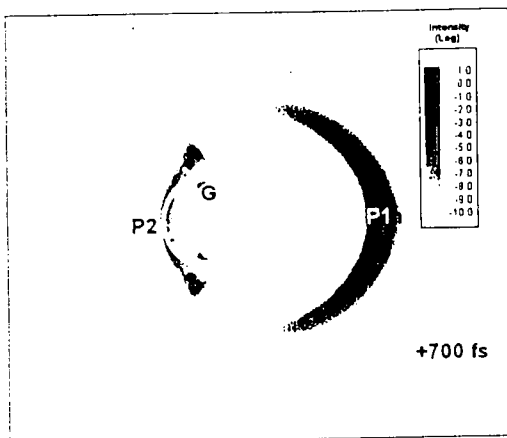


Figure 7 : Deuxième réflexion interne.

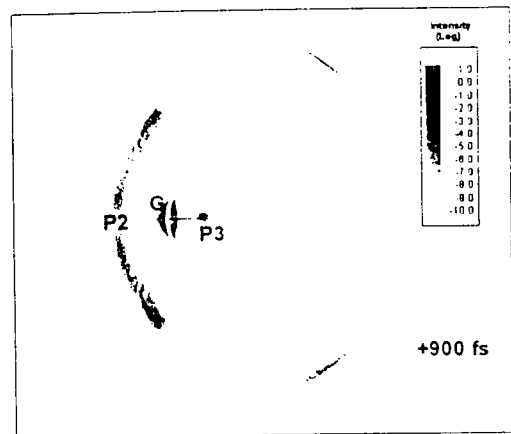


Figure 8 : les modes de galerie (G) se croisent dans la goutte, la lumière réfléchi deux fois (P3) est fortement focalisée dans la goutte.

A 900 fs et figure 8, le mode P2 se propage hors de la goutte et les modes de galerie G se croisent dans la particule tout en subissant leur troisième réflexion interne. La lumière réfléchi trois fois en accord avec l'optique géométrique est focalisée en P3 ce qui la rend visible. Au delà de cet instant, ces modes que l'on peut qualifier de géométrique en opposition aux modes de galerie, ne seront plus visible et les modes de galerie seront les seul à contribuer aussi bien aux champs internes qu'aux champs proches. Au fil des réflexions internes les modes de galerie vont continuer à fuir de la sorte, mais ils voyagent au-dessus de l'angle limite de réfraction : ces fuites sont donc purement ondulatoire et restent faibles. Figure 9, à +2000 fs, Les modes de galerie et leurs fuites sont visibles. Les modes de galeries sont ainsi piégés dans la goutte pendant un temps très long devant la durée de l'impulsion excitatrice. Cette décroissance lente est quantifiée dans la réf [4].

Impulsion focalisée sur le bord de la goutte.

Dans la précédente section, l'éclairage était assuré par une onde plane impulsionnelle. Que l'éclairage soit pulsé ou continu, il est possible de favoriser l'excitation des modes de galerie en utilisant un faisceau focalisé. Dans cette section l'impulsion de 50 fs aura pour support spatial un faisceau gaussien focalisé sur le bord de la goutte, soit à 50 μm du centre du domaine de calcul. Ce dernier ne s'étend plus qu'à 150 μm du centre de la goutte (contre 200 μm dans la section précédente). Le diamètre au col du faisceau est 20 μm et les autres paramètres de calcul sont inchangés

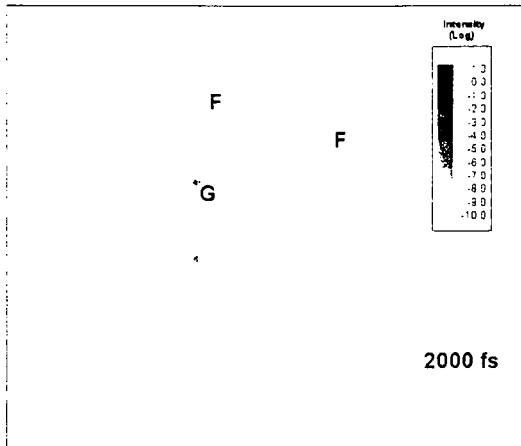


Figure 9 : les modes de galerie orbitent dans la particules selon des trajectoires rasantes et fuient faiblement.

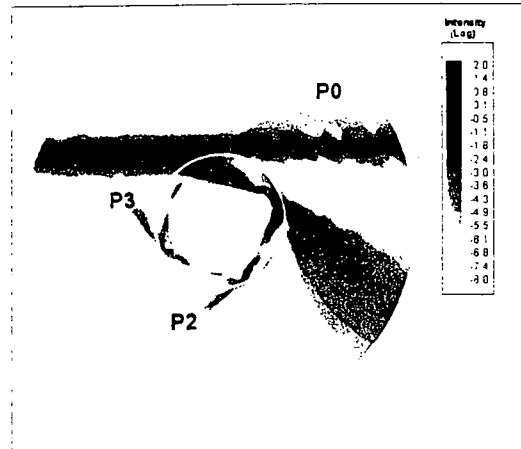


Figure 10 : La goutte est éclairé par un faisceau continu focalisé sur l'un de ces bord.

Dans le cas d'un éclairage continu (figure 10), on constate les conséquences de la non symétrie de l'éclairage. Le centre de la goutte n'est plus éclairé, et l'essentiel des champs internes sont confinés dans une couronne près de l'interface. Même si elle n'est pas seule, la contribution des modes de galerie s'en trouve augmentée par rapport au cas de l'onde plane traité précédemment.

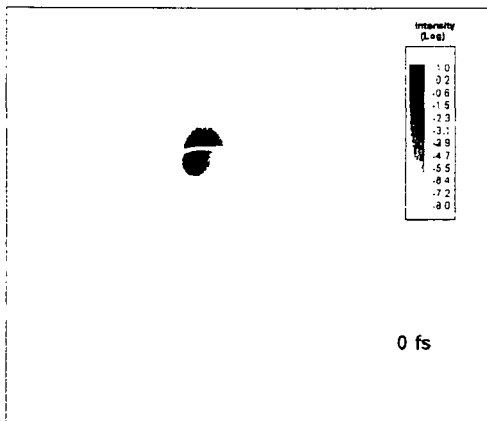


Figure 11 : à 0 fs, l'impulsion d'extension finie atteint le bord de la goutte.

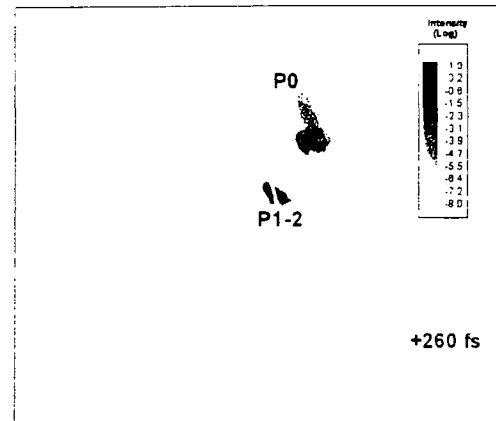


Figure 12 : Une partie de la lumière est réfléchi (P0), l'autre entre par réfraction dans la goutte puis est focalisé en P1-2 où de nouveau se produit une séparation réflexion / réfraction.

Dans le cas d'une impulsion de 50 fs, les figures 11 à 14 montrent la répartition des champs internes et proches pour cet éclairage décentré. Au temps 0 fs (figure 11) l'impulsion d'extension finie atteint la goutte. Une partie est réfléchi, l'autre entre dans la goutte par réfraction. A 260 fs, on retrouve la situation de la figure 4 à ceci près que seule la lumière provenant de l'éclairage au bord de la goutte est présent. Les figures 13 et 14 sont à mettre en parallèle avec les figures 5 et 8 et conduisent à la même conclusion. Les modes de galerie restent toujours piégés dans la goutte mais il ne prennent plus la forme que d'un seul paquet d'ondes (le symétrique n'ayant pas été excité). Leur intensité est à peu près la même que dans le cas de l'onde plane puisque leur excitation a lieu au bord de la goutte, seule région dont l'éclairage n'a pas diminué quand on est passé de l'onde plane au faisceau focalisé. Par contre

leur importance relative est plus grande car les autres modes ne sont que partiellement et faiblement excités.

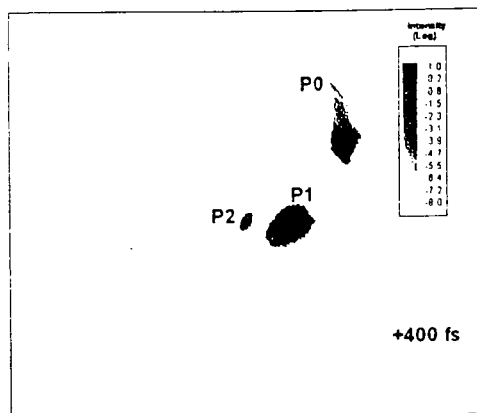


Figure 13 : La lumière est focalisée à l'extérieur en P1 comme pour l'onde plane mais la figure n'est plus symétrique. La lumière réfléchiée une fois à l'intérieur de la goutte (P2) est toujours présente, mais seule la partie de P2 recouvrant les modes de galerie est excitée, on ne retrouve plus de réflexion selon l'axe et la figure n'est plus symétrique.

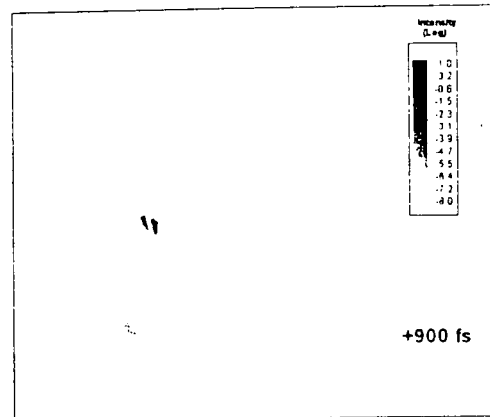


Figure 14 : les modes de galeries orbitent seuls dans la goutte et fuient de manière essentiellement ondulatoire.

Conclusion

Dans cet article, nous avons décrit l'interaction entre une impulsion de 50 fs à mi-hauteur et une goutte d'eau de 100 μm . Deux cas d'extension spatiale ont été traités : l'onde plane et le faisceau focalisé décentré par rapport à la goutte. Cette description a pris la forme de cartes d'intensités résolues en temps permettant de suivre l'évolution, dans la goutte et en dehors de celle-ci, des différents modes de diffusions qui sont séparés dans le temps. En particulier, on a pu suivre l'établissement des modes de galerie qui ne sont pas prédictibles par une approche géométrique.

Références

- [1] G. Gouesbet and G. Gréhan, Generalized Lorenz-Mie theories, from past to future, *Atomization and sprays*, 10, 277-333, 2000
- [2] G. Gouesbet and G. Gréhan, Generic formulation of a generalized Lorenz-Mie theory for a particle illuminated by laser pulses, *Part. Part. Syst. Charact.* 17, 5-6, 213-224, 2000.
- [3] L. Méès, G. Gouesbet and G. Gréhan. Time resolved scattering diagrams for a sphere illuminated by plane wave and focused short pulses. *Optics communications* 194 (2001) 59-65.
- [4] L. Méès, G. Gouesbet et G. Gréhan. Interaction between femtosecond pulses and a spherical microcavity : internal fields. *Optics communications* 199 (2001) 33-38.
- [5] M. Brunel, L. Méès, G. Gouesbet, G. Gréhan. Possibility of Cerenkov-based radiation from supra-luminic excitation in microdroplets by ultra-short pulses. *Optics Letters* Vol. 26 (20), 1621-1623, 2001.

GRANULOMETRIE ET CARACTERISATION CHIMIQUE DE PARTICULES SUBMICRONIQUES PAR ANALYSE DE L'INTENSITE ET DE LA POLARISATION D'UN RAYONNEMENT DIFFUSE

Philippe HERVÉ, Feifei HOU

Laboratoire d'Energétique et d'Economie d'Energie
Université PARIS X 1 chemin Desvallières 92410 VILLE D'AVRAY

RESUMÉ

La méthode proposée permet de caractériser taille et nature chimique et de visualiser les positions de particules sphériques dont le diamètre est compris entre 200 Å et 10000 Å. Ces micro particules, invisibles à l'œil nu, sont les plus néfastes pour l'environnement car elles traversent les filtres usuels et pénètrent irréversiblement au fond des alvéoles pulmonaires. Leur nature chimique conditionne évidemment leur nocivité. Les particules de métaux lourds sont particulièrement dangereuses.

Le nuage de particules est illuminé par la lumière cohérente, monochromatique et polarisée d'un laser argon ($\lambda=488$ nm). La lumière diffusée a un taux de polarisation qui dépend du paramètre de taille $\alpha = \pi D/\lambda$, de l'indice complexe et de l'angle de diffusion. Dans le cas de ces particules submicroniques, le paramètre de taille est compris entre 0 et 5 et le taux de polarisation de la lumière diffusée se calcule à partir de la théorie de MIE.

Avec une mesure à un angle donné du taux de polarisation et la mesure de l'intensité, la précision sur la taille de la particule est de l'ordre de $\pm 5\%$, l'imprécision étant due à la méconnaissance de l'indice complexe. Ce type de mesure suffit cependant pour séparer particules diélectriques et conductrices. En ajoutant une deuxième mesure angulaire, on détermine l'indice réel du matériau et l'indice d'extinction avec une bonne précision, ce qui permet de caractériser la nature chimique de la particule.

INTRODUCTION

La détection des particules submicroniques par voie optique permet de s'affranchir des problèmes d'échantillonnage : agrégats des particules, transformations physicochimiques... Pour les particules microniques on peut utiliser différentes méthodes [1]. L'analyse de l'indicatrice de diffusion d'un nuage de particules éclairé par une source cohérente permet d'obtenir par une méthode inverse la granulométrie. La forme de l'indicatrice de diffusion est décrite par la théorie de Mie [3] [4] et dépend non seulement de la taille des particules mais aussi de l'indice complexe de la particule. Afin d'analyser les particules de petite taille émises par un turboréacteur de type Olympus, le laboratoire avait mis au point [5] avec l'ONERA une méthode de mesure basée sur la diffraction d'un laser ultraviolet. Le choix de l'ultraviolet, avait permis d'augmenter le paramètre de taille et donc de minimiser l'influence de l'indice. La limite basse des diamètres discernables était alors de 0,3 μ m. En dessous de cette taille la forme des indicatrices dépend peu de la taille et l'inversion n'est plus possible. Il faut donc utiliser une autre méthode. Des appareillages commerciaux ont été développés utilisant la mesure de l'intensité diffusée ou absorbée par une particule unique mais, comme il sera montré à la figure 4 il n'y a pas de relation univoque entre intensité et taille (fig 4).

Nous avons en 1994 proposé [6] une nouvelle méthode basée sur l'analyse du taux de polarisation de la lumière diffusée qui était compatible avec les performances des caméras matricielles de cette époque. De nouveaux matériels ont vu le jour avec une amélioration d'un facteur de 10 à 100 du rapport signal sur bruit et de la dynamique. Il devient alors intéressant de mesurer simultanément intensité et taux de polarisation, ce qui permet d'obtenir avec précision la taille de la particule et son indice réel qui caractérise sa nature chimique.

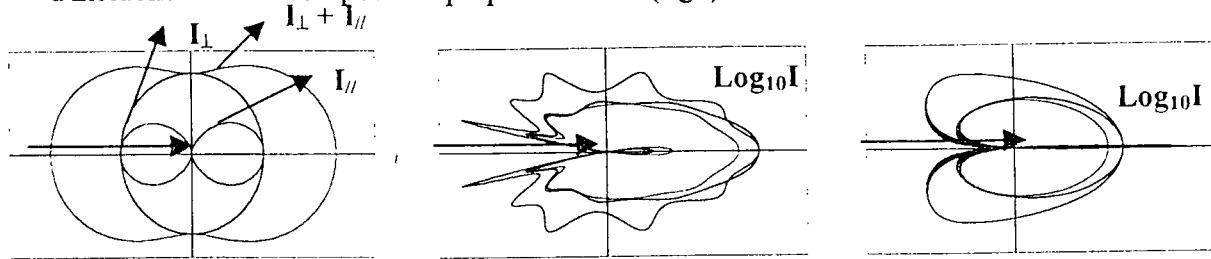
1. PRINCIPE PHYSIQUE

La théorie de Lorenz-Mie [3] [4] basée sur l'intégration des équations de l'électromagnétisme de Maxwell à l'intérieur et à l'extérieur de la particule, permet le calcul complet de la diffusion dans le cas d'une onde plane et des particules sphériques. L'indicatrice de diffusion dépend du paramètre de taille α et de l'indice complexe $n = n_r - j\chi$

$$\alpha = \frac{\pi \cdot \text{Diamètre}}{\lambda} \quad (1)$$

n_r indice réel, χ indice d'extinction.

La lumière diffusée est polarisée et comporte une composante parallèle au plan d'incidence et une composante perpendiculaire (fig1).



Approximation
Domaine Rayleigh ($\alpha < 0,3$)

Domaine de Mie
($0,3 < \alpha < 30$)

Approximation de Fraunhofer
($\alpha > 30$)

Figure 1 : Indicatrices de diffusion en lumière polarisée

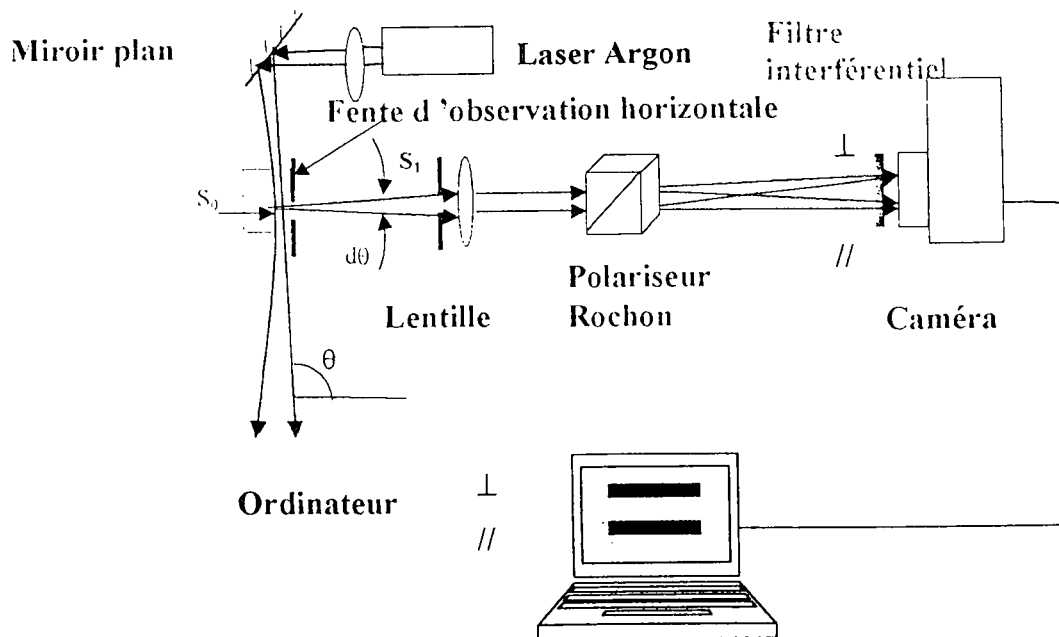
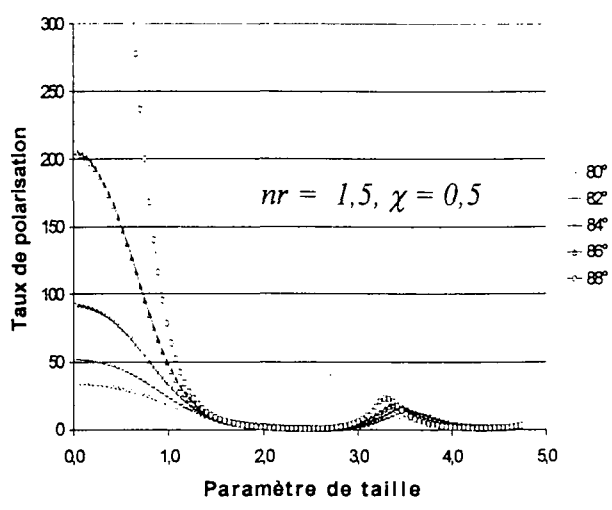


Figure 2 : Montage expérimental



Le taux de lumière polarisée dépend du paramètre de taille et de l'indice complexe. La figure 3 montre la variation de ce taux en fonction de l'angle de diffusion.

Nous ne représenterons pas ici l'effet de l'indice d'extinction dont l'influence est nettement moins importante que celle de l'indice réel. La figure 4 montre la variation de ce taux avec l'indice réel n_r .

Enfin sur la figure 5 nous avons représenté pour un indice donné les variations simultanées du taux de polarisation de l'intensité diffusée en fonction du paramètre de taille.

Figure 3 : Taux de polarisation en fonction de l'angle de diffusion

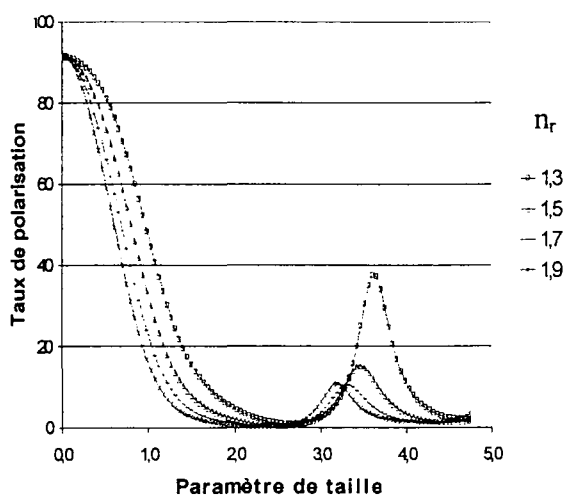


Figure 4 : Taux de polarisation en fonction de l'indice réel de la particule ($\theta = 84^\circ$)

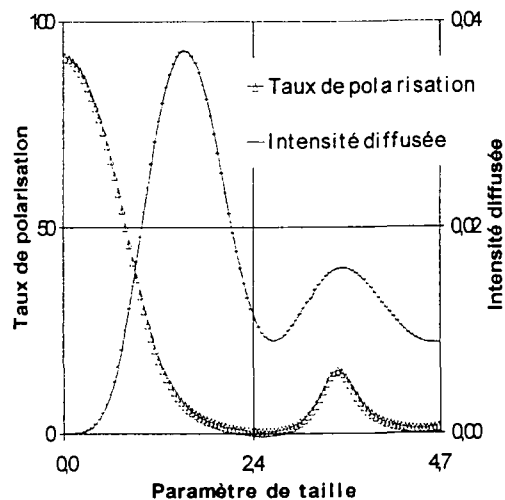


Figure 5 : Taux de polarisation et intensité diffusée en fonction du paramètre de taille ($\theta = 84^\circ$, indice complexe = $1,5 - 0,5j$)

Pour synthétiser le problème, nous avons, pour une particule donnée, 3 inconnues α , n_r , χ . Il faut donc effectuer au moins 3 mesures indépendantes sur la particule. Dans les méthodes présentées ici, ce système de trois équations à trois inconnues est toujours sous jacent.

2. SYSTÈME DE MESURE DE LA GRANULOMETRIE

Un premier appareillage a été réalisé [5] [6] [7] utilisant essentiellement comme système de détection une caméra intensifiée (Philips IP800, de dynamique 8 bits et un laser argon ($P_0 = 5W$, $\lambda = 488nm$)).

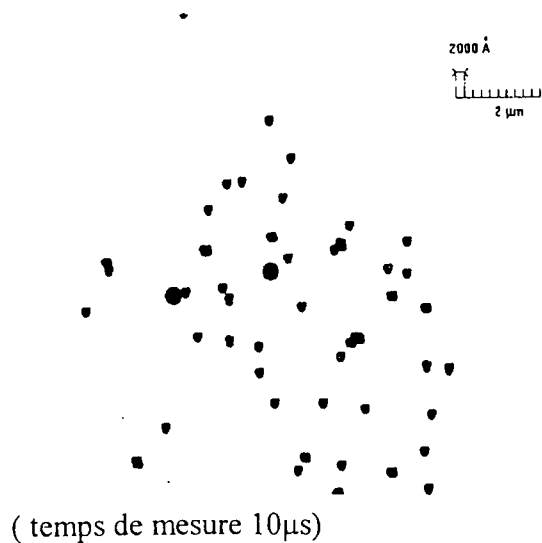


Figure 5 : Image reconstruite

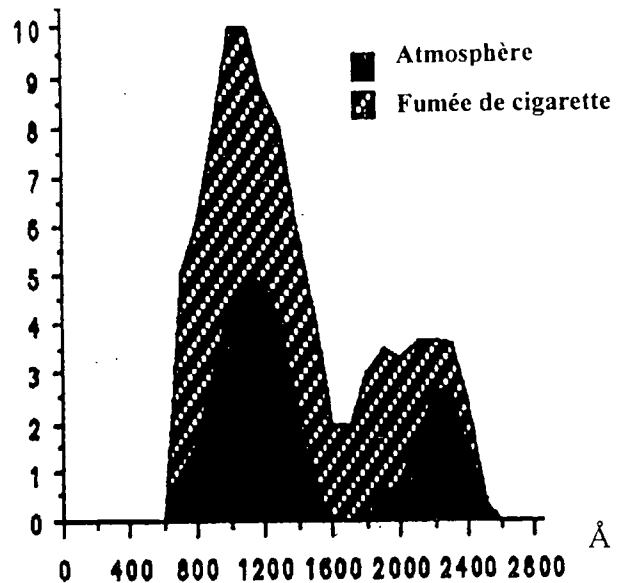


Figure 6 : Granulométrie de l'atmosphère

A partir de deux images simultanées en lumière polarisée avec un angle de diffusion de 84° on détermine le taux de polarisation pour chaque particule et on affecte (fig 5) un cercle de diamètre proportionnel au diamètre calculé à partir du taux de polarisation. L'étalonnage a été fait sur des billes de latex de $1,07 \mu\text{m}$ de diamètre. L'indétermination de l'indice complexe entraîne une erreur (voir fig 3) de l'ordre de $\pm 20\%$. La granulométrie est calculée en faisant une statistique sur plusieurs images. La figure 6 représente la granulométrie de l'atmosphère du laboratoire avec un pic vers 2800 \AA dû à une fumée de cigarette chargée de vapeur d'eau. D'autres essais [5] effectués sur la fumée bleue de la cigarette montrent un pic à 200 \AA .

3. SYSTÈME DE MESURE DE LA GRANULOMETRIE ET DE L'INDICE COMPLEXE

3.1. Etude de la précision des mesures

Afin de réduire l'imprécision consécutive à la méconnaissance de l'indice complexe on ajoute une mesure absolue de l'intensité dans la direction θ . L'erreur sur la détermination du paramètre de taille est alors due essentiellement aux erreurs de mesure de l'intensité.

Si on utilise uniquement le taux de polarisation, il y a une forte indétermination sur l'indice complexe. En ajoutant une mesure absolue d'intensité on sait que la particule est métallique ou non (par exemple χ est compris entre 4,9 et 5,3, fig 7). En ajoutant le deuxième angle de mesure, on lève l'indétermination, il y a une bonne précision sur l'indice réel n_r .

L'utilisation simultanée de deux angles permet d'accorder un degré de confiance accru sur la validité de la mesure dans le cas où on a un doute sur la sphéricité des particules.

Si on améliore la précision jusqu'à 2%, on trouve des valeurs précises pour α , n_r et χ .

	α	n_r	χ
Mesure Taux + I avec 2 angles	0,45 ($\pm 0\%$)	1,4 ~ 1,6 ($\pm 6\%$)	4,9 ~ 5,3 ($\pm 4\%$)
Mesure Taux + I (75°)	0,45 ($\pm 0\%$)	1,2 ~ 1,98	4,9 ~ 5,3
Mesure Taux (75°)	0,19 ~ 0,86, 3,46 ~ 6,44	1,2 ~ 1,98	0,3 ~ 9,9

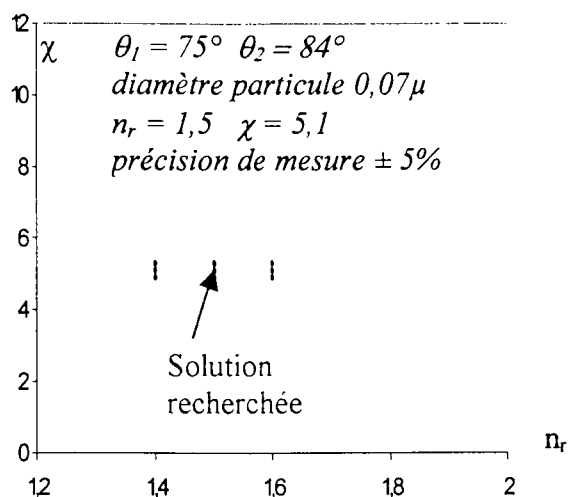
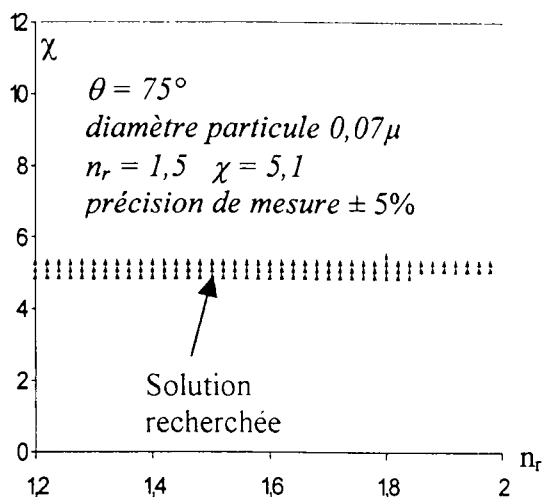


Figure 7 : Détermination du paramètre de taille et de l'indice complexe

3.2. Calcul de l'intensité de la lumière diffusée par une particule

Le nombre de photonélectrons reçu par la caméra est : $N_{\text{photonélectrons}} = W_{\text{incident}} \times \frac{\pi \cdot d^2}{4h\nu\delta_0} \cdot d\Omega \cdot Q_{\text{diff}}(\theta) \cdot \eta$
 W_{incident} : énergie de la lumière incidente d : diamètre de a particule
 S_0 : surface de la tache du laser $d\Omega$: angle solide de la lumière diffusée mesurée
 Q_{diff} : facteur de diffusion $h\nu$: énergie d'un photon η : rendement quantique

Prenons un exemple : laser argon $\lambda = 488\text{nm}$, distance particule - lentille : 60mm, $S_0 = 10^{-7} \text{ m}^2$, $d\Omega = 2,2 \times 10^{-5}$, $\eta = 0,5$. $N_{\text{photonélectrons}} = W_{\text{incident}} \times d^2 \times 2,1 \times 10^{21} \times Q_{\text{diff}}$

Prenons $W_{\text{incident}} = 0,001 \text{ J}$, pour une particule de $0,07\mu\text{m}$, d'indice complexe $1,5 - 5,1j$, $N_{\text{photonélectron}} = 1740$, ce qui permet d'avoir une bonne précision de mesure.

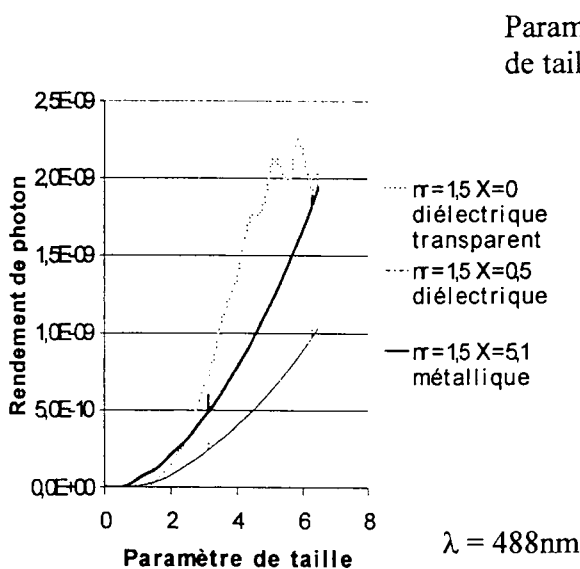


Figure 8 : Rendement de diffusion (nombre de photonélectrons / nombre de photons incidents)

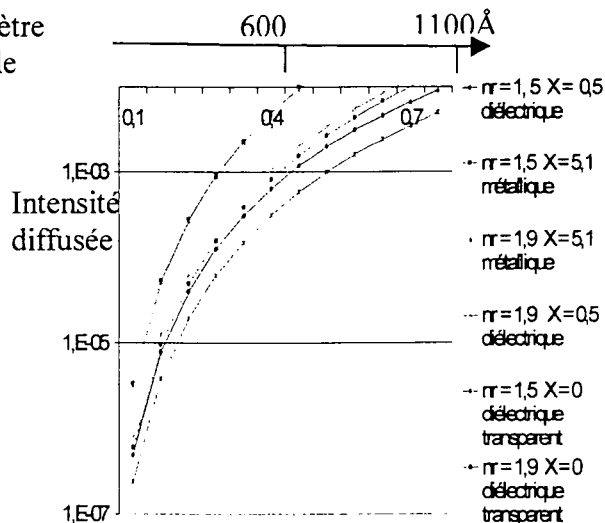


Figure 9 : Intensité diffusée à 84° en fonction du paramètre de taille de la particule

Pour augmenter l'énergie diffusée par les particules de taille très petite, on augmentera l'angle solide de mesure et α sera déterminé uniquement à partir du taux de polarisation dans la gamme $200\text{\AA} \sim 500\text{\AA}$.

3.3. Appareillage

Nous avons réalisé un nouvel appareillage centré sur une caméra Princeton (LN/CCD-400-EB 1340×400 pixels, 16 bits de dynamique), refroidie à l'azote liquide, ce qui permet d'avoir un bruit de lecture négligeable (3 électrons par pixel). La dynamique utilisable est donc de 25000, ce qui permet de mesurer avec précision l'intensité et le taux de polarisation de chaque particule. Le nuage de particules est illuminé par une diode laser ($\lambda = 0,67\mu\text{m}$) et l'image est décomposée en deux images polarisées par un polariseur de ROCHON. Le système a été testé sur des particules d'encens. Il est en développement pour être transportable (moins de 20 kg) sur différents sites urbains.

3. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

La mesure simultanée du taux de polarisation de la lumière diffusée et de l'intensité permet de visualiser position et taille de particules submicroniques ($200 \text{ \AA} < \text{Diamètre} < 10000 \text{ \AA}$). La dynamique et la sensibilité des caméras commercialisées récemment permettent d'utiliser simultanément à un angle donné de diffusion une mesure du taux de polarisation et une mesure de l'intensité. La précision sur la taille des particules est alors de l'ordre de $\pm 10\%$. En ajoutant une deuxième mesure angulaire, on détermine en plus, sans ambiguïté, l'indice réel de la particule à quelques pour cents près, ce qui est suffisant pour discriminer les particules diélectriques (minérales ou organiques), des particules métalliques qui sont souvent les plus dangereuses en terme de pollution.

Le nouvel appareillage va être utilisé systématiquement pour des études de la pollution urbaine (voies automobiles, transports publics...) et en milieu industriel (centrales thermiques, cimenteries...). Le développement des limites de l'appareillage va porter sur les effets de la non sphéricité des particules [9], c'est-à-dire sur la précision de la méthode dans le cas des particules oblongues. Enfin l'utilisation d'une très courte longueur d'onde, dans l'ultraviolet permettra d'augmenter le paramètre de taille et donc la précision de mesure pour les plus petites particules.

REFERENCES

- [1] A.KLEITZ, D. BOULAUD «Granulométrie des particules en mouvement et des aérosols» Techniques de l'Ingénieur» R. 2360
- [2] P.HERVÉ brevet « Procédé et appareil de mesure par voie optique, sans contact, de la granulométrie d'un nuage de particules ou de rugosité d'une surface » déposé en septembre 1987 Extension USA en 1988
- [3] M. KERKER «The scattering light» Academic Press 1969
- [4] HC. VAN DE HULST «Light scattering by small particles» 1957
- [5] P. HERVE, A. KLEITZ, A. HAMOUDA, B. LEPORCQ «Détermination of submicronic particle size distribution by means of polarized light» Journal of Aerosols Science, Vol 25, Sup 1, 1994
- [6] P. HERVE Brevet : « Procédé et dispositif pour déterminer la taille des particules microniques ou submicroniques » dépôt mai 1995
- [7] P. HERVE, L. AZIZI «Détermination de la taille de particules submicroniques par analyse de la polarisation d'un rayonnement diffusé» 11ème COFERA, PARIS, Décembre 1994
- [8] A. RIGUET « Télédétection des brouillards givrants » Thèse à soutenir en 2002
- [9] M.MISHCHENKO, J.HOVENIER, L.TRAVIS «Light Scattering by Nonspherical particles», Academic Press, 2000

ATOMISATION DE LIQUIDE :
POST-TRAITEMENT DES SERIES TEMPORELLES ISSUES DE JETS COMPLEXES

G. Boulnois * (1), W. Liu (2), S. Meunier-Guttin-Cluzel (1), G. Gouesbet (1) et G. Gréhan (1)

1)LESP/UMR CNRS 66146-CORIA
Université et INSA de Rouen,
Site du Madrillet,
Avenue de l'Université,
BP 12
76 801 Saint Etienne du Rouvray, France
Tel : 33 2 32 95 36 29
Fax : 33 2 32 95 37 94

2) Dept. Aerospace Technology,
National University of Defense Technology
Changsha, 41 00 73, Chine

La granulométrie phase Doppler permet de mesurer la taille et la vitesse (1, 2 ou 3 composantes) de gouttes liquides en écoulement. Ces mesures individuelles sont souvent présentées sous la forme d'histogrammes, représentés en fonction du temps ou post-traités avec des outils classiques tels que la FFT.

Cependant, de nombreux écoulements sont suffisamment complexes pour que ces outils ne permettent pas d'extraire une caractérisation utile (suffisante).

En illustrant notre propos par l'étude d'un jet créé par un atomiseur acoustique, nous introduirons des outils d'analyse issus de la dynamique des systèmes complexes (comme coupes de Poincaré, portraits de phase, ...)

Ces outils ont été implantés dans un logiciel convivial de post-traitement. Les performances de l'approche seront comparées à celles d'approches plus classiques type FFT.

ETUDE EXPERIMENTALE DES DEPOTS PAR THERMOPHORESE DE PARTICULES MICRONIQUES AU SEIN D'UNE CONDUITE DE SECTION RECTANGULAIRE

B. ASSAF, J.L. TANGUIER, M.O. RIGO, A. ZOULALIAN
LERMAB, UMR INRA 1093, Université Henri Poincaré Nancy I, BP 239, 54506 Vandoeuvre les
Nancy Cedex, France.

INTRODUCTION

Dans certains appareils industriels, la circulation des gaz chauds de combustion peut être accompagnée par des dépôts des particules en suspension sur les parties froides des installations. Ce phénomène peut être observé dans des échangeurs à plaques, des turbines à gaz, des chaudières et il est d'autant plus marqué que les fumées sont chargées de microparticules. Ces dépôts altèrent le bon fonctionnement des appareils par une réduction de leur rendement, l'apparition des points chauds, etc., et l'arrêt des installations devient nécessaire pour procéder au nettoyage des éléments encrassés, période durant laquelle le manque à produire peut s'avérer fort coûteux.

Parmi les phénomènes physiques à l'origine de ces dépôts, le phénomène de dépôt par thermophorèse peut être prédominant en présence des forts gradients de température. Une meilleure connaissance de ce phénomène permettra de mieux contrôler les dépôts et donc d'optimiser les périodes d'arrêt et d'entretien.

Dans ce travail, nous proposons d'étudier expérimentalement les paramètres qui régissent le déplacement de fines particules en suspension dans un gaz en présence d'un gradient de température dans un espace rectangulaire constitué de deux plaques planes parallèles distantes de 5 mm. Les deux plaques portées à des températures uniformes sont telles que le gradient de température entre les deux plaques est de 26000 K.m^{-1} . Le gaz circulant entre les plaques est de l'air chargé de microparticules de chlorure de sodium générées par l'intermédiaire d'une buse de pulvérisation. Les débits d'air sont choisis pour que l'écoulement entre les plaques soit laminaire.

Avant de donner une description plus complète du dispositif expérimental et des résultats expérimentaux, nous allons rappeler brièvement les lois physiques qui gouvernent les dépôts par thermophorèse.

PRINCIPE DE LA THERMOPHORESE

Lorsque de fines particules sont en suspension dans un gaz où règne un gradient de température, il est possible d'observer leur migration de la région la plus chaude vers la région la plus froide.

Comme l'a montré Maxwell [1], ce phénomène a pour origine les collisions entre les molécules du gaz porteur et les aérosols. Dans un écoulement, la face de la particule en regard de la surface chaude est choquée avec une fréquence plus élevée et par des molécules plus rapides que la surface en regard avec la surface froide. Ce déséquilibre en terme de quantité de mouvement ainsi que de flux moléculaire induisent une force dite de thermophorèse qui est responsable de la migration de la particule.

Dans son mouvement vers la surface froide, la particule est soumise à la force de traînée qui s'oppose à son déplacement. Ainsi, l'intensité de la force de thermophorèse sera fonction du gradient de température dans le gaz, de la masse volumique, de la viscosité et de la conductivité thermique du gaz.

LA FORCE DE THERMOPHORESE

D'après la théorie cinétique des gaz, la force de thermophorèse F_{th} est donnée par intégration de la variation de la quantité de mouvement, sur toute la surface de la particule, qui lui est transférée par les molécules de gaz. Pour quantifier cette force, Jacobsen [2] propose la relation :

$$\bar{F}_{Th} = - \int_S dS \left[\sum_{\pm} \int m \bar{V} f^{\pm} (\bar{V} \cdot \bar{n}) dv \right] \quad (1)$$

où les signes + et - indiquent respectivement les molécules quittant la surface de la particule ou s'impactant sur elle et f la fonction de distribution des vitesses de la molécule qui, d'après la loi de Maxwell [1], peut s'écrire :

$$f = \left(\frac{m}{2\pi k_B T} \right)^{3/2} \exp\left(- \frac{m \cdot V^2}{2 k_B T} \right) \quad (2)$$

La taille des particules concernées par notre étude ($1 < d < 10 \mu m$) est largement supérieure au libre parcours moyen des molécules du gaz porteur; ce qui conduit à un nombre de Knudsen $\ll 1$ donc à un régime de transport dit "continu" et pour lequel le mouvement des aérosols est décrit par les lois de la mécanique des fluides.

Dans ce cas précis, Epstein [3] a montré que les équations de Navier-Stokes peuvent être appliquées avec des conditions limites appropriées.

Talbot [4] et Waldman [5] proposent une relation qui intègre les termes convectifs de l'équation de la chaleur valable quel que soit le nombre de Knudsen :

$$F_{Th} = -12\pi \frac{\mu^2 \cdot C_s}{\rho \cdot T} r_p \left[\frac{k_g/k_p + C_t Kn}{(1 + 3C_m Kn)(1 + 2k_g/k_p + 2C_t Kn)} \right] \nabla T_{\infty} \quad (3)$$

Avec : $C_s = 1,147$ $C_t = 2,2$ $C_m = 1,146$

LA VITESSE DE THERMOPHORESE

Pour une particule sphérique soumise qu'aux forces de thermophorèse et de traînée et qui ne subit aucune accélération, Talbot [4] propose pour la vitesse de thermophorèse et quel que soit le nombre de Knudsen, la relation :

$$\bar{V}_{Th} = -K_{Tal} \frac{\mu}{\rho T} \bar{\nabla} T_{\infty} \quad (4)$$

Avec :

$$K_{Tal} = 2C_s \frac{(k_g/k_p + C_t Kn) C_u}{(1 + 3C_m Kn)(1 + 2k_g/k_p + 2C_t Kn)} \quad (5)$$

LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL

L'objectif principal de notre travail est d'étudier le dépôt, sur les parois d'un précipitateur de géométrie simple, de particules solides dont le diamètre est compris entre 1 et 10 μm qui sont véhiculées par un gaz porteur faiblement chargé et en écoulement laminaire.

L'étude bibliographique a montré que la taille des particules est un paramètre qui conditionne leur comportement dans un écoulement. Il est donc nécessaire de maîtriser cet aspect dimensionnel.

Pour limiter les phénomènes d'agglomération entre particules, nous avons retenu de travailler en atmosphère faiblement chargée avec des concentrations comprises entre 700 et 2000 particules par cm^3 .

Pour évaluer la force et la vitesse de thermophorèse, il est nécessaire de connaître les propriétés physiques des particules injectées. Nous avons choisi d'utiliser le chlorure de sodium (NaCl) qui a déjà été utilisé par plusieurs auteurs lors de travaux antérieurs. La génération de particules s'obtient assez facilement par pulvérisation d'une solution préalablement dosée "eau + NaCl" qui, après assèchement laisse des particules solides de NaCl en suspension dans le gaz porteur. Cette alternative autorise une

récupération des dépôts par simple rinçage des surfaces concernées et un comptage par dosage conductimétrique.

La conductivité thermique et le régime d'écoulement du gaz porteur sont également des paramètres importants quant au dépôt des particules. Nous avons donc opté pour une utilisation d'air purifié (séché et filtré) en écoulement laminaire ($100 < Re < 700$).

En ce qui concerne le précipitateur, la géométrie cylindrique circulaire est largement citée dans la littérature. Pour simplifier la modélisation des phénomènes dynamiques et thermiques, nous avons choisi une géométrie rectangulaire qui s'apparente à un certain nombre de configurations courantes dans l'industrie (gaine de ventilation, échangeurs à plaques, ...).

Notre dispositif est donc constitué de deux plaques parallèles, l'une étant chauffée et l'autre refroidie de manière à établir le gradient thermique responsable du phénomène de thermophorèse.

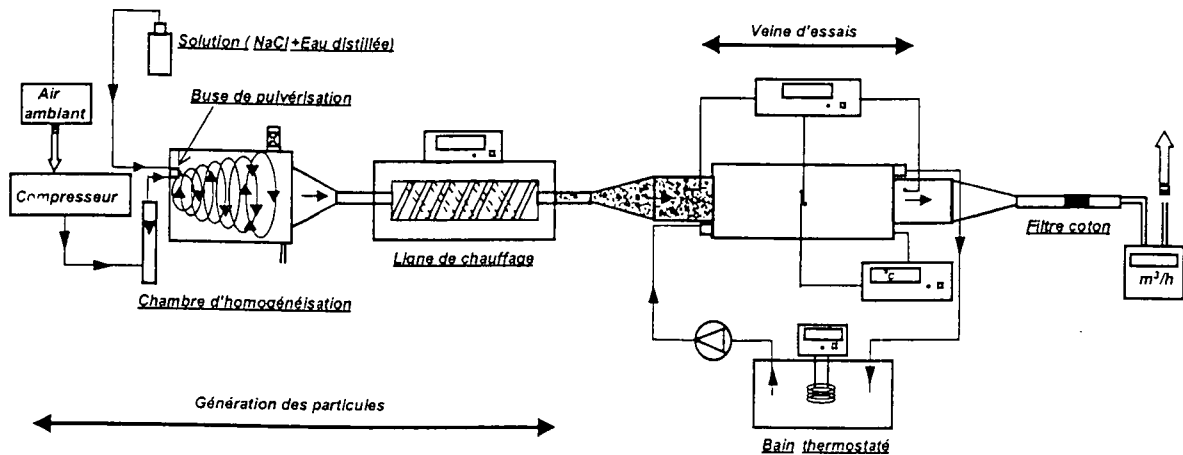


Figure 1 Schéma du banc expérimental

Ces éléments importants ont conditionné les choix techniques qui ont permis de concevoir et de réaliser notre banc expérimental. En particulier, nous détaillons, dans les paragraphes suivants, le système de génération des particules, la veine d'essai proprement dite ainsi que les moyens de mesure employés.

GENERATION DES PARTICULES

L'air nécessaire à l'alimentation de la buse d'injection des particules est fourni par un compresseur. Il est filtré et asséché et son débit, qui est ajusté par une vanne de précision, est contrôlé par un débitmètre à flotteur dont la gamme de mesure s'étend de $0,65$ à $6,5 \text{ Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$.

Le système de pulvérisation est constitué d'une buse à jet plat qui fonctionne avec un débit d'air nominal de $4 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ et qui aspire un flux d'eau salée à concentration constante de $100 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$.

La buse de pulvérisation est placée dans une chambre d'homogénéisation de forme cylindrique et de dimension adaptée à celle du jet de la buse. Cette enceinte est pourvue d'une vanne d'échappement qui permet de régler le débit de gaz qui traversera le précipitateur placé en aval.

La ligne de chauffage, placée en aval du précipitateur, a pour objet d'assécher le flux d'air pour transformer les gouttelettes d'eau salée en un aérosol de NaCl sec et de le porter à une température identique à celle de la plaque chaude ($160 \text{ }^\circ\text{C}$) à l'entrée de la veine d'essai.

LA VEINE D'ESSAI

Il s'agit du cœur de notre dispositif (filtre thermique ou zone de dépôt) qui est constitué de deux plaques parallèles assemblées de manière à former un canal plan de 5 mm de côté et de un mètre de longueur, figure 2.

La plaque chaude est réalisée à partir d'une feuille d'INVAR profilée car il présente un coefficient de dilatation thermique faible tout en gardant une bonne conductivité thermique. Le chauffage de la plaque est assuré par une nappe chauffante collée sur l'extrados de celle-ci. Elle est dimensionnée de façon à pouvoir atteindre la température de $200 \text{ }^\circ\text{C}$. L'ensemble est isolé de l'ambiance et la plaque est équipée de thermocouples (type K, chemisés de $0,5 \text{ mm}$ de diamètre) pour vérifier que la répartition de température est homogène dans l'espace et constante dans le temps.

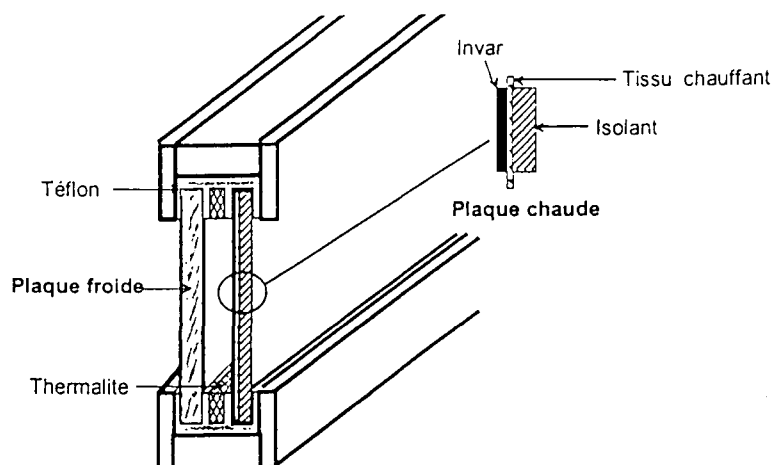


Figure 2 La zone de dépôt - Détail du montage

La plaque froide, qui est destinée à recevoir le dépôt de NaCl, doit présenter un rugosité aussi faible que possible pour ne pas piéger mécaniquement les particules. Il s'agit d'une "boite à eau", réalisée en laiton dont la face sensible a subi un poli miroir avant d'être revêtue d'une couche de Nickel déposé électro-chimiquement pour assurer la longévité de cet aspect de surface.

La distance entre les deux plaques et donc le gradient thermique est garanti par une cale d'épaisseur réalisée en "thermalite" de 5 mm d'épaisseur qui a également pour rôle de limiter les échanges thermiques entre les deux plaques.

EQUIPEMENTS DE MESURE

> **LE FILTRE DE RECUPERATION** est constitué d'un tube en acier inoxydable contenant une masse connue de coton compact. La masse de sel recueillie est obtenue par simple pesée du coton.

> **LE DEBIT DE GAZ PORTEUR** est mesuré par un compteur à gaz "GALLUS" (0,06 à 10 Nm³.h⁻¹) qui est placé après le filtre de récupération.

> **LE CONDUCTIMETRE** permet de mesurer la conductivité de la solution d'eau de rinçage des différents éléments constitutifs du banc d'essai et en particulier la plaque froide. Après étalonnage, nous obtenons la concentration de la solution et la masse de sel connaissant le volume de la solution.

RESULTATS EXPERIMENTAUX

La durée de l'essai correspond à l'alimentation de la totalité de la solution d'eau salée (soit 100 g de NaCl). La masse de sel recueillie dans la chambre d'homogénéisation représente plus de 90 % de la masse totale. Les masses déposées dans les différents éléments : divergent, zone entre les deux plaques, convergent et filtre permettent connaissant la durée des essais d'évaluer le flux des particules déposées sur ces quatre éléments. Nous portons en particulier sur la figure 3, le flux de particules déposées sur la plaque froide, soit \dot{m}_p en fonction de la vitesse de la phase gazeuse. De même, ces grandeurs permettent d'estimer le flux de particules alimentant l'espace entre les deux plaques, soit \dot{m}_e (figure 4). Connaissant \dot{m}_p et \dot{m}_e , l'efficacité de dépôt entre les deux plaques est égale à \dot{m}_p / \dot{m}_e .

Les valeurs de l'efficacité sont reportées sur la figure 5 comprises entre 4 et 14 % elles diminuent au fur et à mesure que l'on augmente la vitesse de la phase gazeuse

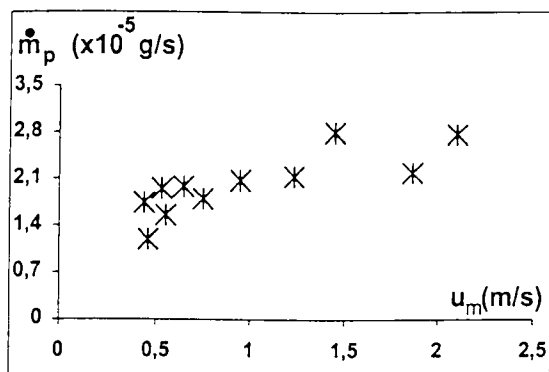


Figure 3 Variation de \dot{m}_p en fonction de u_m

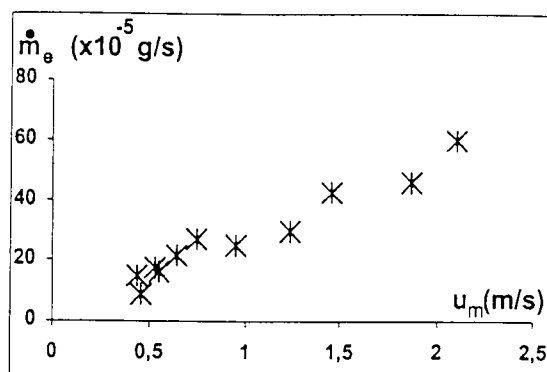


Figure 4 Variation de \dot{m}_e en fonction de u_m

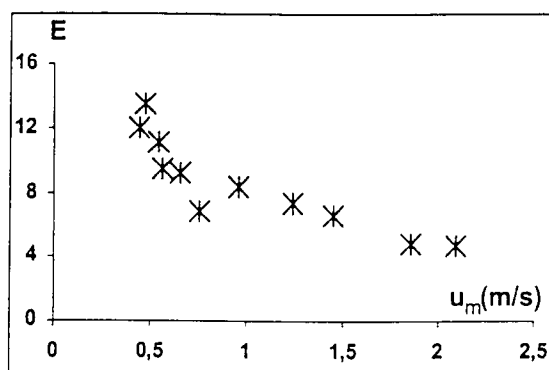


Figure 5 Variation de l'efficacité en fonction de u_m

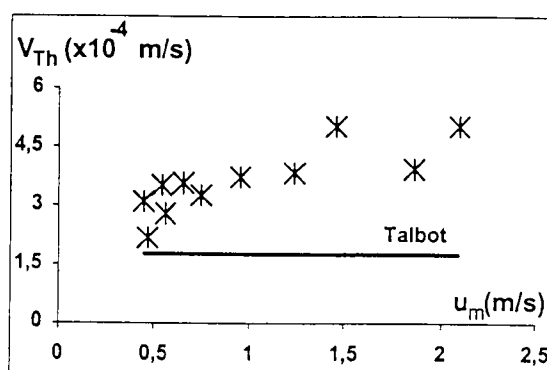


Figure 6 Variation de V_{Th} en fonction de u_m

DISCUSSION

Le dépôt des particules dans l'espace entre les deux plaques est dû uniquement au phénomène de thermophorèse ?

Pour répondre à cette question nous avons évalué l'efficacité de dépôt par viscophorèse dû à l'écoulement laminaire entre les deux plaques. En admettant que le transport des particules se fait par diffusion Brownienne, il est possible d'évaluer l'efficacité du dépôt en écoulement laminaire dans une conduite rectangulaire. Dans nos conditions opératoires, l'efficacité peut être estimée à l'aide de la relation :

$$E_{\text{visc}} = 4,07 \left(\frac{LD_B}{u_m D_H^2} \right)^{2/3} \quad (6)$$

où D_B est le coefficient de diffusion brownien et D_H le diamètre hydraulique de la conduite. Pour une vitesse moyenne de 1 m/s, E_{visc} est égale à 0,1 % aussi dans nos conditions opératoires, les efficacités mesurées correspondent bien au phénomène de thermophorèse.

Une vitesse moyenne de thermophorèse peut être évaluée à partir du flux de particules déposées en écrivant que :

$$\dot{m}_p = V_{Th} \times \bar{C}_p \quad (7)$$

où \bar{C}_p représente la concentration moyenne des particules entre l'entrée et la sortie de la zone d'étude. Les valeurs de V_{Th} ainsi calculées sont réportées sur la figure 6.

A partir des caractéristiques géométriques et des propriétés physiques de l'écoulement et des particules, il est possible d'évaluer une vitesse limite de thermophorèse à l'aide de la relation de Talbot.

La valeur trouvée : $V_{Th} = 1,77 \cdot 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$ est nettement inférieure aux valeurs estimées à l'aide de la relation (7) qui ne prend pas en compte la thermohydraulique réelle de l'écoulement gazeux dans

l'espace entre les deux plaques. L'exploitation des mesures expérimentales à l'aide d'un modèle admettant le profil de vitesse parabolique de l'écoulement laminaire et la distribution calculée de températures entre les deux plaques conduit aux valeurs de vitesse de thermophorèse représentées sur la figure 7. Le modèle permet d'obtenir une vitesse de thermophorèse indépendante de la vitesse de l'écoulement et tout à fait compatible avec la vitesse de thermophorèse donnée par la relation de Talbot. Une bonne représentation de la thermohydraulique s'avère donc indispensable pour une estimation précise d'un dépôt par thermophorèse.

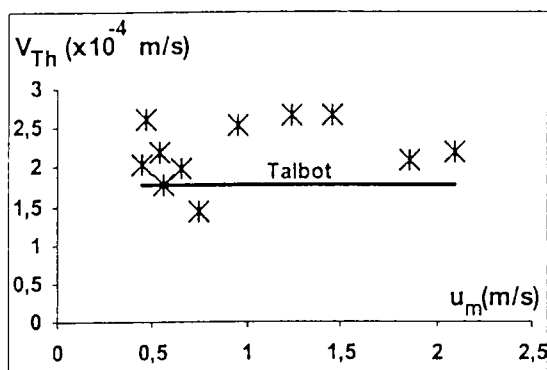


Figure 7 Variation de V_{Th} calculée à l'aide d'un modèle représentatif de la thermohydraulique.

CONCLUSION

Le dispositif expérimental conçu a permis de mesurer des dépôts d'aérosols par thermophorèse en écoulement laminaire. Dans nos conditions opératoires les efficacités mesurées restent faibles et les valeurs trouvées ne sont compatibles avec les valeurs calculées avec la formulation de Talbot qu'à condition de représenter au mieux la thermohydraulique de la phase gazeuse dans la zone de dépôt.

REFERENCES

- [1] KENNARD EARLE H., *Kinetic Theory of Gases*, McGRAW-HILL, New York, pp. 295-292, 1938.
- [2] JACOBSEN S. and BROCK J.R., « *The Thermal Force on Spherical Sodium Chloride Aerosols* », vol. 20, pp. 544-554, 1965.
- [3] EPSTEIN Paul S., *Zur Theorie des radiometers*, *Z. Physik*, vol. 54, pp. 537-563, 1929.
- [4] TALBOT L., CHENG R. K., SCHEFER R. W. and WILLIS D. R., « *Thermophoresis of Particles in a Heated Boundary Layer* », *J. Fluid Mech.*, vol. 101, pp. 737-758, 1980.
- [5] WALDMANN L. Z. and SCHMITT K. H., « *Thermophoresis and Diffusiophoresis of Aerosols* », *Aerosol Science*, Davies C. N. Ed. Academic Press, London, Chap. VI, pp. 137-162, 1966.

MESURE DU REENTRAINEMENT PAR ECOULEMENT D'AIR D'UN DEPOT DE POUVRE POLYDISPERSEE

L. ALLOUL-MARMOR^{1,2}, O. WITSCHGER¹, A. RENOUX², J. MONNATTE³

¹Institut 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.

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

³COGEMA
Direction Sûreté Sécurité Qualité
1, rue des Hérons, 78182 Saint Quentin en Yvelines Cedex.

TITLE

MEASUREMENT OF PARTICLE REENTRAINMENT FROM A POWDER DEPOSIT IN AN HORIZONTAL AIRFLOW

ABSTRACT

Particles reentrainment from a deposit by a turbulent airflow is important in many disciplines like nuclear safety, environmental air pollution, sediment transport by wind or surface contamination in semiconductor operations.

A number of theoretical and experimental studies on different aspects of the particle reentrainment phenomenon have been conducted in the past. However, despite of these numerous and diverse investigations, the knowledge is still in an elementary stage about reentrainment of polydisperse particles from a cone-shaped deposit exposed to an horizontal turbulent airflow. Therefore, a program of experiments (BISE) has been carried out in which the reentrainment of polydisperse particles of different sizes (mean diameter in the range from 5 to 60 μm) from a cone-shaped deposit exposed to an horizontal airflow (air velocity in the range 0,5 to 10 m/s) has been studied.

The influence of 8 factors (the particle size distribution, the powder humidity, the surface roughness, the dimension of the cone-shaped deposit, the air velocity, the duration of the experiment and the air acceleration) on the reentrainment has been investigated using the designs of experiments. Results from this study indicate that the relevant factors are the air velocity and the particle size distribution with a strong interaction between both factors. The powder humidity and the air acceleration are secondary factors. Based on our results, a semi-empirical formula which describes the reentrained fraction as a function of a dimensionless particle diameter, is proposed.

RESUME

Le réentrainement par écoulement de l'air de particules déposées sur une surface est un sujet complexe qui intervient dans de nombreux domaines tels que la sûreté nucléaire, la pollution de l'air, le transport éolien de particules ou bien la contamination de surface dans le domaine de la microélectronique.

Ce processus de mise en suspension, c'est à dire le détachement des particules puis leur envol dans l'écoulement libre, a suscité et suscite encore de nombreuses études théoriques et expérimentales. Si la connaissance du phénomène est relativement claire dans le cas d'une particule sphérique déposée sur une surface plane et exposée à un écoulement turbulent, celle-ci s'obscurcit lorsqu'on l'on prend en compte les paramètres relatifs au dépôt de particules, aux particules de la poudre, à la surface d'essai, à l'écoulement d'air ou au milieu ambiant.

Une installation expérimentale dénommée BISE (Banc de mise en Suspension par Ecoulement) a été conçue et réalisée au laboratoire afin d'étudier le réentrainement d'un dépôt de poudre constituée de particules polydispersées (diamètre médian compris entre 5 et 60 μm), exposé à un écoulement d'air horizontal dont la vitesse est comprise entre 0,5 et 10 m/s.

Les effets relatifs de 8 paramètres (la granulométrie de la poudre, la teneur en H_2O de la poudre, la masse volumique tassée, les dimensions du cône de poudre, la rugosité de la surface, la vitesse de l'air, la durée d'exposition à l'écoulement d'air et l'accélération au démarrage) sur le réentrainement ont été étudiés suivant une démarche expérimentale basée sur les plans d'expériences. Les résultats de cette étude indiquent que la vitesse, la granulométrie, ainsi qu'une forte interaction entre ces deux paramètres, sont prépondérants sur le phénomène. La teneur en H_2O de la poudre et l'accélération sont, quant à eux, des paramètres secondaires. A partir de ces données expérimentales, une corrélation semi-empirique décrivant la fraction réentraînée a été élaborée. Cette corrélation intègre un paramètre adimensionnel fonction de la vitesse de frottement et du diamètre médian de la poudre considérée.

Introduction

La mise en suspension par écoulement d'air de particules déposées sur une surface ou réentraînement, est un sujet complexe qui intervient dans de nombreux domaines. Parmi les plus importants, on peut citer le contrôle de la pollution de l'air et la contamination de surface en microélectronique. D'autres applications spécifiques existent telles que le transport éolien de poussières minérales, ou bien encore le cycle du combustible nucléaire. Cette dernière application est l'objet de notre étude.

Dans le domaine nucléaire, l'évaluation des conséquences d'une situation incidentelle pose des questions de sûreté spécifique. Entre autre, en cas d'incident, des matières radioactives sont susceptibles d'être mises en suspension dans les locaux confinés ou ventilés et ainsi, d'être transférées jusqu'aux voies de rejet à l'environnement et atteindre l'homme. Le phénomène de mise en suspension qui correspond au détachement des particules puis à leur envol dans l'écoulement libre a suscité un grand nombre d'études théoriques et expérimentales (Ziskind *et al.*, 1995) notamment ces dix dernières années. Mais si le cas d'une particule sphérique isolée sur une surface plane dans un écoulement turbulent est relativement bien connu dans la littérature scientifique, une étude bibliographique (Alloul *et al.*, 1999) montre que le niveau de connaissance actuelle sur le réentraînement de particules issues d'un tas de poudre polydispersée qui a été exposé à un écoulement d'air turbulent, est faible. Notamment, il ne permet pas de quantifier ce réentraînement en terme de coefficient ou de fraction mise en suspension. De plus, on ne connaît pas les facteurs qui ont un effet sur ces coefficients. Or, dans le cadre des études de sûreté, ces coefficients sont indispensables puisqu'ils permettent de calculer, à partir d'un terme potentiellement dispersable (ex : un tas de poudre), la quantité de matière susceptible d'être réellement dispersée. C'est pourquoi, nous nous proposons d'étudier cette situation illustrée par la Figure 1, en adoptant une approche macroscopique.

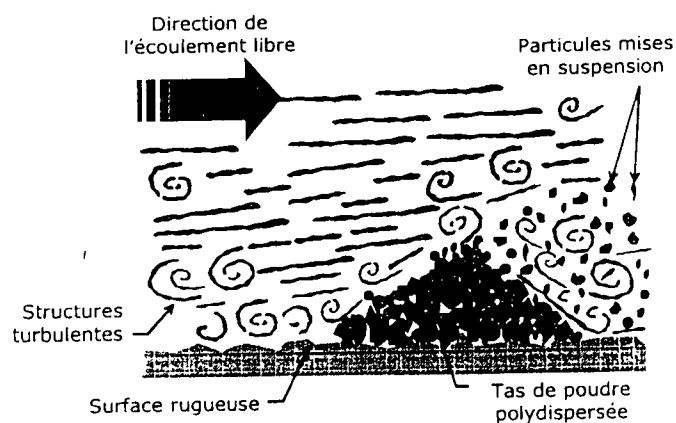


Figure 1 – Représentation schématique de la mise en suspension de particules d'un dépôt de poudre exposé à un écoulement d'air turbulent.

Cette figure illustre que le réentraînement d'un dépôt de poudre est un phénomène multi-paramètre complexe. Notre travail vise donc, à rechercher les différents paramètres fondamentaux qui gouvernent le processus de mise en suspension d'un dépôt de poudre constituée de particules polydispersées exposé à un écoulement d'air horizontal turbulent et à quantifier leurs effets. Dans un second temps, nous nous proposons d'élaborer une corrélation semi-empirique qui soit facilement exploitable en terme de coefficient de mise en suspension ; ceci en décrivant le réentraînement à partir d'un paramètre adimensionnel issu de notre travail expérimental.

Dans des études précédentes (Alloul *et al.*, 1999 ; 2000), nous avons décrit l'installation BISE (Banc de mise en Suspension par Ecoulement) conçue et réalisée au laboratoire afin de conduire nos expériences. Dans un premier temps, les performances aérodynamiques de BISE ont été étudiées dans le but de bien caractériser l'écoulement à proximité du tas de poudre. Une méthodologie expérimentale de mesure de la fraction réentraînée K_{REENT} définie comme le rapport de la quantité de matière réentraînée sur la quantité de matière initiale, a été évaluée : elle a montré que notre méthode conduit à une limite de détection de $2 \cdot 10^{-5}$ (ceci pour une masse initiale de 5 g de poudre) ainsi qu'à une bonne répétabilité des mesures (coefficient de variation de 30 %). Enfin, les premières expériences réalisées sur la base de plans d'expériences ont permis d'apprécier les effets principaux de huit paramètres retenus sur la mise en suspension. Nos résultats mettent en évidence que, dans la gamme expérimentale étudiée, la vitesse et la granulométrie, ainsi qu'une forte interaction entre ces deux paramètres, sont les paramètres les plus influents sur la mise en suspension. D'autres expériences ont été effectuées par la suite. Nous présentons ici un bilan synthétique de l'étude expérimentale réalisée sur les effets relatifs de l'ensemble de ces huit paramètres sur le réentraînement. Après une comparaison de nos résultats expérimentaux avec un modèle microphysique récent de la littérature, nous décrivons l'analyse effectuée pour élaborer une corrélation semi-empirique du réentraînement. Cette corrélation adimensionnelle est ensuite présentée et son domaine de validité, discuté.

Installation BISE et premiers résultats expérimentaux

Pour mener à bien nos expériences, une installation expérimentale spécifique BISE (Banc de mise en Suspension par Ecoulement) a été conçue et réalisée au laboratoire. Ce dispositif d'environ 5 mètres de long fonctionne en circuit ouvert. L'air circule par aspiration dans le banc grâce à une pompe à vide située en aval de BISE. La zone principale de l'installation est constituée d'une veine d'air parallélépipédique de 40 cm de long, 12 cm de large et 7 cm de haut. En sortie de cette veine parallélépipédique se trouve une surface d'essai sur laquelle est déposée la poudre test. Cette surface d'essai en aluminium est circulaire (4 cm de diamètre) et amovible. La Figure 2 présente le schéma de notre installation.

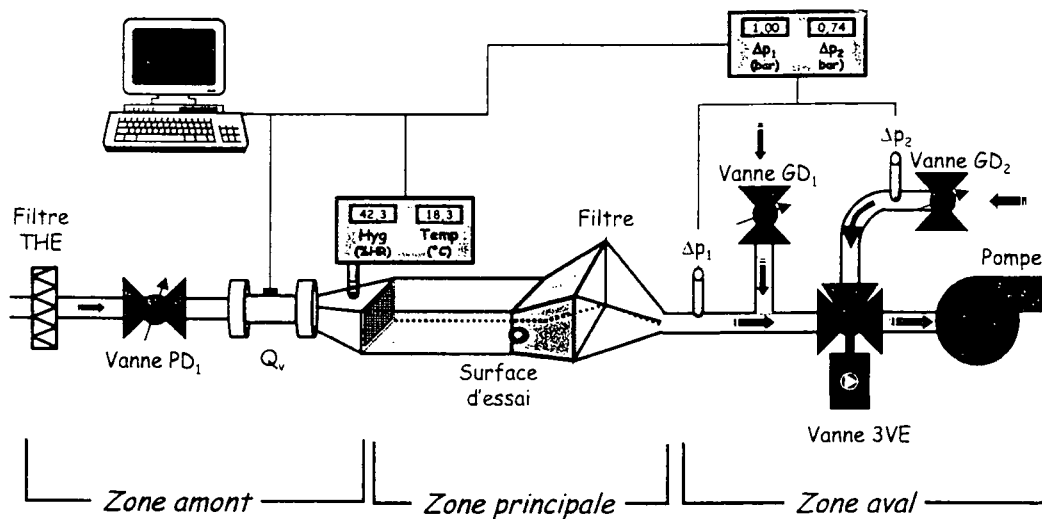


Figure 2 – Schéma de l'installation expérimentale BISE (Banc de mise en Suspension par Ecoulement).

Ce dispositif permet de travailler dans des conditions de vitesses d'air variant entre 0,1 et 10 m/s. L'étude aéroulque de l'installation réalisée avait pour but essentiel de caractériser les champs de vitesse et de turbulence de la veine au niveau de la zone du dépôt de poudre, et également de déterminer les vitesses de frottement v_f caractéristiques de l'installation à partir d'une caractérisation de la couche limite (Alloul *et al.*, 2000).

Afin de réaliser notre étude, nous nous sommes proposés d'effectuer des expériences que nous qualifions de semi-globales, afin que les coefficients déterminés dans notre travail soient directement utilisables. A partir de notre étude bibliographique et compte tenu des contraintes techniques de l'installation BISE (Alloul-Marmor *et al.*, 2001), huit paramètres susceptibles d'influencer la mise en suspension ont été retenus pour notre étude. Devant le nombre important de paramètres à étudier, une méthodologie expérimentale basée sur les plans d'expériences a été adoptée. Cette approche statistique a l'avantage de réduire le nombre d'expériences à réaliser tout en optimisant les résultats. Les huit paramètres retenus sont les suivants :

- la distribution granulométrique des particules caractérisée par son diamètre médian d_{50} ,
- la masse volumique tassée de la poudre,
- la teneur en eau de la poudre,
- les dimensions du cône 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 au démarrage de l'écoulement d'air.

L'analyse statistique effectuée sur une première série d'expériences a permis d'apprécier l'influence relative des paramètres principaux de mise en suspension. Elle montre clairement que la vitesse et la granulométrie ont une contribution très significativement supérieure à celles des six autres facteurs ; ces deux paramètres ont donc un rôle prépondérant sur le réentraînement.

De plus, une forte interaction positive entre ces deux paramètres est apparue. Afin d'étudier de façon plus fine l'évolution de la fraction réentraînée en fonction de la vitesse et de la granulométrie, une étude spécifique de ces deux paramètres sur le réentraînement a été effectuée.

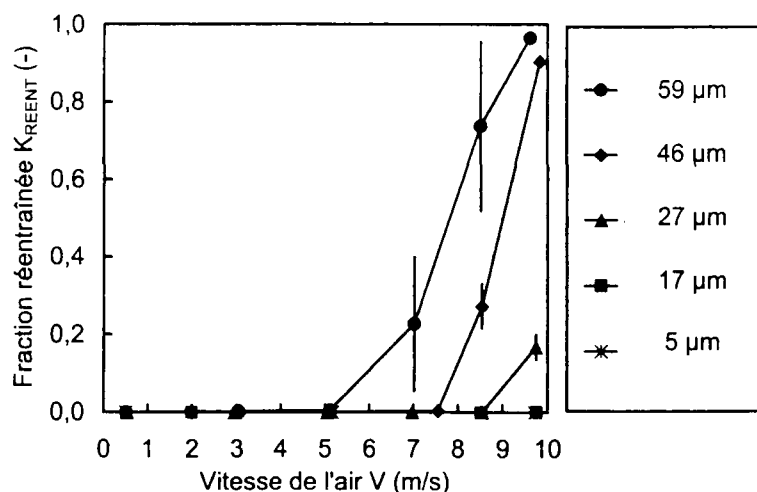


Figure 3 – Evolution de la fraction réentraînée en fonction de la vitesse de l'air pour différentes tailles de particules

La Figure 3 montre l'évolution de la fraction réentraînée K_{REENT} en fonction de la vitesse d'air dans BISE pour cinq distributions granulométriques de poudre d' Al_2O_3 . Les fractions réentraînées sont représentées avec un intervalle de confiance à 1σ pour des durées d'exposition à l'écoulement de 15 min. Les différentes poudres sont caractérisées sur la figure par leur diamètre médian équivalent en volume. Elles ont toutes un écart type géométrique de l'ordre de 1,3 : les poudres ont donc des distributions granulométriques faiblement dispersées.

L'analyse de ce graphe nous amène à faire plusieurs commentaires :

- Le réentraînement d'un dépôt de poudre, de forme conique est un phénomène à seuil. En effet, à granulométrie constante, la mise en suspension n'a lieu qu'à partir d'une certaine vitesse critique correspondant à une vitesse seuil de réentraînement.

- Ce seuil de vitesse est dépendant de la taille des particules : on observe que plus la taille des particules augmente, plus la vitesse seuil de réentraînement diminue. Ainsi, l'effet de la vitesse sur la mise en suspension est d'autant plus grande, que la granulométrie de la poudre est grande ; ceci dans notre domaine expérimental. Ce résultat est conforme à la physique de l'adhérence.

- Enfin, le phénomène de réentraînement s'étend sur plusieurs ordres de grandeur. En effet, la fraction réentraînée représentée ici sur une échelle linéaire, ne permet pas de décrire correctement l'évolution de la mise en suspension notamment pour les faibles vitesses. Or dans BISE, la limite de détection obtenue nous permet de mesurer des fractions mises en suspension de l'ordre de 10^{-5} . Ainsi, une représentation semi-logarithmique du phénomène permet de décrire le réentraînement sur six ordres de grandeurs.

Bilan expérimental sur les effets des paramètres retenus

Afin d'étudier l'influence relative des six autres paramètres apparus non significatifs devant la forte influence de la vitesse et de la granulométrie dans notre travail précédent, nous avons conduit une nouvelle série d'expériences pour des valeurs fixées de vitesse et granulométrie. Ainsi, une analyse sur l'ensemble des données expérimentales a permis d'apprécier deux paramètres de réentraînement dits « secondaires » : il s'agit de la teneur en eau de la poudre et de l'accélération au démarrage de l'écoulement. Ces deux paramètres ont une influence non négligeable sur la mise en suspension après l'effet important de la vitesse et de la granulométrie et dans certaines conditions dont nous reparlerons. Nous avons noté que :

- Lorsque la poudre contient environ 1 mgH_2O/g de poudre (i.e. poudre telle qu'elle nous a été livrée), le réentraînement est plus faible que pour une poudre sèche (i.e. 0 mgH_2O/g). Ceci s'explique par une diminution des forces d'adhérence due à une diminution des forces de capillarités dans le cas d'une poudre sèche. Ainsi, le réentraînement correspondant au rapport des forces aérodynamiques sur les forces d'adhérence, en est augmenté.

- La fraction réentraînée augmente avec l'accélération au démarrage de l'écoulement d'air. Cette dernière correspond donc au temps de mise en vitesse de l'air dans l'installation. Des durées d'exposition très courtes (30 s) associées à de faibles accélérations ($0,3 m/s^2$) ont donc pour conséquence de réduire le temps d'exposition à la vitesse réelle imposée. Dans ces conditions, on observe une diminution de la fraction réentraînée. Quant aux fortes accélérations, elles sont probablement responsables d'un effet de souffle créant une turbulence additionnelle dans la veine ; ceci aurait pour conséquence une augmentation de la fraction mise en suspension.

Le Tableau 1 récapitule les différents effets des paramètres retenus et présente les domaines d'études pour lesquels ces facteurs ont été étudiés dans BISE :

Tableau 1 – Classement des paramètres et domaines expérimentaux dans BISE

	PARAMETRES	DOMAINE EXPERIMENTAL
PRIMAIRES	Vitesse de l'air	0,5 à 10 m/s
	Granulométrie de la poudre d' Al_2O_3	5 à 59 μm ($\sigma_g = 1,3$)
SECONDAIRES	Accélération de l'air	0,3 à 30 m/s^2
	Teneur en H_2O de la poudre	0 et 1 mgH_2O/g
NON SIGNIFICATIFS	Durée d'exposition	30 s à 60 min
	Forme du tas	Cône - Obélisque - Galette
	Rugosité de la surface	0 à 12,5 μm
	Masse volumique tassée de la poudre	1,5 à 2 g/cm^3

D'après ce tableau, quatre paramètres, à savoir la durée d'exposition, la forme du tas, la rugosité de la surface et la masse volumique de la poudre ont un effet non significatif sur le réentraînement. Toutefois, les influences négligeables de la durée d'exposition et de la forme du tas nous interpellaient. C'est pourquoi, nous avons conduit des expériences spécifiques de ces deux facteurs sur le réentraînement. Il ressort que :

- Au-delà d'une durée d'exposition de deux minutes, la fraction mise en suspension tend à se stabiliser vers une valeur limite,

- Pour les trois types de forme de tas étudiée, l'influence de celle-ci intervient au-delà d'une vitesse caractéristique (égale à environ 8 m/s pour une poudre de 46 μm). Cette vitesse correspond à l'apparition de la phase de déformation du dépôt. Cette phase apparaît dès lors que la fraction mise en suspension est supérieure à environ 10 % de la masse de poudre initiale. On constate alors que le réentraînement augmente avec la hauteur du dépôt.

Cependant, devant l'influence très forte des paramètres primaires (vitesse - granulométrie) puis secondaires (accélération - teneur en H_2O), les effets de la durée d'exposition et de la forme du tas ne sont pas significatifs dans nos conditions expérimentales.

Comparaison à un modèle théorique

Bien que nos résultats soient issus d'une approche macroscopique, il nous semblait important de pouvoir confronter nos données à un modèle de réentraînement microphysique.

Publié très récemment, le modèle de Biasi *et al.* (2001) traite le cas du détachement d'une particule sphérique isolée et déposée sur une surface rugueuse, suivant un mouvement d'oscillations de la particule autour des aspérités de la surface. Cette approche fort prometteuse, suggère que le réentraînement est un phénomène quasi-statique (du fait qu'à partir d'une période très courte, la mise en suspension n'évolue pratiquement plus). D'autre part, ce modèle a été confronté à des résultats expérimentaux acquis pour des tailles de particules comprises entre 0,1 et 30 μm et ce, pour deux types de dépôt : monocouche et multicouche. C'est pourquoi sa comparaison avec notre étude nous semblait fort intéressante. La Figure 4 présente les résultats de cette analyse.

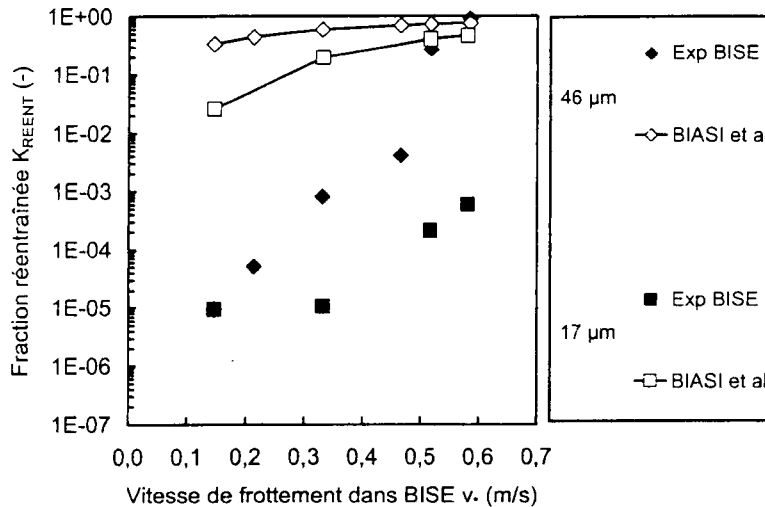


Figure 4 – Comparaison des résultats expérimentaux de BISE avec le modèle de Biasi *et al.* (2001) pour des dépôts de poudre

La Figure 4 décrit la fraction réentraînée en échelle logarithmique en fonction de la vitesse de frottement $v.$ dans l'installation. On observe sur ce graphique, les résultats expérimentaux obtenus dans BISE pour les tailles de particules de 17 et 46 μm , ainsi que les valeurs de fractions mises en suspension, calculées avec le modèle de Biasi *et al.*. Cette représentation de la fraction réentraînée confirme bien que, dans le cas d'un dépôt de poudre conique, le phénomène de mise en suspension s'étale sur plusieurs ordres de grandeurs. D'autre part, on remarque clairement que le modèle de Biasi *et al.* ne décrit pas correctement les données expérimentales de BISE, notamment pour les faibles vitesses. En effet, nos résultats sont sous-estimés d'au moins deux ordres de grandeurs.

Il s'avérerait donc nécessaire pour nous de développer une corrélation semi-empirique permettant de décrire le réentraînement par écoulement d'air d'un dépôt de poudre.

Elaboration d'une corrélation semi-empirique

Afin d'élaborer une corrélation semi-empirique de la mise en suspension à partir de nos résultats expérimentaux, nous nous sommes basés sur une approche simplifiée du réentraînement : le bilan des forces. Celui-ci suggère que le réentraînement d'une particule déposée sur une surface a lieu lorsque le rapport des forces aérodynamiques sur les forces d'adhérence dépasse une valeur seuil correspondant à une vitesse critique. Autrement dit, la particule est détachée de la paroi lorsque les forces aérodynamiques sont supérieures aux forces d'adhérence qui agissent sur la particule.

Les forces aérodynamiques sont des forces proportionnelles à des puissances de la taille des particules d_p et de la vitesse d'écoulement V . Les forces d'adhérences sont, quant à elles, uniquement proportionnelles à une puissance de d_p . En admettant que la fraction réentraînée correspond au rapport de ces deux types de forces, on peut donc supposer que la fraction réentraînée doit être fonction de la taille des particules mais également de la vitesse de l'écoulement.

Dans la littérature et notamment dans le domaine du réentraînement, il existe un paramètre adimensionnel qui intègre ces deux paramètres. Il s'agit du diamètre adimensionnel d_{50+} défini suivant la relation :

$$d_{50+} = \frac{d_{50} \cdot v_*}{\nu} \quad (1)$$

où ν est la viscosité cinématique de l'air.

Ce paramètre nous semblait donc bien adapté à notre étude puisque, en plus d'intégrer la granulométrie de la poudre et la vitesse de l'air par l'intermédiaire de la vitesse de frottement, il traduit l'interaction de ces deux paramètres par leur produit. A partir de ce diamètre adimensionnel, nous avons effectué une régression sur l'ensemble de nos points expérimentaux. Le résultat de cette analyse nous permet d'obtenir la corrélation semi-empirique suivante :

$$K_{REENT} = 6,4 \cdot 10^{-3} \cdot (d_{50+})^{5,7} \quad (2)$$

Cette corrélation a alors été comparée à nos données expérimentales. Le graphe de la Figure 5 décrit la fraction réentraînée obtenue expérimentalement en fonction de celle prédit par la corrélation.

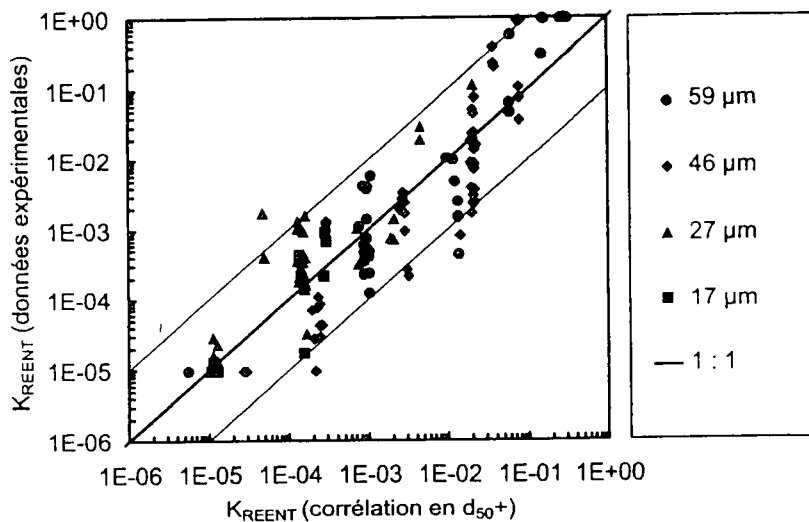


Figure 5 - Fraction réentraînée expérimentale en fonction de la fraction réentraînée calculée à partir de la corrélation

Ce graphe met en évidence que notre corrélation semi-empirique décrit correctement nos résultats expérimentaux dans un intervalle de \pm un ordre de grandeur. Ces limites sont représentées sur la Figure 5 par les deux droites pointillées qui encadrent la corrélation. Dans ces conditions, 90 % de nos résultats expérimentaux sont inscrits dans cet intervalle.

Validité de la corrélation et discussion

Cette corrélation, fonction des deux paramètres primaires du réentraînement, est valable sur l'ensemble du domaine expérimental de BISE décrit dans le Tableau 1, pour des tailles de particules comprises entre 17 et 59 μm et pour des durées d'exposition ≥ 2 min.

Toutefois, dans la zone où apparaît la déformation du dépôt estimée à $0,9 \leq d_{50+} \leq 1,5$, le phénomène de mise en suspension est difficilement maîtrisable et un paramètre peu influent pour de très faibles ou très fortes fractions réentraînées peut alors avoir un rôle non négligeable sur la mise en suspension. C'est le cas des deux paramètres secondaires mis en évidence dans notre étude expérimentale, notamment lorsqu'ils sont égaux aux valeurs limites de leur domaine expérimental. Des expériences effectuées dans ces conditions sont présentées sur la Figure 6. On peut y observer la corrélation estimée à \pm un ordre de grandeur en fonction du diamètre adimensionnel, ainsi que les fractions expérimentales mesurées entre autre pour des accélérations de 30 m/s^2 , des poudres sèches et des durées d'exposition de 30 s.

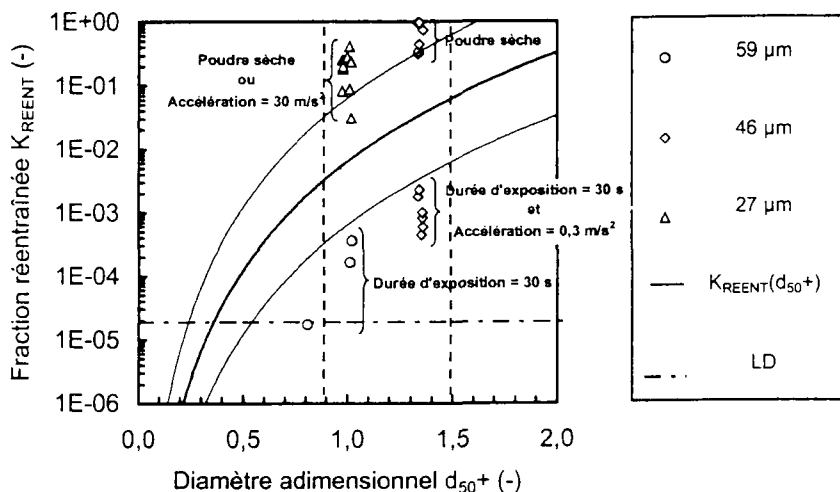


Figure 6 – Fraction réentraînée expérimentale en fonction du diamètre adimensionnel pour les conditions limites de la teneur en H₂O et de l'accélération. Corrélation $K_{REENT}(d_{50+})$ suivant l'équation (2) et intervalle à \pm un ordre de grandeur. LD : Limite de détection

Ce graphe met en évidence que dans l'intervalle $0,9 \leq d_{50+} \leq 1,5$, notre corrélation sous-estime les résultats expérimentaux pour les fortes accélérations et les poudres sèches, alors qu'elle surestime les données pour des durées d'exposition très courtes. Dans cet intervalle, la corrélation est valable pour des gammes réduites des deux paramètres secondaires, à savoir :

une accélération $< 21 \text{ m/s}^2$ et une teneur en H₂O de la poudre $> 0 \text{ mgH}_2\text{O/g}$ de poudre.

Dans le cadre de la sûreté nucléaire où l'on s'intéresse essentiellement au terme enveloppe du réentraînement, on peut suggérer de considérer qu'au-delà de $d_{50+} \geq 0,9$, la fraction réentraînée est totale. En dessous de cette valeur, la corrélation (2) représente correctement la mise en suspension par écoulement d'air d'un dépôt de poudre polydispersée.

Conclusions et perspectives

Rappelons-le, le dispositif expérimental que nous avons réalisé au laboratoire a pour but d'étudier les paramètres qui régissent le phénomène de mise en suspension ou réentraînement par écoulement d'air turbulent de particules d'une poudre polydispersée déposée sur une surface.

Ainsi, nous avons pu identifier et classer expérimentalement l'influence de huit paramètres sur le réentraînement. Pour les conditions expérimentales de BISE, il ressort que :

- la vitesse de l'écoulement d'air et la granulométrie de la poudre ainsi que leur interaction positive sont les deux paramètres primaires responsables de la mise en suspension,
- la teneur en H₂O de la poudre et l'accélération de l'écoulement d'air sont les paramètres secondaires,
- les quatre autres paramètres (durée d'exposition, teneur en H₂O et masse volumique tassée de la poudre, et rugosité de la surface) sont non significatifs sur le réentraînement.

La fraction réentraînée a alors été déterminée en fonction des deux paramètres principaux (vitesse et granulométrie), et nous avons pu développer une corrélation semi-empirique décrivant le réentraînement. Cette corrélation élaborée à partir d'un paramètre adimensionnel, intègre les deux paramètres primaires de la mise en suspension.

Dans un avenir proche, les résultats issus de notre étude seront confrontés à des résultats d'expériences réalisées sur des poudres radioactives (PuO₂, UO₂ et MOx), élargissant ainsi le domaine d'application de notre travail. Pour ce faire, une installation expérimentale dénommée BISE Active a été spécialement conçue et réalisée récemment.

Références bibliographiques

Alloul, L., Witschger, O., Ledur, D., Renoux, A., Monnatte, J. (1999) Mise en suspension d'une contamination par écoulement d'air, *Actes du Congrès Français sur les Aérosols CFA'99, ASFERA éditeur*, 167-172.

Alloul, L., Witschger, D., Renoux, A., Monnatte, J. (2000) Réentraînement par écoulement d'air d'un dépôt de poudre polydispersée : premiers résultats, *Actes du Congrès Français sur les Aérosols CFA'2000, ASFERA éditeur*, 61-67.

Alloul-Marmor, L., Witschger, D., Renoux, A., Monnatte, J. (2001) Measurement of particle reentrainment from a powder deposit in an horizontal airflow, *J. Aerosol Sci.*, 32, S933-S934.

Biasi, L., De Los Reyes, A., Reeks M. W., De Santi, G. F. (2001) Use of a simple model for the interpretation of experimental data on particle resuspension in turbulent flows, *J. Aerosol Sci.*, 32, 1175-1200.

Ziskind, G., Fichman, M., Gutfinger, C. (1995) Resuspension of particulates from surfaces to turbulent flows - Review and analysis. *J. Aerosol Sci.*, 26, 613-644.

DISCO : UNE ENCEINTE EXPERIMENTALE POUR L'ETUDE DE LA DISPERSION DE CONTAMINANT - APPLICATION A LA CHUTE DE POUDRES

F. Gensdarmes (1), O. Witschger (1), G. Basso (1) et J. Monnatte (2)

(1) Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols et du Confinement. IPSNDPEA/SERAC - CEA/Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette cedex.

(2) (COGEMA, Direction Sûreté Sécurité Qualité. 1 rue des Hérons, 78182 Saint Quentin en Yvelines cedex.

TITLE : DISCO AN EXPERIMENTAL FACILITY FOR AIRBORNE RELEASE STUDIES -
APPLICATION TO POWDER SPILLS

ABSTRACT :

Within the framework of airborne release studies which are carried out at IPSN; whose objective is the evaluation of source terms of contamination in the nuclear fuel cycle facilities, in operational condition or in accidental condition, an experimental facility named DISCO has been designed. This facility allows us to conduct experiments for measuring the source airborne coefficients of free fall spill powders scenarios in a containment. The first measurement results show us a good repeatability of the powder fall experiments. Moreover, these results are close to the very few data existing in the literature. We measure a source airborne coefficient equal to $2,32 \times 10^{-3}$ for a mass of 100 g of alumina powder falling 3 m height; the dispersion of the results is characterised by a coefficient of variation equal to 13 %.

RESUME :

Cette étude s'inscrit dans le cadre des mesures de mise en suspension particulaire effectuées à l'IPSN ; elle a pour objectif l'évaluation de termes sources de contaminations dans les installations nucléaires du cycle du combustible, en condition opérationnelle ou bien en condition accidentelle. Nous présentons une installation expérimentale dénommée DISCO, permettant de mesurer des coefficients de mise en suspension lors de la chute d'une poudre dans une enceinte. Les premiers résultats des mesures montrent une bonne répétabilité des expériences de chutes de poudres ; de plus, ces résultats sont proches des quelques données existantes dans la littérature. Nous mesurons un coefficient de mise en suspension égal à $2,32 \times 10^{-3}$ pour une masse de 100 g de poudre d'alumine chutant de 3 m de hauteur, la dispersion des résultats est caractérisée par un coefficient de variation égal à 13 %.

INTRODUCTION

Dans l'industrie nucléaire, notamment dans les installations du cycle du combustible, il est nécessaire de pouvoir évaluer les conséquences d'accidents hypothétiques lors de la manipulation de poudres contaminantes. Ainsi, le cas de la chute accidentelle d'une poudre radioactive (poudre de MOX, ...), est envisagé lors des études de sûreté de ces installations. Dans ces études, on utilise couramment des coefficients de mise en suspension permettant de définir des termes sources de contaminations en condition opérationnelle ou bien en condition accidentelle de l'installation.

Dans le cas de la chute d'une poudre dans une enceinte, nous pouvons définir la fraction massique mise en suspension, appelé encore coefficient de mise en suspension (K), par l'expression :

$$K = m_s / M, \quad (1)$$

où m_s représente la masse de poudre présente sous forme d'aérosol après la chute (kg) et M la masse de poudre ayant chuté (kg).

Il existe de nombreux facteurs potentiels pouvant influencer la masse de contaminant mis en suspension lors de la chute d'une poudre, nous pouvons citer par exemple : la hauteur de la chute ; la granulométrie, la masse et la nature de la poudre ; le mode de déversement (chute d'un paquet, écoulement continu ...) ; les conditions aérauliques régnant dans l'enceinte au moment de la chute.

Nous pouvons distinguer deux types de chutes de poudres suivant les écoulements aérauliques rencontrés : la chute en air calme et la chute dans de l'air en mouvement. Dans le premier cas, les écoulements d'air dans l'enceinte sont induits par la chute de la poudre. Dans le deuxième cas, la poudre chute dans un air déjà en "mouvement". Ces deux situations ont été étudiées expérimentalement par Sutter (1980) et Sutter *et al.* (1981). Signalons que le cas étudié par Sutter (1980) concerne la chute d'une poudre dans un flux d'air horizontal, ce qui n'est pas représentatif de l'aéraulique d'une enceinte ventilée. Sutter *et al.* (1981) ont déterminé la fraction mise en suspension K (eq. 1) pour des poudres d'UO₂ appauvri et de TiO₂. Les poudres utilisées ont des granulométries fines, les diamètres aérodynamiques médians en masse sont d'environ 3,5 µm. Dans leurs expériences, les auteurs font varier la hauteur de chute (1 m et 3 m) et la masse de la poudre (25 g à 1000 g). Le volume de leur enceinte est environ 20 m³. Leurs résultats indiquent des valeurs de K comprises entre 0,5×10⁻⁴ et 1,2×10⁻³.

Par ailleurs, cette étude montre que la fraction mise en suspension augmente avec la hauteur de chute. En revanche, le coefficient varie faiblement en fonction de la masse ou de la nature de la poudre (UO₂ ou TiO₂). Les auteurs mesurent également la granulométrie de la poudre grâce à un impacteur en cascade. Leurs résultats semblent montrer que l'aérosol issu de la chute a un diamètre médian plus élevé que celui de la poudre.

Finalement, l'analyse des données existantes concernant la mise en suspension lors de la chute d'une poudre révèle un manque de connaissances d'une part, des divers paramètres influant sur la mise en suspension, d'autre part, des valeurs du coefficient de mise en suspension correspondant à des scénarii d'incident ou d'accident à l'intérieur des laboratoires et usines du cycle du combustible nucléaire.

L'objet de cette étude est de qualifier une enceinte expérimentale (DISCO) dédiée à l'étude de la dispersion de contaminant et plus particulièrement à la mesure du coefficient de mise en suspension dans le cas de la chute d'une poudre non radioactive. Pour ce faire, nous présentons d'une part, l'enceinte DISCO et la démarche expérimentale adoptée, d'autre part, les résultats des premiers essais de chutes de poudres en terme de coefficients de mise en suspension ainsi que la caractérisation des particules dispersées.

INSTALLATION DISCO ET METHODOLOGIE EXPERIMENTALE

L'installation DISCO est composée d'une structure métallique de base octogonale de largeur égale à 3 m, la surface du plancher étant égale à $7,42 \text{ m}^2$ (cf. fig. 1). Des panneaux transparents en plexiglas s'encastrent dans la structure et font office de fenêtres de visualisation. La hauteur utile maximale de l'enceinte est égale à 5,5 m. Cette hauteur peut être réglée grâce à un faux-plafond mobile, ce qui permet de faire varier indépendamment la hauteur de chute de poudre (1 m à 5,5 m) et le volume de l'enceinte ($\sim 7 \text{ m}^3$ à $\sim 40 \text{ m}^3$). Le faux-plafond est équipé de 4 palans mobiles ce qui permet de positionner plusieurs appareils de mesures dans l'enceinte.

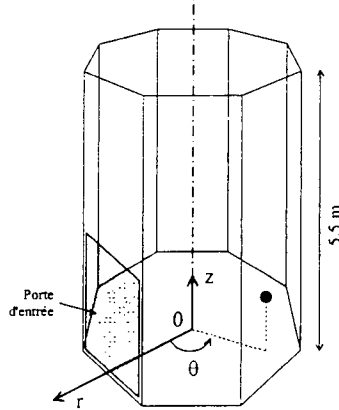


Figure 1 - Schéma de l'installation DISCO

Cette enceinte est équipée d'un système de versement de la poudre de type "largage d'un paquet". Ce système est constitué d'un tronçon de tuyau en PVC de diamètre égal à 10 cm, fermé par une trappe à commande automatique (cf. fig. 2). Lors de l'ouverture de la trappe, la masse de poudre contenue dans le cylindre tombe d'un coup sous la forme d'un paquet. Pour mesurer la masse des particules mises en suspension lors de la chute, nous utilisons simultanément 4 préleveurs d'aérosols à forts débits (cf. fig. 2). Ces préleveurs ont un débit total (Q_t) d'environ $480 \text{ m}^3/\text{h}$, ce qui permet de collecter rapidement les particules mises en suspension sur des filtres THE ; la masse des particules est ensuite déterminée par la pesée des filtres sur une microbalance. Pour une hauteur h de plafond égale à 3 m, le volume de l'enceinte V_e est égal à $22,3 \text{ m}^3$, nous obtenons alors un temps d'épuration théorique T égal à 167 s (V_e/Q_t) lorsque les 4 préleveurs sont utilisés simultanément au débit maximal. En considérant une hypothèse de mélange instantané et homogène dans l'enceinte, le temps nécessaire pour assurer une épuration de 99 % de la masse d'aérosol, donné par la théorie, est égal à $4,6 \times T$ soit environ 13 min. En conséquence, pour cette configuration expérimentale ($h=3 \text{ m}$), nous fixons le temps de prélèvement après la chute de poudre à 15 minutes.

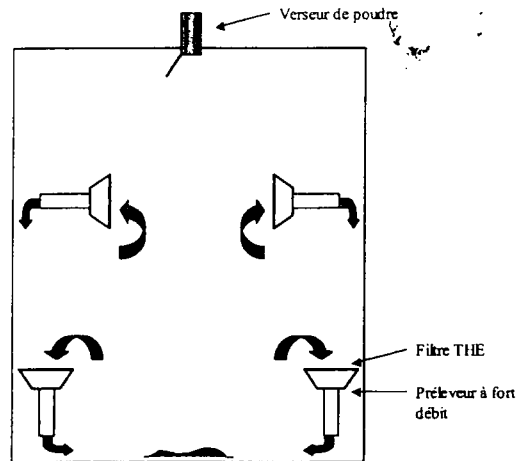


Figure 2 - Schéma de l'implantation du verseur de poudre et des préleveurs à forts débits dans l'enceinte DISCO.

Signalons que dans nos expériences, la chute de poudre s'effectue en "air calme" : les préleveurs à fort débit sont déclenchés immédiatement après la chute. L'action des préleveurs entraîne une homogénéisation rapide des particules mises en suspension dans l'enceinte, par la présence de puissants jets d'air turbulent au niveau du rejet des pompes. En conséquence, l'aérosol produit lors de la chute de poudre en air calme est dispersé dans l'enceinte pendant la phase de prélèvement. Son évolution peut alors être affectée par des phénomènes de dépôts turbulent ou de sédimentation différents de ceux attendus dans le cas réel de l'air calme. Toutefois, ces effets peuvent être pris en compte dans un modèle d'épuration pour estimer les pertes de particules pendant le prélèvement et ainsi corriger les données pour obtenir la masse initialement mise en suspension à partir de la masse effectivement prélevée.

Nous représentons sur la figure 3 un exemple de mesure de vitesse d'air réalisée pendant une expérience à blanc et à l'aide d'un anémomètre omnidirectionnel positionné au centre de l'enceinte à une hauteur de 1,40 m. La vitesse moyenne de l'air est égale à $0,32 \text{ m s}^{-1}$ avec un écart type égal à $0,14 \text{ m s}^{-1}$. Nous constatons, sur la figure 3, qu'il existe dans l'enceinte des vitesses d'air fluctuantes non négligeables devant par exemple la vitesse de sédimentation des particules. Par exemple, pour des diamètres aérodynamiques de $5 \mu\text{m}$, $20 \mu\text{m}$ et $100 \mu\text{m}$, les vitesses de sédimentation sont respectivement $0,08 \text{ cm s}^{-1}$, $1,2 \text{ cm s}^{-1}$ et 26 cm s^{-1} .

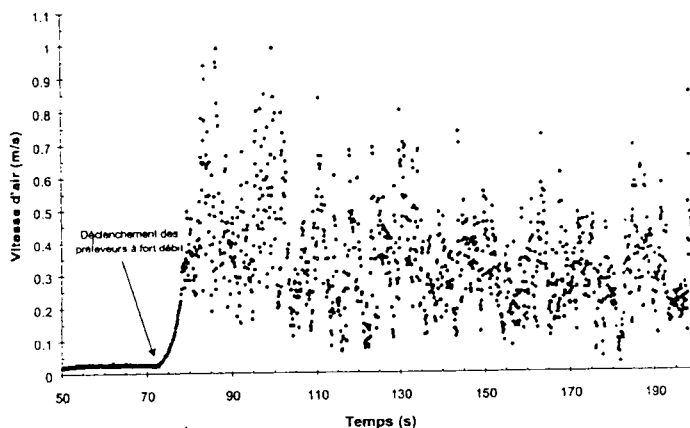


Figure 3 : Mesures de vitesses d'air pendant le prélèvement, $r = 0 \text{ cm}$, $h = 140 \text{ cm}$.

RESULTATS

Afin de déterminer la répétabilité des expériences de chute de poudre, nous avons réalisé une série de 10 mesures du coefficient de mise en suspension pour une hauteur de chute égale à 3 m avec de la poudre d'alumine (Al_2O_3) de diamètre médian en masse égal à $3,2 \mu\text{m}$. La masse de poudre d'alumine est d'environ 100 g par chute (la masse moyenne des chutes est égale à 104,6 g).

Nous présentons sur la figure 4, une photographie de l'impact de la poudre sur le plancher de l'enceinte. Nous pouvons constater sur cette figure, une légère dissymétrie de l'impact probablement due au mécanisme d'ouverture du verseur. Signalons toutefois, que l'impact obtenu est similaire à celui figurant dans l'étude de Sutter *et al.* (1981).



Figure 4 : Photographie d'un impact de poudre sur le plancher de l'enceinte ($m=100 \text{ g}$, $h=3 \text{ m}$).

Nous représentons sur la figure 5 les résultats des mesures du coefficient de mise en suspension pour chaque expérience.

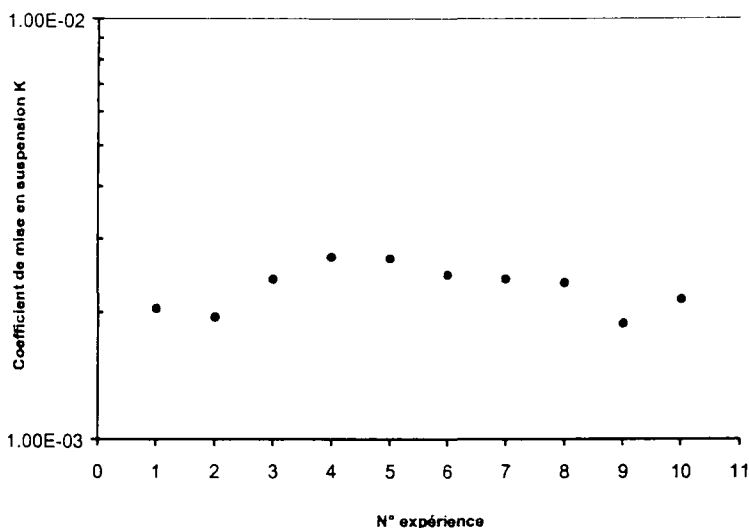


Figure 5 : Expériences de répétabilité d'une chute de poudre, $\overline{M}_p = 104,6 \text{ g}$, $h = 3 \text{ m}$.

Sur l'ensemble des 10 expériences de chutes de poudres nous déterminons un coefficient de mise en suspension moyen égal à $2,32 \times 10^{-3}$. L'écart type caractérisant la dispersion de ces résultats est égal à $3,03 \times 10^{-4}$, ce qui nous donne un coefficient de variation égal à 13 %. Finalement, ces résultats montrent une bonne répétabilité des expériences de chutes de poudres.

Par ailleurs, nous cherchons à caractériser les particules mises en suspension en effectuant deux types d'analyses granulométriques. La première analyse permet de caractériser la poudre que l'on utilise au cours des essais de chutes. La seconde permet de caractériser l'aérosol issu de la dispersion. Pour caractériser la poudre d'essai, nous utilisons un Coulter Multisizer II. Cet appareil permet de déterminer le diamètre équivalent en volume (DMV) des particules.

Nous représentons sur la figure 6 la granulométrie mesurée avec le Coulter pour la poudre d'alumine (nommée SPM-105) utilisée pendant les essais. Le DMV est égal à $3,2 \mu\text{m}$ et l'écart type géométrique de la distribution est égal à 1,43. En revanche, les caractéristiques données par le fabricant de la poudre sont les suivantes : diamètre médian égal à $3 \mu\text{m}$ et densité du matériau égale à $3,9 \text{ g/cm}^3$. Nous remarquons ainsi une légère différence entre le diamètre annoncé par le fabricant et le diamètre réel de la poudre.

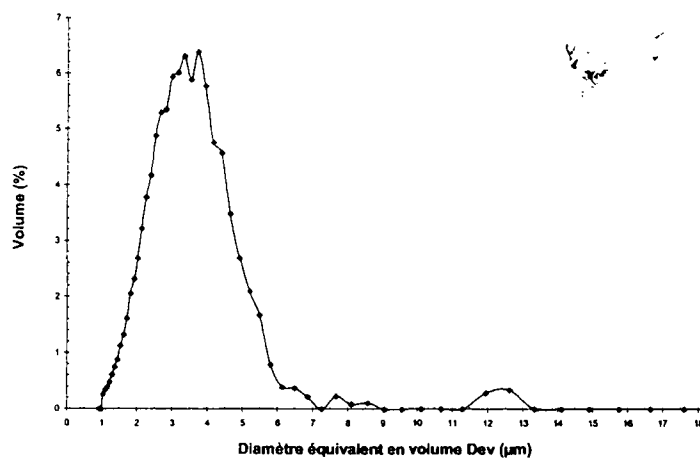


Figure 6 : Distribution granulométrique de la poudre d'alumine SPM 105. Analyse Coulter.

Pour caractériser la poudre dispersée pendant la chute, nous utilisons un APS (Aerodynamic Particle Sizer). Cet appareil permet de déterminer le diamètre aérodynamique des particules qui sont échantillonnées pendant l'essai de chute.

Nous représentons sur la figure 7 l'analyse d'un échantillon prélevé entre T_0 et T_0+30 s, T_0 correspondant à l'instant de la chute. Le diamètre aérodynamique médian (DAM) de la distribution est égal à 5,1 μm et l'écart type géométrique est égal à 1,57.

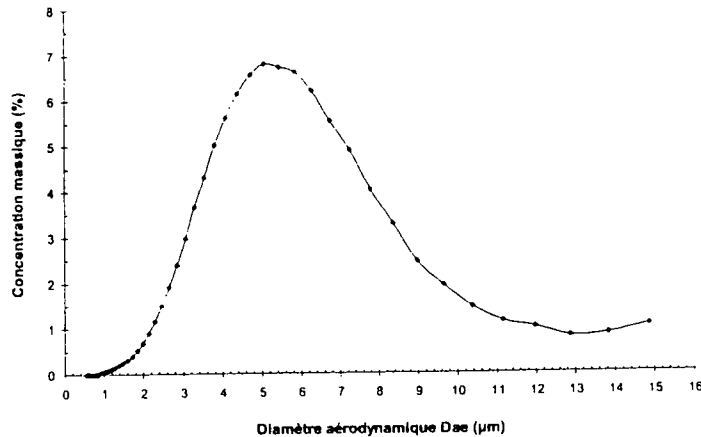


Figure 7 : Granulométrie de la poudre mise en suspension SPM-105. Analyse APS.

Pour comparer les caractéristiques de la poudre que l'on fait chuter et les caractéristiques de la fraction mise en suspension, nous devons calculer le diamètre aérodynamique de la poudre à partir du diamètre équivalent en volume déterminé par l'analyse Coulter. Ces deux diamètres sont reliés par l'expression suivante (Willeke et Baron, 1993) :

$$d_a = \sqrt{\frac{\rho}{\chi} \cdot \frac{Cu(d_{ev})}{Cu(d_a)}} \cdot d_{ev}, \quad (2)$$

où d_a représente le diamètre aérodynamique, d_{ev} le diamètre équivalent en volume, Cu le coefficient de correction de Cunningham, ρ la densité des particules et χ le facteur de forme dynamique.

Pour appliquer l'équation 2, nous avons besoin du facteur de forme χ des particules. Ce facteur a été mesuré par Mark *et al.* (1985) pour des particules d'alumine de formes anguleuses. Leur étude montre que ce facteur dépend du DMV des particules, notamment lorsqu'il est supérieur à 10 μm . Ainsi, les auteurs déterminent un facteur de forme dynamique égal à 1,44 pour une poudre d'alumine avec un DMV égal à 3,6 μm . Ce résultat étant obtenu pour une poudre de diamètre proche de la nôtre (DMV = 3,2 μm), justifie l'emploi d'un facteur de forme $\chi = 1,44$ pour interpréter nos résultats.

Dans ce cas, pour une densité égale à 3,9 le DMV déterminé par la mesure Coulter (DMV = 3,2 μm) correspond à un diamètre aérodynamique égal à 5,3 μm qui est proche du diamètre déterminé par l'APS (5,1 μm).

Ces résultats semblent indiquer que la mise en suspension est uniforme sur le spectre granulométrique de la poudre d'essais, nous n'observons pas d'agrégats de particules dans les gammes de diamètres analysés.

CONCLUSION

Nous avons présenté une installation expérimentale, nommé DISCO, permettant d'étudier la mise en suspension de particules lors de la chute d'une poudre. L'instrumentation utilisée permet de déterminer la masse de particules mise en suspension lors d'une expérience. Toutefois, étant donné que cette méthode de mesure perturbe les écoulements aérauliques pendant le prélèvement, il est nécessaire de prendre des précautions lors de l'interprétation des résultats ; notamment si l'on cherche à déterminer la masse initiale mise en suspension. En effet, cette masse peut être supérieure à la masse prélevée du fait de phénomènes de dépôts (turbulent, sédimentation) pendant le prélèvement, ce qui conduit à sous estimer le coefficient réel de mise en suspension.

Nous remarquons que les coefficients de mise en suspension déterminés lors de nos expériences sont du même ordre de grandeur que ceux déterminés dans l'étude de Sutter *et al.* (1981) ; toutefois, nos résultats sont légèrement supérieurs. En effet, les auteurs ont mesuré un coefficient de mise en suspension égal à $1,1 \times 10^{-3}$ pour une chute de 100 g de poudre de TiO_2 de 3 m de hauteur, le diamètre médian en masse (DMM) de cette poudre étant égal à $1,7 \mu m$, tandis que nous mesurons un coefficient de mise en suspension égal à $2,32 \times 10^{-3}$ pour une poudre d'alumine de diamètre médian égal à $3,2 \mu m$. Cet écart peut provenir d'un effet de la granulométrie de la poudre sur la mise en suspension. Des expériences de calage avec une poudre similaire à celle utilisée dans l'étude de Sutter *et al.* (1981) devront permettre d'interpréter ces résultats. Cette différence peut être également attribuée à la méthodologie mise en œuvre dans les expériences de Sutter *et al.* (1981), comme par exemple l'incorporation d'un traceur fluorescent dans la poudre de TiO_2 .

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Mark D., Vincent J.H., Gibson H. et Witherspoon W.A. (1985) Applications of closely graded powders of fused alumina as test dusts for aerosol studies. *J. of Aerosol Science* **16**, 125-131.

Sutter S. L. (1980) Potential airbornes released from soil-working operations in contaminated area. Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, PNL-3498.

Sutter S. L., Johnston J. W. et Mishima J. (1981) Aerosols generated by free fall spills of powders and solutions in static air. NUREG/CR-2139, PNL-3786, RH.

Willeke K. et Baron P. (1993) Aerosol measurement. principle, techniques and applications. ed. by Willeke et Baron, Van Nostrand Reinhold, NY.

CHARGE D'AEROSOL PAR DECHARGE ELECTRIQUE : EFFET DE LA FORME DES PARTICULES SUR LES LOIS DE CHARGES

UNGER L., BORRA J-P.

Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas, UMR 8578,
Equipe Décharges Electriques et Environnement,
Ecole Supérieure d'Electricité, Plateau de Moulon, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex

I. Introduction

Dans le cadre de l'étude de la coagulation électrique d'aérosols submicroniques sur des gouttes d'eau produites par Pulvérisation Electro-HydroDynamique, un chargeur de particules par décharge électrique a été dimensionné et étalonné. En effet, les décharges électriques à pression atmosphérique en géométrie hétérogène (décharge couronne) permettent de produire des concentrations d'ions unipolaires à même de charger efficacement les particules d'aérosol (dans les précipitateurs électrostatiques, par exemple). Le processus physique mis en jeu dans le cas de la charge de particules au sein de la décharge est la charge par champ ($E=10^6 \text{ V.m}^{-1}$). Le but de cette étude était donc d'étalonner le chargeur, c'est à dire de quantifier l'influence des différentes variables expérimentales sur le niveau de charges des particules. Dans un premier temps, la caractérisation de la décharge (stabilisation de la décharge, phénomènes de polarisation) a permis de définir précisément les conditions de charges. Dans un deuxième temps, l'identification des différents artefacts de mesures liés à l'utilisation d'aérosol dans une décharge (polarisation des surfaces, séparation ions/particules, pertes pendant le transport) a permis de définir un protocole de mesure. L'étalonnage du chargeur a donc été réalisé dans des conditions de fonctionnement contrôlées, et a permis, dans un troisième temps, de mettre en évidence un effet de la forme des particules sur leur niveau de charge à saturation. La forme des particules n'est pas prise en compte dans les lois de charges qui considèrent toujours des particules sphériques. Cet effet n'a, à notre connaissance, jamais été montré expérimentalement excepté dans le cas de particules d'amiante (fibres).

II. Montage expérimental et protocole de mesure

Le montage expérimental utilisé pour étalonner le chargeur est représenté schématiquement sur la Figure 1. Il se compose de trois parties : (i) production et conditionnement de l'aérosol, (ii) charge de l'aérosol et caractérisation électrique du chargeur et (iii) caractérisation de l'aérosol en sortie de chargeur (concentration C_p , diamètre moyen \bar{d}_p , niveau de charge moyen des particules $\langle n_p \rangle$).

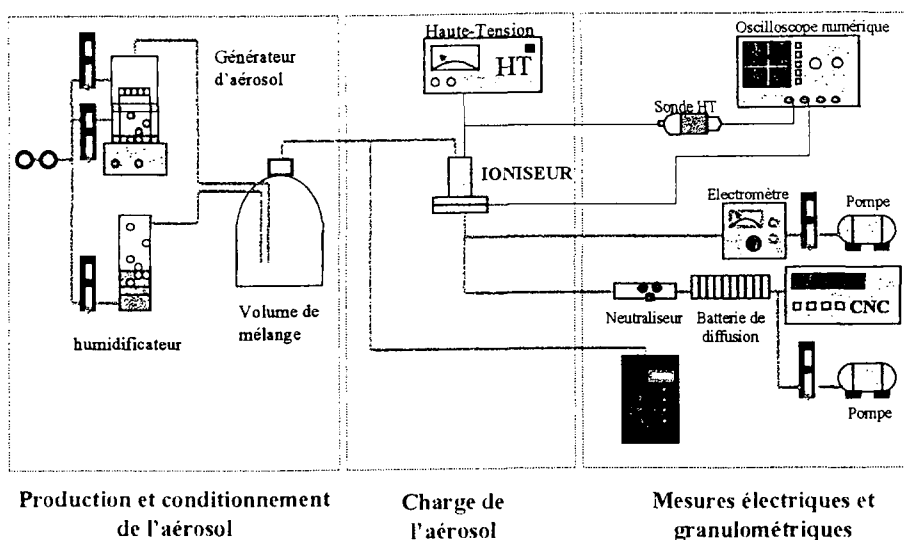


Figure 1 : Schéma du montage expérimental

1.1. Production et conditionnement de l'aérosol

Deux générateurs différents ont été utilisés dans cette étude: (i) un Sinclair-Lamer Generator (Pallas) permettant de produire par condensation hétérogène un aérosol monodispersé dont les particules sphériques de DEHS (Di-Ethyl-Hexyl-Sebaçate) ont un diamètre compris entre 0,44 et 8 μm et (ii) un générateur URANUS (Sinaptec) permettant de produire par vibration d'un piezzo électrique un brouillard de particules d'eau salée dont le diamètre, après séchage, est compris entre 0,2 et 1,1 μm . L'aérosol ainsi produit est (i) mélangé à de l'air humide ($H_r=60\%$) afin de dépolariser partiellement les surfaces isolantes proches de la décharge, puis (ii) injecté dans le chargeur.

1.2. Charge des particules et caractérisation de la décharge

Le chargeur est une décharge fil-cylindre dans laquelle l'aérosol est injecté (cf. Figure 2, sur laquelle est également représentée une caractéristique courant-tension de la décharge).

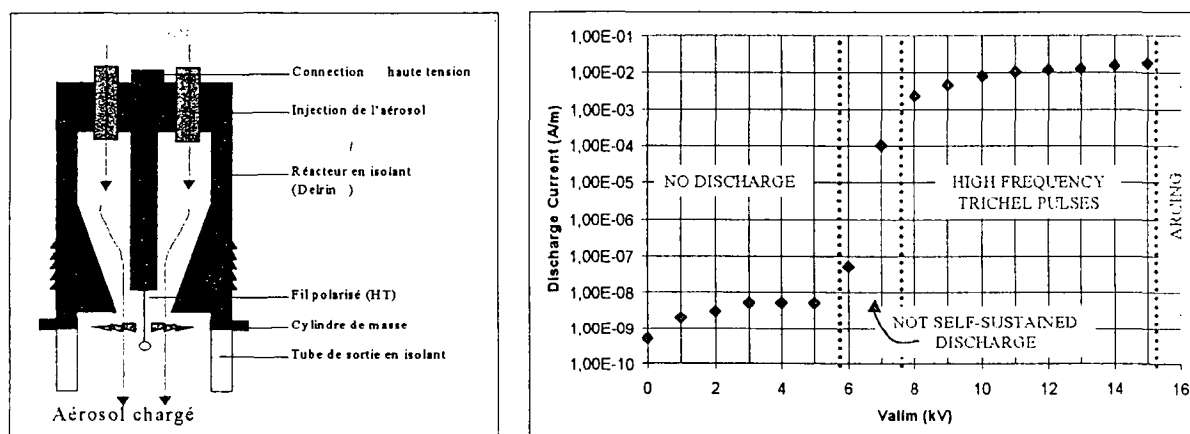


Figure 2 : Schéma du chargeur (décharge fil-cylindre) et caractéristique potentiométrique de la décharge

La tension appliquée au fil permet de créer entre le fil et le cylindre de masse un champ électrique suffisamment intense pour ioniser le gaz dans l'espace inter électrodes. La forte dissymétrie des électrodes permet d'obtenir un champ plus fort au niveau de l'électrode à faible rayon de courbure, ce qui induit, dans la quasi-totalité de l'espace inter électrode une densité d'ions unipolaire (dans notre cas, négative). A tension croissante, différents régimes de décharge se succèdent : (i) un régime de collecte (où les ions présents sont collectés, mais où le champ électrique n'est pas suffisant pour ioniser le gaz), suivi (ii) d'un régime de décharge non auto-entretenu (où le champ est suffisant pour ioniser, mais pas assez pour se passer des électrons germes permettant d'initier les avalanches électroniques), (iii) un régime de décharge auto-entretenu (ou régime de Trichels) pour lequel la décharge est stable et homogène spatialement (ce régime sera le régime choisi pour charger les particules) et (iv) le passage à l'arc correspond à la liaison par un filament des deux électrodes (le courant y est très élevé, et son caractère inhomogène induit un endommagement des électrodes et une mauvaise efficacité de charge). La fréquence des impulsions Trichels permet de caractériser précisément le régime de décharge (mesures à l'oscilloscope), et donc de définir les conditions de charges des particules. Par ailleurs, la polarisation partielle des surfaces isolantes en regard de la décharge (le contrôle de l'humidité de l'air permet de stabiliser la décharge) induit un courant d'ions gazeux en sortie du chargeur qu'il convient de séparer du flux de particules chargées avant la mesure. En outre, le dépôt de particules chargées sur les électrodes induit une modification du fonctionnement de la décharge pouvant conduire, selon la nature de l'aérosol (liquide ou solide), à une déstabilisation de la décharge et au passage à l'arc (cf. Figure 3).

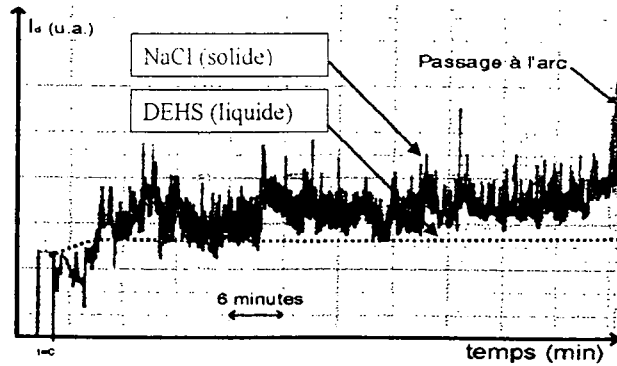


Figure 3 : Evolution temporelle du courant moyen de décharge, dans le cas d'un aérosol solide de NaCl produit par un nébuliseur TSI ($C_p=10^8$ p.cm⁻³ ; déstabilisation jusqu'à passage à l'arc) et dans le cas d'un aérosol liquide de DEHS (modification du point de fonctionnement de la décharge sans évolution ultérieure)

Cette évolution temporelle implique de caractériser la durée de stabilité de la décharge afin de charger les particules dans des conditions contrôlées (la déstabilisation de la décharge induit une modification de la répartition spatiale des ions gazeux, et donc du niveau de charge acquis par les particules au sein de la décharge ; cf. Figure 4).

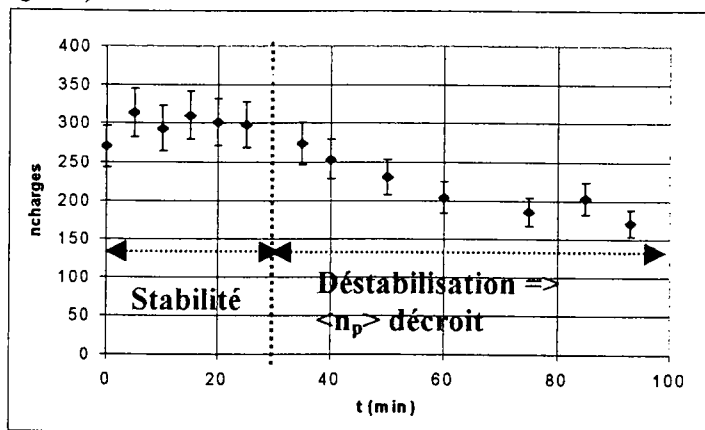


Figure 4 : Evolution temporelle du nombre de charge moyen (aérosol de NaCl, produit par le générateur URANUS, $C_p=10^5$ p.cm⁻³)

Il faut souligner que cette perte d'homogénéité de la décharge, accompagnée d'une diminution de l'efficacité de charge, correspond dans ce cas à une augmentation du courant moyen de décharge. Il est donc important d'effectuer les mesures concernant la charge des particules pendant la plage de stabilité afin de pouvoir utiliser le courant de décharge pour calculer la densité d'ions (approximation d'autant plus réaliste que la décharge est homogène).

Dans ces conditions de fort champ électrique E (de l'ordre de 10^6 V.m⁻¹), la charge par diffusion est négligeable, et les particules sont chargées par effet de champ (les particules sont soumises à un flux d'ions unipolaire du au champ électrique). La loi de charge par champ¹ est alors utilisée pour décrire le niveau de charge acquis en un temps τ par des particules sphériques de diamètre d_p (initialement neutres), dans une densité d'ions N_i :

$$n_p(\tau) = n_s \times \frac{e\mu_i N_i \tau}{(1 + \pi e \mu_i N_i \tau)}$$

où n_s est la charge à saturation donnée par :

$$n_s = (1 + \frac{2(\epsilon - 1)}{(\epsilon + 2)}) \left(\frac{4\pi\epsilon_0 E_0 r_p^2}{e} \right)$$

Le niveau de charge dépend donc, pour un aérosol donné (diamètre des particules et nature chimique), uniquement du produit $N_i \times \tau$ et du champ électrique. Afin de comparer par la suite les résultats expérimentaux avec les niveaux de charge donnés par la loi théorique, nous avons estimé la densité

¹ PAUTHENIER M.M., MOREAU-HANOT M., "La charge des particules sphériques dans un champ ionisé", *J. Phys. Radium* 3, pp. 590, 1932

d'ions N_i et le temps de séjour τ de ces particules dans cette densité d'ions en fonction des variables expérimentales (dans les conditions de stabilité de la décharge définies ci-dessus). Le temps de séjour est estimé grossièrement en utilisant la surface d'injection des particules dans la décharge S_{inj} , la hauteur du cylindre de masse h et le débit d'aérosol Q_a :

$$\tau = \frac{hS_{inj}}{Q_a}$$

La densité d'ions N_i est calculée à partir des mesures (i) du courant de décharge, (ii) de la tension appliquée et (iii) des dimensions du système par addition du champ géométrique $E_{géométrique}$ et du champ de charge d'espace ionique E_p :

$$I_{décharge} = 2\pi r h N_i(r) \mu_i E(r) \text{ et } E(r) = E_{géométrique} + E_p = \frac{V_{alim}}{r \ln(R_2 / R_1)} + \frac{1}{r \epsilon_0} \int_{R_1}^r r N_i(r) dr$$

où μ_i est la mobilité électrique des ions gazeux, V_{alim} le potentiel appliqué au fil, R_1 le rayon du cylindre de masse et R_2 le rayon de courbure du fil.

En discrétisant l'intégrale du membre de droite, et en résolvant l'équation ainsi obtenue, il est possible de calculer la densité d'ions moyenne en tout point de l'espace inter électrodes. La comparaison des niveaux de charges obtenus expérimentalement pour une valeur de $N_i \times \tau$ avec la loi de charge par champ est donc possible.

1.3. Caractérisation de l'aérosol et de sa charge

La caractérisation de l'aérosol est effectuée en amont du chargeur par des mesures granulométriques (ADME+CNC, ELPI), et en aval du chargeur par une mesure simultanée de la concentration C_p de particules chargées (à l'aide d'un CNC) et du courant I_c de particules chargées (à l'aide d'un électromètre). Le débit Q_c dans l'électromètre étant connu, la charge électrique moyenne portée par les particules est donnée par :

$$\langle n_p \rangle = \frac{I_c}{Q_c C_p e}$$

Ce calcul est possible seulement si (i) les ions gazeux soufflés du chargeur avec les particules chargées ont été préalablement séparés du flux (i.e. I_c est un courant de particules chargées uniquement), ce qui est réalisé dans notre montage par un tube métallique de 20 cm de long dans lequel les ions gazeux sont précipités, et (ii) si les pertes dans la ligne de mesure du CNC et de l'électromètre sont les mêmes (longueurs de lignes et débits d'aspiration identiques pour les deux lignes de mesures).

III. Résultats

La Figure 5 montre l'évolution de la concentration de particules et du nombre de charges moyen par particules en sortie de chargeur en fonction du courant de décharge (i.e. de la densité d'ions ; les points étant obtenus en faisant varier la tension appliquée).

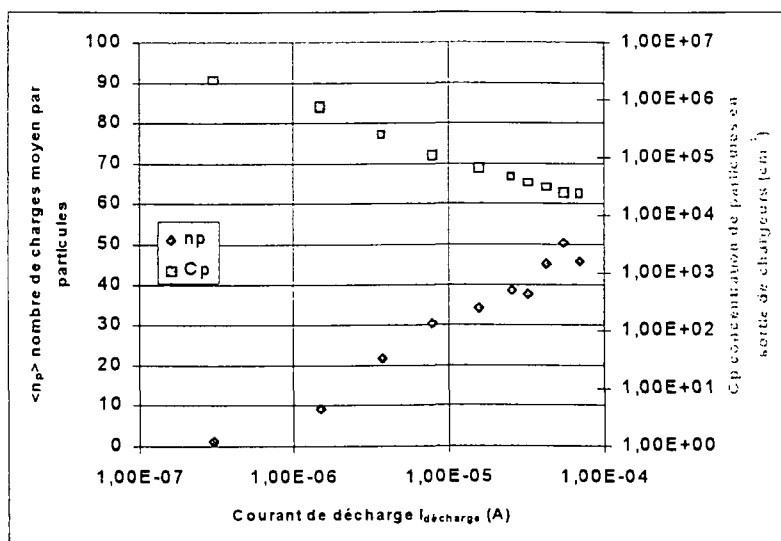


Figure 5 : Nombre moyen de charges par particules et concentration de particules en sortie de chargeur en fonction du courant de décharge $I_{\text{décharge}}$ (aérosol de DEHS, $d_p=0.44\mu\text{m}$, $Q_a=10\text{L/min}$)

L'augmentation de la densité d'ions induit bien une augmentation du niveau de charge des particules et une diminution de la concentration de particules en sortie de chargeurs (par augmentation des pertes par collection dans la décharge). La Figure 6 montre la comparaison entre les niveaux de charges obtenus expérimentalement pour un débit dans le chargeur de 10 L/min, pour différentes tailles de particules de DEHS, et la loi de charge théorique, en fonction du produit $N_i \times \tau$ (calculé comme indiqué ci-dessus).

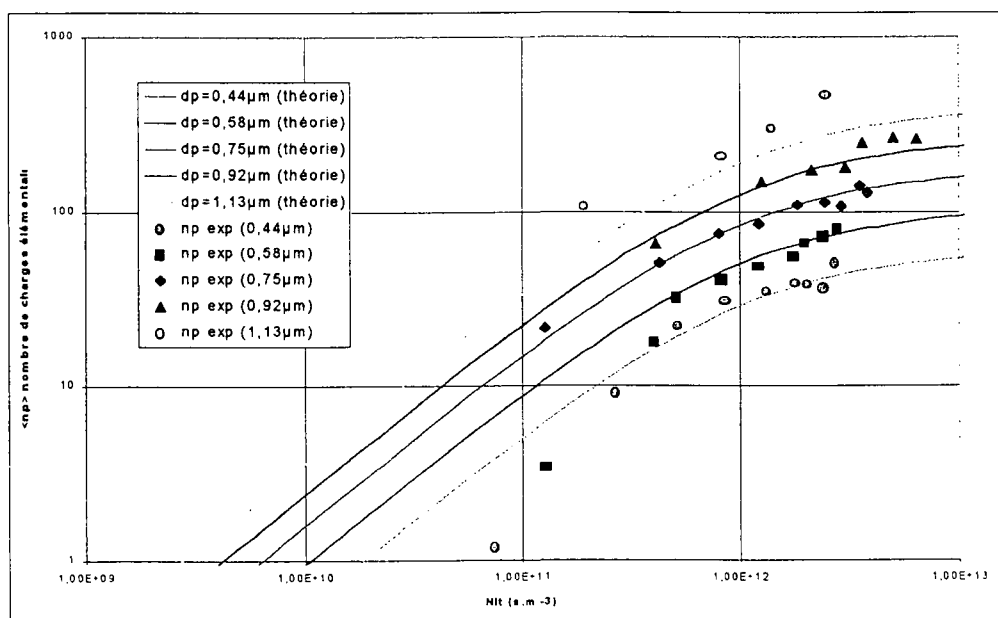


Figure 6 : Nombres de charges moyens théoriques et expérimentaux en fonction du produit $N_i \times \tau$, pour différentes tailles de particules de DEHS ($Q_a=10\text{L/min}$)

Pour les valeurs de $N_i \times \tau$ supérieures à 10^{11} ions. $\text{cm}^{-3}.\text{s}$, la concordance entre la loi de charge théorique et expérimentale est bonne. Les mêmes expériences réalisées sur la plage de stabilité de la décharge avec des particules de NaCl montrent un écart important entre les valeurs expérimentales et théoriques (cf. Figure 7).

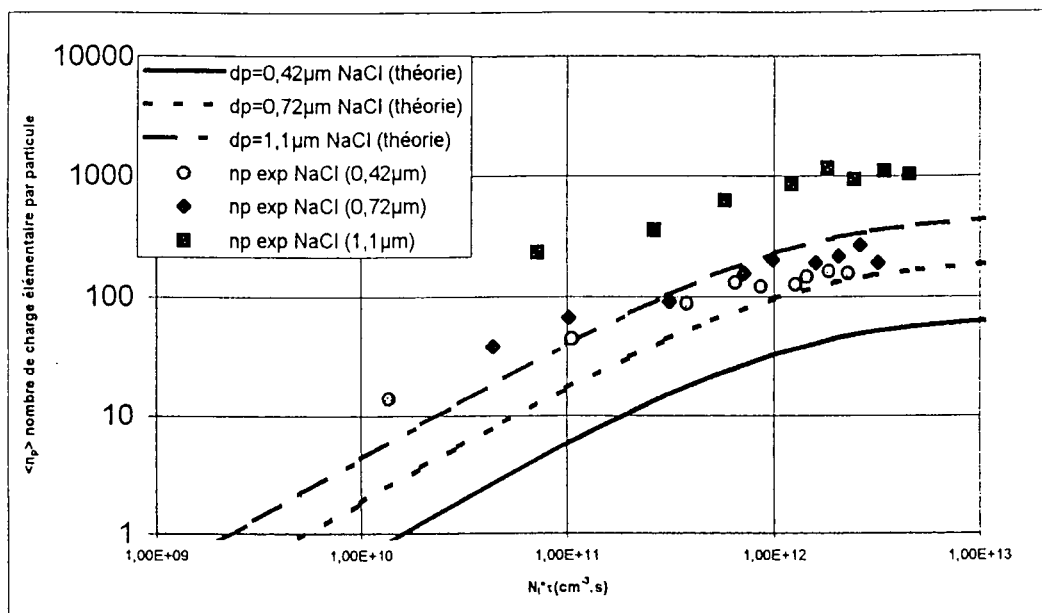


Figure 7 : Nombres de charge moyens théoriques et expérimentaux en fonction du produit $N_p \tau$, pour différentes tailles de particules de NaCl ($Q_a=10\text{L/min}$)

Il existe un décalage important entre les charges à saturation prévues par la loi de charge et les niveaux de charges atteints expérimentalement. Il faut souligner que les résultats sont présentés ici en termes de diamètres aérodynamiques et qu'il conviendrait d'utiliser le diamètre de Stokes (puisque la charge par champ fait intervenir la surface de la particule, et que les densités respectives du DEHS et du NaCl sont différentes ; $910 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et $2100 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ respectivement). Une hypothèse pour expliquer ces résultats est l'augmentation locale du champ électrique dans le cas des particules « cubiques » de NaCl (effet de pointe) permettant d'atteindre des champs électriques plus importants au voisinage des particules. En effet, la charge à saturation dépend du champ électrique, et l'augmentation locale du champ électrique permettrait d'expliquer la différence de niveaux de charge observée.

IV. Conclusion

L'étalonnage du chargeur et le contrôle du régime de décharge ont permis de charger les particules dans des conditions contrôlées, et ainsi de mettre en évidence un décalage important entre la loi de charge analytique – validée expérimentalement dans le cas de particules sphériques de DEHS – et les niveaux de charges observés expérimentalement lorsque les particules ne sont pas sphériques. Des observations au Microscope Electronique à Balayage (MEB) sont prévues et devraient permettre de préciser le facteur de forme des particules de NaCl utilisées, afin de pouvoir intégrer dans la loi de charge le facteur de forme des particules.

Modélisation de la dynamique des aérosols atmosphériques : un point sur la simulation numérique

Debry E. et Sportisse B. *

Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, CEREVERE, Pôle Air

20 décembre 2001

Résumé

L'objet de cette communication est de faire un point sur la simulation numérique des aérosols atmosphériques .

Introduction

La pollution atmosphérique en phase gazeuse est aujourd'hui largement étudiée et des modèles validés commencent à être disponibles. La situation est radicalement différente pour la matière condensée de l'atmosphère, que ce soit pour les aérosols ou les nuages.

La matière condensée joue pourtant un rôle crucial :

- la phase condensée est vecteur de la pollution (impact sanitaire direct),
- la présence d'aérosols a une incidence sur le bilan radiatif et donc sur les constantes photolytiques associées aux réactions de destruction photolytique par absorption du rayonnement solaire,
- il se produit des échanges de matières entre les différentes phases, d'où des erreurs possibles si l'on ne tient pas compte de toutes les phases.

La simulation numérique de ces processus est complexe . On rappelle dans la partie 1 l'équation générale de la dynamique des aérosols . On présente dans les parties 2 et 3 les approches multimodales et résolues en taille .

1 GDE : General Dynamic Equation

On s'intéresse tout d'abord à une population d'aérosols mono-composés, que l'on représente par une densité de concentrations $n(v, t)$ (PSD)¹, telle que $n(v, t) dv$ représente la concentration moyenne en aérosols de volume compris entre v et $v + dv$ à l'instant t . La PSD évolue au cours du temps sous l'effet de la

* debry@cereve.enpc.fr, sportisse@cereve.enpc.fr

¹ Particle Size Density

coagulation, de la condensation-évaporation et de la nucléation [Seinfeld and Pandis, 1998] :

$$\frac{\partial n}{\partial t}(v, t) = \underbrace{\frac{1}{2} \int_{v_0}^{v-v_0} K(u, v-u) n(u, t) n(v-u, t) du}_{\text{gain par coagulation}} - \underbrace{n(v, t) \int_{v_0}^{\infty} K(u, v) n(u, t) du}_{\text{perte par coagulation}} - \underbrace{\frac{\partial(I_0 n)}{\partial v}(v, t)}_{\text{condensation}} + \underbrace{\delta_{(v_0, v)} J_0(t)}_{\text{nucléation}} \quad (1)$$

La physique de chaque processus est spécifiée dans l'expression de leur noyaux respectifs ; pour les aérosols atmosphériques $K(u, v)$ est essentiellement brownien et $I_0(v, t)$ exprime la convergence vers l'équilibre thermodynamique entre phases, positif (resp. négatif) pour la condensation (resp. pour l'évaporation) .

2 Approche multimodale

On se réfère ici aux modèles [Binkowski and Shankar, 1995, Whitby and McMurry, 1997].

Cette approche considère la PSD comme une somme de plusieurs modes log-normaux. Une distribution log-normale est une distribution normale respectivement au logarithme de la variable (ici diamètre) de l'aérosol, caractérisée par son diamètre géométrique moyen D_g et son écart-type géométrique moyen σ_g . On distingue en général deux ou trois modes :

- le mode de nucléation (*nuclei mode*) $D_g < 0.1 \mu m$, il représente les petites particules émises ou formées par nucléation,
- le mode de condensation (*accumulation mode*) représente les particules de diamètre compris entre $0.1 \mu m$ et $2 \mu m$.

On peut également ajouter un troisième mode pour les particules de plus gros diamètre (*coarse mode*) . La PSD s'écrit donc sous la forme :

$$n(\ln D, t) = \sum_i \frac{n_i}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_{g_i}} \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln D - \ln D_{g_i}}{\ln \sigma_{g_i}}\right)^2\right) \quad (2)$$

elle est donc entièrement caractérisée par les paramètres n_i , D_{g_i} et σ_{g_i} de chaque mode, lesquels sont reliés à (1) par les équations de conservation des moments de chaque mode . En effet pour le $k^{\text{ème}}$ moment du mode i on peut écrire :

$$M_i^k = n_i (D_{g_i})^k \exp\left(\frac{k^2}{2} \ln^2 \sigma_{g_i}\right), \quad \frac{dM_i^k}{dt} = C_{ii}^k + C_{ij}^k + G_i^k + E_i^k \quad (3)$$

avec respectivement

- C_{ii}^k et C_{ij}^k taux de coagulation intramodale et intermodale,
- G_i^k taux de grossissement moyen par condensation, E_i^k taux d'émission,

Si l'avantage de cette approche est le petit nombre de variables à calculer, son principal inconvénient est de contraindre la forme de la PSD et de ne résoudre la dynamique des aérosols que sur les moments de la PSD, sans tenir compte des différentes classes de taille d'aérosols . Les approches suivantes proposent au contraire une résolution en taille de (1) .

3 Approches résolues en taille

3.1 Méthodes stochastiques

Une approche stochastique fournit une méthode de référence, couplant tous les processus en jeu, et il est hors de question d'utiliser de telles méthodes en contexte tridimensionnel.

Le principe de tout algorithme stochastique est d'effectuer un nombre (MC) d'expériences indépendantes et de moyenner. On représente la PSD par des particules numériques (au nombre de P) que l'on fait coaguler et condenser suivant les noyaux choisis .

Des algorithmes de ce type ont déjà été développés pour résoudre la coagulation : Lushnikov [Domilovskii et al., 1978], Babovsky [Babovsky, 1999].

Lushnikov associe à une particule numérique un aérosol physique. L'inconvénient de cette méthode est la décroissance du nombre de particules sous l'effet de la coagulation alors que les algorithmes stochastiques sont d'autant moins précis que le nombre de particules numériques diminue.

Une autre alternative est proposée par Babovsky, qui consiste à associer à chaque particule numérique un volume fixe unité d'aérosols. Ceci permet de garder un nombre constant de particules puisque la coagulation conserve le volume total d'aérosols . Ce type d'algorithme est aussi appelé "mass flow algorithm" (MFA) .

On se réfère à [Debry et al., 2001] pour l'extension de cette dernière approche à toute la GDE . Une particule numérique représente alors un volume d'aérosols variable sous l'effet de la condensation-évaporation.

Quelques résultats

On a testé cet algorithme dans le cas de coagulation constante et condensation linéaire couplées, cas pour lequel (1) admet une solution analytique .

La figure 1 montre la validité de l'algorithme en fonction des paramètres MC et P . Cette méthode permet ainsi d'obtenir une solution de référence pour la coagulation brownienne (figure 2) pour laquelle on ne dispose pas de solution analytique .

3.2 Méthodes déterministes

Ces approches se basent sur une discrétisation spatiale et temporelle de (1), que l'on peut résoudre soit en séparant chaque processus physique (splitting) soit en les gardant couplés.

3.2.1 Coagulation : size-binning

Les approches sectionnelles ou *size binning* sont largement répandues. L'inconvénient majeur de cette approche est la quasi-impossibilité d'avoir une estimation a priori des erreurs effectuées . Cette approche est surtout utilisée pour résoudre la coagulation [Jacobson et al., 1994, Gelbard et al., 1980].

Le spectre des volumes d'aérosols $[v_0, v_{\max}]$ est divisé en n_b boîtes $[v_k^-, v_k^+]$. Ces boîtes sont le plus souvent distribuées de manière géométrique .

On impose à la densité de volume $q(v, t) = v n(v, t)$ une forme déterminée $f_k(v)$ indépendante du temps, le plus souvent constante ou polynomiale, sur

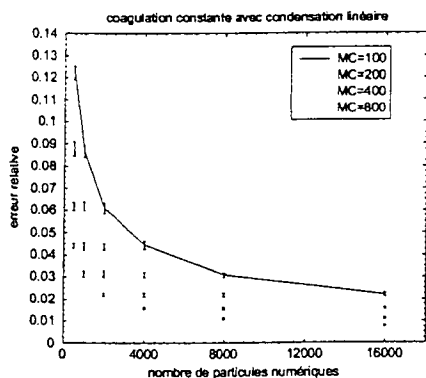


FIG. 1 - Erreur relative sur la densité de volume d'aérosols pour différents valeurs de MC et P .

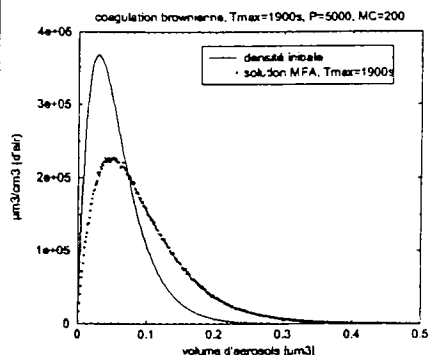


FIG. 2 - Solution de référence pour la coagulation brownienne, CPU=296s

chaque boîte k . On intègre (1) sur $[v_k^-, v_k^+]$ en ne considérant que la coagulation. On obtient une équation sur $Q_k(t)$, volume d'aérosols contenu dans la boîte k :

$$Q_k(t) = \int_{v_k^-}^{v_k^+} q(v, t) dv, \quad \frac{dQ_k}{dt} = \sum_{i,j \leq k} f_{ij}^k Q_i Q_j - Q_k(t) \sum_{j=1}^{n_b} f_{kj} Q_j \quad (4)$$

Les coefficients f_{ij}^k s'interprètent alors comme la proportion d'aérosols, issus de la coagulation entre la boîte i et j , qui arrivent dans la boîte k . Ces coefficients ne dépendent que du noyau et de la forme a priori de la densité prise sur chaque boîte, ils peuvent donc être précalculés.

(4) est ensuite résolu en temps, l'algorithme de Jacobson est le plus répandu car il conserve par construction le volume total d'aérosols, respectant ainsi une propriété physique de la coagulation.

On présente quelques résultats pour la coagulation brownienne avec une densité prise constante sur chaque boîte (d'où les fonctions en escalier).

La figure 3 montre la solution SIZE-BINNING pour 50 boîtes en regard de la solution de référence MFA précédemment obtenue (figure 2). La densité est moins bien représentée pour les grosses particules en raison de la largeur croissante (géométrique) des boîtes.

Par ailleurs la solution SIZE-BINNING sur-estime la solution de référence en "queue de distribution", ce phénomène de diffusion pour les grandes boîtes vient d'une part de la sensibilité du calcul aux coefficients de partition [Fernández-Díaz et al., 2000] et d'autre part au fait que l'on tronque le spectre d'aérosols en v_{max} à la différence de la solution de référence MFA.

Pour obtenir une meilleure précision, on peut augmenter le nombre de boîtes. La figure 4 montre la solution SIZE-BINNING pour 500 boîtes : celle-ci est cette fois-ci pratiquement confondue avec la solution de référence, mais le temps de calcul a été multiplié par 20 par rapport au calcul précédent.

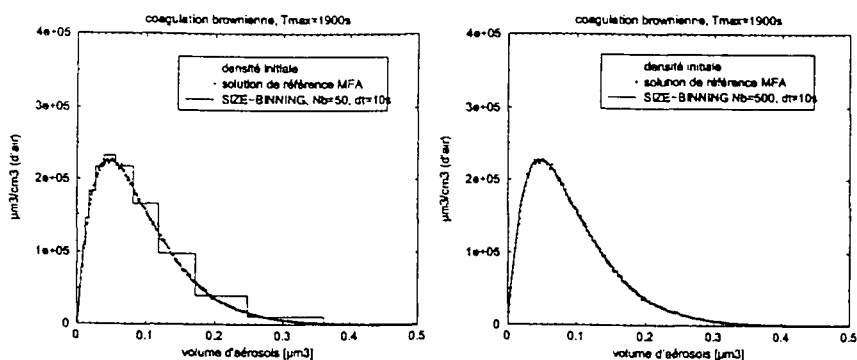


FIG. 3 - Comparaison entre algo- MFA SIZE-BINNING, Nb=50 rithme MFA SIZE-BINNING, Nb=500 CPU=0.7s .
 FIG. 4 - Comparaison entre algo- MFA SIZE-BINNING, Nb=500 rithme MFA SIZE-BINNING, Nb=500 CPU=14s .

3.2.2 Condensation-évaporation et nucléation

La GDE (1), une fois réduite à la condensation-évaporation nucléation, devient une équation d'advection sur le spectre des volumes d'aérosols :

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial(I_0 n)}{\partial v}(v, t) = \delta_{(v_0, v)} J_0(t) \quad (5)$$

Plusieurs algorithmes ont déjà été développés pour résoudre ce type d'équation différentielle hyperbolique :

- Positive-definite Advection Scheme (Andreas Bott 1988, Wexler 1996),
- Flux-based characteristics method (Fernández-Díaz 1998),
- Finite elements method (Varoglu and Finn 1980, Tsang and Brock 1984).

Nous ne donnons pas plus de précisions car les approches couplées nous semblent plus pertinentes .

3.2.3 Couplage : Eléments finis (EF) [Sandu, 2001]

Cette approche est de loin la plus efficace car elle est fondée sur une discrétisation maîtrisée du modèle de dynamique des aérosols. Ces travaux sont en cours et on présente ici le principe de l'approche ainsi que les résultats obtenus pour la coagulation.

Cette méthode consiste à projeter la PSD sur un espace de fonctions connues et à chercher la solution à l'intérieur de cet espace.

Soit L_i , $i = 1, \dots, s$ une base de cet espace ; les fonctions L_i sont le plus souvent des polynômes, tels que les polynômes de Lagrange ou des polynômes orthogonaux (Legendre, Laguerre, ...). On approche la densité volumique $q(v, t)$ par $\sum_{i=1}^s q^i(t) L_i(v)$ que l'on introduit dans (1).

Après intégration sur le spectre d'aérosols, on obtient le système d'équations différentielles pour le vecteur q :

$$q(t) = (q^1(t), \dots, q^s(t))^T, \quad \frac{dq}{dt} = \underbrace{B(q, t)q}_{\text{coagulation}} + \underbrace{D(t)q(t)}_{\text{condensation}} + \underbrace{J(t)}_{\text{nucléation}} \quad (6)$$

où B et D sont des opérateurs calculés à partir des polynômes L_i et des noyaux de chaque processus, et peuvent être précalculées. Le système obtenu est ensuite résolu en temps avec un solveur approprié.

Dans un premier temps on a testé cet algorithme pour la coagulation constante. La figure 5 vérifie que la décroissance de l'erreur en fonction du nombre de polynômes est de la forme $C_1 e^{-C_2 S}$ où C_1 et C_2 sont des constantes, l'erreur atteint rapidement une borne inférieure qui dépend de la discrétisation en temps.

La figure 6 compare pour la coagulation brownienne les algorithmes MFA et éléments finis. La solution EF est confondue avec la solution de référence MFA, celle-ci est donc aussi bien approchée qu'avec le SIZE-BINNING (figure 4) mais avec un temps CPU 56 fois plus petit.

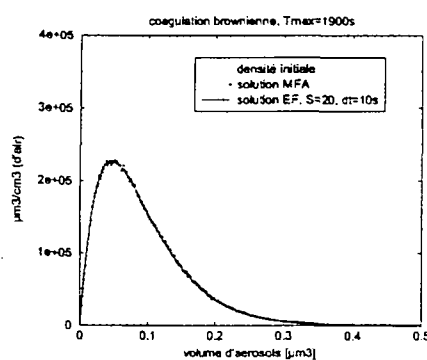
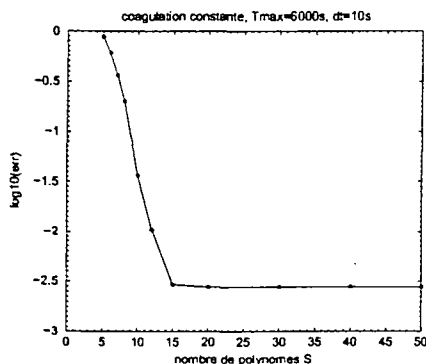


FIG. 5 - Logarithme de l'erreur relative sur la densité de volume fonction du nombre S de polynômes.

FIG. 6 - Comparaison entre MFA et éléments finis pour la coagulation brownienne, CPU=0.25s.

4 Conclusion et perspectives

Le "mass flow algorithm" permet d'obtenir des solutions de référence mais s'avère trop coûteux en temps CPU pour être utilisé dans un code de dispersion 3D.

Le SIZE-BINNING reste une méthode "robuste" pour résoudre la coagulation. Cependant les inconvénients restent le manque de résultats théoriques de convergence ainsi que les phénomènes de diffusion pour les grandes boîtes. De plus cette méthode s'insère dans le cadre d'une approche découplée qui fait nécessairement apparaître des erreurs de splitting.

La méthode des éléments finis bénéficie d'un bon cadre théorique et permet une résolution couplée de la dynamique des aérosols. Les quelques tests effectués pour la coagulation montrent que cette méthode est préférable au SIZE-BINNING.

Dans nos prochains travaux nous chercherons donc à étendre la méthode des éléments finis à toute la GDE, puis aux aérosols multi-composés. Dans ce dernier cas et afin de tester l'algorithme sur une situation physique plus réaliste, il est prévu de le coupler à un module thermodynamique, tel que ISORROPIA [Nenes et al., 1998].

Remerciements

Ce travail fait partie d'un projet de validation d'un modèle 3D pour les aérosols atmosphériques (PAM : Pollution Atmosphérique Multiphasique). Nous remercions nos collègues Benjamin Jourdain (ENPC-CERMICS), Adrian Sandu (Michigan Tech. Un.), Gilles Bergametti et Bernard Aumont (LISA) ainsi que Luc Musson-Genon (EdF) pour leur collaboration.

Références

- [Babovsky, 1999] Babovsky, H. (1999). On a monte carlo scheme for smoluchowski's coagulation equation. *Monte Carlo Methods and Applications*, 5(1) :1-18.
- [Binkowski and Shankar, 1995] Binkowski, F. and Shankar, U. (1995). The regional particulate matter model : Model description and preliminary results. *Journal of geophysical research*, 100(26) :191-209.
- [Debry et al., 2001] Debry, E., Jourdain, B., and Sportisse, B. (2001). Modeling of aerosol dynamics : a stochastic algorithm. In Sportisse, B., editor, *Proceedings of APMS 2001*, Geosciences. Springer.
- [Domilovskii et al., 1978] Domilovskii, E., Lushnikov, A., and Piskunov, V. (1978). Monte carlo simulation of coagulation processes. *Dokl. Akad. Nauk SSSR, Ser. Phys. Chem.*, 240(1).
- [Fernández-Díaz et al., 2000] Fernández-Díaz, J., González-Pola Muñoz, C., Rodríguez Braña, M., Arganza García, B., and García Nieto, P. (2000). A modified semi-implicit method to obtain the evolution of an aerosol by coagulation. *Atmospheric Environment*, 34 :4301-4314.
- [Gelbard et al., 1980] Gelbard, F., Tambour, Y., and Seinfeld, J. (1980). Sectional representations for simulating aerosol dynamics. *Journal of colloid and Interface Science*, 76(2) :541-556.
- [Jacobson et al., 1994] Jacobson, M., Turco, R., Jensen, E., and Toon, O. (1994). Modeling coagulation among particles of different composition and size. *Atmospheric Environment*, 28(7) :1327-1338.
- [Nenes et al., 1998] Nenes, A., Pandis, S., and Pilinis, C. (1998). Isorropia : A new thermodynamic equilibrium model for multicomponent inorganic aerosols. *Aquatic geochemistry*, 4 :123-152.
- [Sandu, 2001] Sandu, A. (2001). A spectral method for solving aerosol dynamics. Submitted to Applied Numerical Mathematics.
- [Seinfeld and Pandis, 1998] Seinfeld, J. and Pandis, S. (1998). *Atmospheric chemistry and Physics*. Wiley-interscience.
- [Whitby and McMurry, 1997] Whitby, E. and McMurry, P. (1997). Modal aerosol dynamics modeling. *Aerosol Science and Technology*, 27 :673-688.

INTERACTIONS AÉROSOLS - CLIMAT.

Y. Balkanski *(1).

(1) Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, l'Orme des Merisiers Bât. 709, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex

Les changements de la composition de l'atmosphère ont un impact sur les principales composantes du système terre que sont l'atmosphère, la biosphère continentale et l'océan. Bien que de telles variations se soient produites naturellement lors de la vingtaine de glaciations de ces derniers millions d'années, les modifications apportées par l'homme sont soudaines à l'échelle géologique et conduisent aux concentrations en gaz à effet de serre et en aérosols les plus élevées de l'ère Holocène. Il est donc prioritaire de quantifier les effets que les changements actuels et futurs auront sur le climat. Afin de décrire ces changements trois voies doivent être menées en parallèle : les études de laboratoire et de processus, la modélisation et la détection des changements par des mesures in-situ et l'observation à partir de satellites.

Cet exposé s'intéresse particulièrement aux deux derniers points, je discuterai de l'effet des aérosols sur le climat et de la détection des aérosols par capteurs embarqués sous satellite.

Les aérosols ont un effet radiatif direct sur la radiation incidente par diffusion et absorption de la lumière. Ils ont également un effet indirect au travers de la formation de nouvelles particules qui accroît la réflectivité au sommet des nuages. L'estimation de ces effets reste incertaine, la valeur moyenne globale variant de -0.1 à plus d'un $W m^{-2}$. Les principales sources d'incertitudes qui demeurent sont : la composition de l'aérosol, sa distribution en taille, l'état de mélange, l'hygroscopicité de ces particules et leurs propriétés optiques.

Jusqu'à présent, la modélisation globale de l'aérosol s'attachait à décrire une seule composante (sulfate, minérale, carbonée ou sels marins). La nécessité de représenter mieux décrire les propriétés optiques des aérosols donc de simuler l'évolution de la distribution en taille a conduit à calculer simultanément la masse et le nombre d'aérosols présents. Une autre défi est de représenter l'état de mélange de l'aérosol en présence de deux ou plusieurs composantes. Il est alors important de prédire si l'aérosol est sous forme de mélange externe ou de mélange interne.

La surface des aérosols présents dans l'atmosphère est le lieu de réactions chimiques qui peut avoir un effet important sur l'abondance des gaz troposphériques. L'aérosol a ainsi un effet indirect sur le climat. A titre d'exemple, je présenterai l'influence de l'aérosol minéral sur les concentrations de plusieurs gaz clés dans les cycles photochimiques (HNO_3 , O_3 , H_2O_2 , N_2O_5). Les études de ces réactions sur les aérosols font intervenir des expériences de laboratoire, d'importantes campagnes de terrain où gaz et aérosols sont mesurés dans la même masse d'air, et la modélisation. Elles cherchent à quantifier l'effet de cette chimie hétérogène sur les gaz et les modifications des propriétés de surface des aérosols qui en découle (formation d'aérosols secondaires).

L'inclusion des réactions hétérogènes étudiée au laboratoire est en cours dans un modèle de circulation générale développé à l'Institut Pierre Simon Laplace. Ce modèle possède 19 niveaux verticaux afin de décrire l'atmosphère. Les 5 premiers niveaux représentent la couche limite, 10 niveaux se situent dans la troposphère libre et les 4 derniers niveaux constituent la stratosphère. La

résolution horizontale du modèle est de 2 degrés x 2 degrés. La chimie de l'ozone est représentée par 45 espèces incluant une description simplifiée des hydrocarbures. Chaque mode de la distribution en taille de l'aérosol est représenté par 2 traceurs. Ceci permet de pouvoir calculer simultanément la masse et le nombre d'aérosols présents. Les résultats de ce modèle couplé chimie-aérosol-climat sont comparés aux mesures faites pendant une campagne de terrain intensive à Mt Cimone (44°11'N, 10°42'E, 2165m). La simulation est guidée par les observations météorologiques de l'année 2000 produites par le Centre Européen de Prévisions au Moyen Terme. Je présenterai une comparaison des concentrations d'O₃ et de HNO₃ obtenus en présence et en l'absence de réaction hétérogène.

L'estimation de l'effet radiatif direct ou indirect des aérosols dépend principalement de leur répartition spatiale et temporelle, et de leurs propriétés optiques. Pour représenter la répartition spatio-temporelle de l'aérosol, les modèles décrivent de manière paramétrée les sources de ces composés, ainsi que les processus de nucléation, de coagulation et les dépôts sec et humide. Ces paramétrisations de processus doivent être validés dans des modèles unidimensionnels voire à l'aide de divers traceurs dans un modèle tridimensionnel. Une fois ces processus validés, la distribution globale de l'aérosol peut être évaluée en comparant les résultats des simulations à de longues séries de temps (> 1 année) des concentrations mesurées à la surface du globe. La couverture des satellites permet aussi de comparer la colonne intégrée de l'aérosol aux simulations, et d'estimer si les variations saisonnières ou épisodiques du transport à longue distance sont bien reproduites. A l'heure actuelle, la répartition verticale des aérosols ne peut-être déduite des capteurs passifs embarqués mais l'arrivée proche de LIDAR embarqués sous satellite permettra de déduire les variations dans la verticale. Il reste essentiel de favoriser les campagnes de terrain et les mesures aéroportées qui apportent l'information sur la composition chimique et l'état de mélange de l'aérosol.

L'effet radiatif de l'aérosol est calculé à partir des propriétés optiques suivantes : coefficient d'extinction, albédo de simple diffusion et facteur d'asymétrie. Le rôle des mélanges et leur influence sur l'effet radiatif sera discuté pour l'aérosol minéral dont les propriétés optiques dépendent de la présence d'oxydes de fer (Claquin et al., 1998 ; 1999). Deux éléments majeurs contrôlent si l'aérosol minéral a pour effet de réchauffer ou de refroidir la colonne atmosphérique : la quantité d'oxydes de fer présents et leur disposition sur la surface de l'aérosol. Trois différents états de mélange et leur conséquence sur l'effet radiatif seront décrits.

Finalement, l'effet radiatif des gaz à effet de serre de longue durée de vie sera comparé à celui des aérosols.

De nouveaux instruments tels que les spectromètres de masse analysant la composition de particule individuelles permettront de caractériser l'état de mélange de l'aérosol (interne ou externe). Le futur lancement de LIDAR embarqué afin de décrire la distribution verticale des aérosols qui complémente la distribution bidimensionnelle déduite des mesures par capteurs passifs. Enfin, l'inclusion dans les modèles du système terre de modules traitant à la fois de la chimie et des aérosols offrent l'opportunité d'estimer les changements présents et futurs de l'atmosphère, de la biosphère et de l'océan.

Balkanski Y., Schulz M., Van Dingenen R., Putaud J. P., Bonasoni P., Hanke M., Gobbi G. P., Crowley J., Rossi M., Dentener F. and Raes F., 2001. An overview of the MINATROC project (MINeral dust And TROspheric Chemistry), 8th European Symposium on the Physico-Chemical Behaviour of Atmospheric Pollutants, 17-20 September 2001, Torino, Italy.

Bauer S. E., Balkanski Y., Schulz, M., Moulin⁽¹⁾ C., Gobbi⁽²⁾ G.P., F. Dentener 2001. Modeling the influence of mineral dust on chemical trace species), 8th European Symposium on the Physico-Chemical Behaviour of Atmospheric Pollutants, 17-20 September 2001, Torino, Italy.

Claquin, T., Schulz, M., Balkanski, Y. and Boucher, O., 1998. Uncertainties in modelling the radiative forcing of mineral dust, *Tellus*, **50B** 491-505.

Claquin, T., Schulz, M., and Balkanski, Y., 1999. Modeling the mineralogy of atmospheric dust sources, *J. Geophys. Res.* **104**, 22,243-22,256.

ESQUIF 2000 : SURVEILLANCE DES AEROSOLS EN REGION ILE DE FRANCE

H. Randriamiarisoa¹, P. Chazette¹, J. Sanak¹, C. Flamant², M. Sicard, S. Alfaro³.

¹Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, CE-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France.

²Service d'Aéronomie du CNRS, UPMC - F-75232 Paris Cedex 05, France.

³Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques, Univ. P.XII, 94010 Créteil, France.

1. Introduction

Une des sources d'incertitudes les plus importantes pour la compréhension de l'impact des activités humaines sur l'environnement urbain est associée à la composante aérosol de la circulation atmosphérique. En effet, l'aérosol urbain sous ses formes physiques, chimiques, optiques et les relations entre chacun de ces termes ne sont pas suffisamment connus pour pouvoir évaluer leurs rôles radiatif et chimique dans les situations de moyenne ou forte pollution. Des rôles qui peuvent être différents en fonction de la répartition en altitude et des propriétés de vieillissement de l'aérosol.

Pour caractériser précisément l'aérosol en région Ile-de-France, nous avons effectué des campagnes coordonnées entre des stations au sol et des instruments aéroportés. Les mesures dédiées à l'étude de l'aérosol ont été conduites pendant et en dehors des Périodes d'Observation Intensives (POI) du programme national ESQUIF. Elles se sont déroulées sur des périodes continues entre l'été 1998 et l'hiver 2001. La majeure partie des observations a été effectuée durant l'été afin d'appréhender l'impact de l'aérosol de pollution sur les taux de photolyse et donc sur la pollution photo-oxydante.

Nous avons suivi l'évolution de l'aérosol urbain dans le temps et dans l'espace. Nos moyens d'investigation ont été complétés tout au long du programme ESQUIF par l'obtention de nouveaux instruments, la mise en place de plusieurs sites d'observation sur Paris et sa banlieue, et la disponibilité de moyens aéroportés dédiés.

Les expériences multi-instrumentées conduites durant les campagnes nous ont permis une première caractérisation chimique et optique de l'aérosol en région Ile-de-France sur une période hivernale. Cette caractérisation passe par des études dites « de fermeture ». Les études de fermeture que nous avons effectuées jusqu'ici reposent sur des données sol in situ, mais elles permettent néanmoins d'avoir une idée précise de la composition chimique par classe de taille, de la granulométrie en nombre et des propriétés optiques en diffusion et en absorption de l'aérosol urbain.

Dans un premier temps, nous allons décrire la méthodologie utilisée pour caractériser les aérosols ainsi que la stratégie mise en place durant le programme ESQUIF pour satisfaire à cette méthodologie. Ensuite sur une situation estivale et une situation hivernale, des études sur la composition chimique ainsi que sur la distribution granulométrique en nombre des aérosols vont être présentées. Après une étude de fermeture, les premiers résultats sur les propriétés optiques des aérosols en région Ile de France durant l'hiver seront montrés. Avant de conclure, nous présenterons des résultats décrivant l'évolution spatiale et temporelle des aérosols présents lors d'une des périodes intensives de la campagne aéroportée ESQUIF 2000.

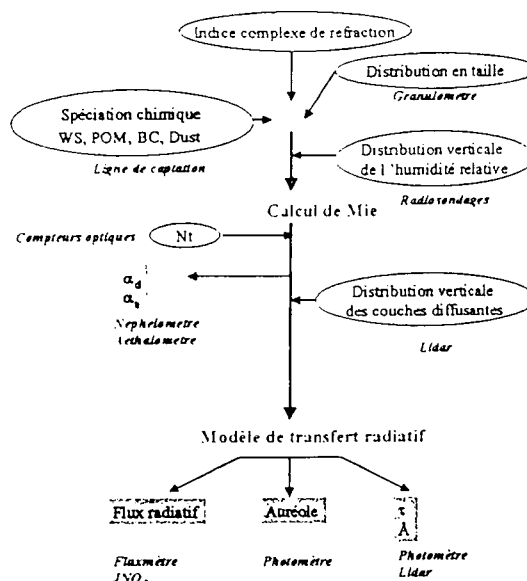
2. Méthodologie

La méthodologie que nous avons mis en place a pour objectif la détermination des paramètres structuraux, optiques et chimiques de l'aérosol en région urbaine et péri-urbaine. Elle repose sur des études de fermetures qui permettent d'évaluer simultanément les incertitudes associées aux procédures de mesure et d'analyse.

Le principe des études de fermeture dédiées à l'aérosol urbain est présenté sur la Figure 1. Les paramètres liés à l'aérosol doivent être mesurés directement ou indirectement (après inversion) et on cherche à retrouver un ou plusieurs d'entre eux par la modélisation. Les paramètres modélisés sont alors comparés à ceux mesurés. Une telle procédure nous permet aussi de vérifier la cohérence des jeux

de données et d'évaluer plus précisément les sources d'incertitudes liées aux mesures ou aux hypothèses simplificatrices qui peuvent être utilisées dans la modélisation.

Figure 1 : Schéma représentant le principe de l'étude de fermeture pour la caractérisation de l'aérosol urbain. L'ensemble des paramètres utiles est mesuré ou déduit de la mesure et sa cohérence est vérifiée par la modélisation. Les paramètres utilisés comprennent : - les concentrations massiques de solubles autres qu'organiques (WS), de carbone organique (POM), de carbone suie (BC) et de poussières (Dust) ; - les concentrations en nombre (N_t) ; - les coefficients de diffusion (α_d) et d'extinction (α_a) ; - l'épaisseur optique (τ) et le coefficient d'Angström (\AA) ; - le taux de photolyse du NO_2 ($J\text{NO}_2$).



3. Stratégie expérimentale

Durant l'ensemble du programme ESQUIF nous avons utilisé différents types d'instruments in situ, et de télédétection passive et active. L'instrumentation sol a été répartie sur différents sites: plateau de Saclay, Paris, Créteil, Creil et Brétigny. Ces différentes stations sol nous ont permis de suivre l'évolution spatio-temporelle de l'aérosol urbain.

Pour compléter ce dispositif, certains des instruments ont été embarqués à bord de la station mobile SAM (Station Aérosol Mobile), et à bord d'avions de recherche comme le Merlin IV de MétéoFrance et l'Avion de Recherche Atmosphérique et de Télédétection (ARAT) de l'Institut des Sciences de l'Univers (INSU). Pour les mesures dédiées à l'aérosol, les stations fixes et mobile (SAM) ont été équipées la plupart du temps d'une microbalance (TEOM), d'un compteur/granulomètre optique, de filtres d'échantillonnage, d'un néphélomètre, d'un aethalomètre, d'un impacteur à 13 étages et d'un photomètre. Les avions étaient équipés généralement d'un Lidar, d'un néphélomètre, d'un aethalomètre, de filtres d'échantillonnages et d'un compteur/granulomètre optique. Les stations étaient dotées également d'analyseurs d'ozone, de monoxyde de carbone et d'oxyde d'azote. Tous ces dispositifs permettent aussi bien des mesures en temps réel que des mesures intégrées.

4. La composition chimique de l'aérosol

L'analyse par chromatographie ionique a permis de préciser la répartition par classe de taille des espèces ioniques majeures présentes sur les sites de mesure qui disposaient d'impacteurs 13 étages DEKATI. Les concentrations en composés élémentaires ont été obtenues suite à des analyses par fluorescence X sur les différents étages de l'impacteur. Des acquisitions ont aussi été effectuées simultanément pour la composante carbonée de l'aérosol urbain/périurbain sur des filtres individuels.

La répartition par classe de taille des ions majeurs et des composés élémentaires pour les deux périodes de mesures de mars 2001 (site de Brétigny) et de juillet 2000 (sites de Paris et de Saclay) a été effectuée. Les concentrations d'ion sulfate (SO_4^{2-}) et de soufre élémentaire se sont révélés être en bon accord. Ceci a conduit à penser que le soufre est principalement présent sous forme de sulfate. Pour les cas étudiés, la stœchiométrie ammonium/sulfate montre une nette saisonnalité : en hiver le sulfate d'ammonium ($\text{NH}_4^+2\text{SO}_4^{2-}$) prédomine alors qu'en été l'aérosol semble plus acide et contenir principalement du sulfate acide d'ammonium ($\text{NH}_4^+\text{H}^+\text{SO}_4^{2-}$). Le sulfate acide d'ammonium est la forme dominante des sulfates dans les atmosphères polluées (Weiss et al., 1982). On a aussi observé des quantités significatives de sodium (Na) et de chlore (Cl) en hiver, éléments pour lesquels les concentrations sont en accord pour les deux types d'analyses utilisées. Une partie de ces concentrations

a vraisemblablement une origine marine, des masses d'air marin étant souvent advectées vers la région parisienne durant l'hiver. Les très faibles concentrations d'ions chlorure observées durant la période estivale résulteraient de l'acidité de l'aérosol (le NaCl conduit alors à l'acide chlorhydrique gazeux), mais elles peuvent être aussi liées à l'origine de la masse d'air échantillonnée. Les concentrations en potassium sont beaucoup plus élevées l'hiver et sont liées soit aux chauffages des habitations soit à du soulèvement local de poussière terrigène (car une bonne partie du potassium est insoluble).

En effectuant la synthèse des concentrations ioniques et en les regroupant sous la terminologie de "Water Soluble" (WS), on obtient les distributions en masse équivalentes à l'ensemble de ces composés présentées sur la Figure 2. On constate la présence de deux modes. Le premier est centré vers $0.2 \mu\text{m}$ en rayon. C'est pour ce mode que l'acidité est très variable et donc la composition chimique de l'aérosol (passage du chlore à l'état gazeux, fixation ou non de l'acide nitrique). Il est principalement composé de sulfates et de nitrates de potassium et/ou d'ammonium. Le second, plus grossier, est centré sur environ $1 \mu\text{m}$ en condition hivernale/périurbaine et $2 \mu\text{m}$ en condition estivale/urbaine. Il est constitué essentiellement de chlorures de sodium, d'ammonium ou de magnésium.

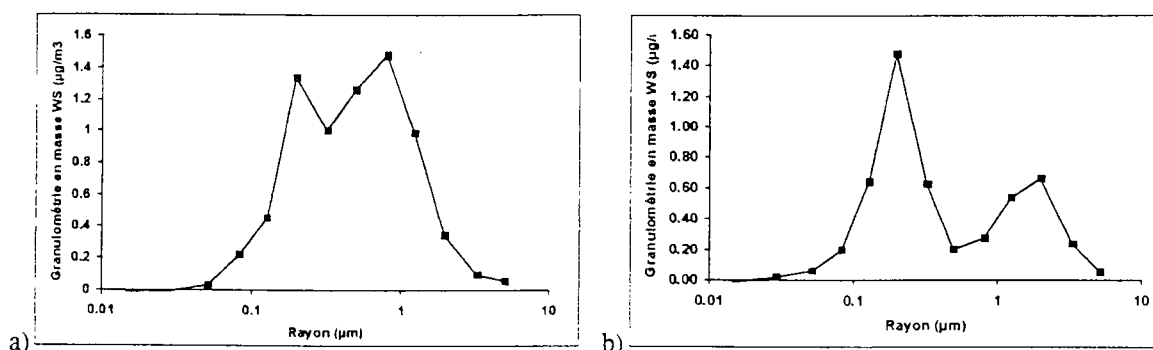


Figure 2 : Distribution équivalente en masse pour l'ensemble des ions majeurs (WS) en période a) hivernale et b) estivale

Le résultat de l'analyse thermique des filtres d'impacteur dédiés à l'analyse de la composante carbonée de l'aérosol urbain nous a permis d'obtenir les concentrations moyennes en carbone suie et carbone organique sur les périodes de mesure. Des valeurs moyennes de l'ordre de $0.96 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour le carbone suie (BC) et $1.82 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour le carbone organique (OC) ont été obtenues en situation hivernale. En situation estivale la concentration en carbone organique est plus élevée, certainement par l'effet des réactions photochimiques sur les composés organiques gazeux et formation d'aérosols secondaires. On obtient des valeurs de $2.36 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour le BC et $4.58 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour le OC. Le rapport $\text{BC}/(\text{BC}+\text{OC})$ semble peu évoluer entre les deux sites étudiées en considérant une valeur $\approx 0.34 \pm 0.05$. Cette valeur correspond à des émissions principalement dues à l'activité automobile comme l'ont montré Novakov et al. (2000). A courte échelle de temps, le carbone suie présente une forte variabilité (Fig. 3). Il apparaît ici comme un traceur pertinent des épisodes de pollution en région Ile de France influencé par le cycle dynamique diurne de la couche limite. Les moyens d'échantillonnage actuels ne permettent pas une évaluation haute fréquence du rapport $\text{BC}/(\text{BC}+\text{OC})$.

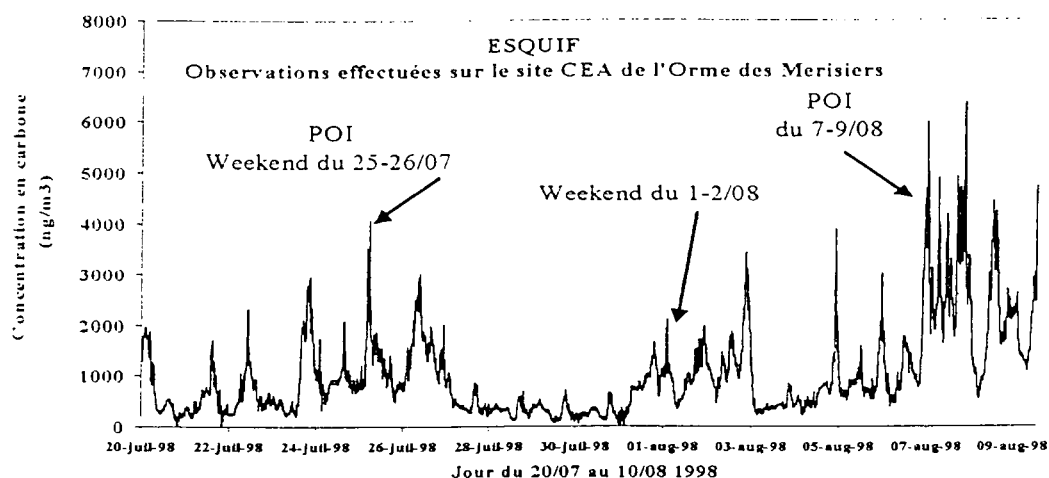


Figure 3 : Evolution temporelle de la concentration massique en carbone suie durant ESQUIF été 1998. On voit apparaître de fortes concentrations durant les deux premiers POI du programme ESQUIF.

5. La granulométrie en nombre de l'aérosol

La granulométrie en nombre a été mesurée à partir de différents instruments optiques in situ. Elle a été évaluée à partir des données du compteur de noyaux TSI et de deux granulomètres optiques complémentaires. Nous avons cherché à ajuster des distributions multimodales lognormales sur les observations. Un tel ajustement nous permettra par la suite d'effectuer les calculs de section efficace de diffusion et d'extinction de l'aérosol à partir d'un modèle de diffusion basé sur la théorie de Mie (aérosol équivalent à des sphères).

Les analyses conduites en situation estivale et hivernale présentent pratiquement la même granulométrie composée de trois modes. Le premier mode correspond au mode de nucléation, le second au mode d'accumulation et le troisième au mode grossier qui pourrait être une seconde composante de la nucléation. En terme de nombre, plus de 99% des aérosols en région Ile-de-France présente des rayons inférieurs au micron. On a aussi vérifié ce point sur les granulométries obtenues à partir des observations aéroportées. Le premier mode en nombre n'apparaît pas sur les distributions en masse présentées précédemment. Ceci est lié au peu de matières présentes sur les filtres d'impacteur correspondant à cette classe de taille.

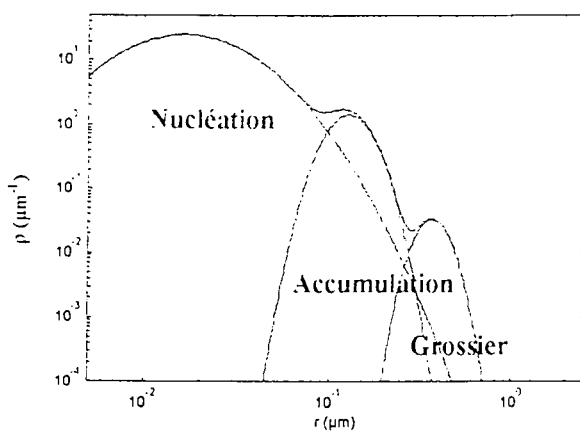


Figure 4 : Granulométrie en nombre de l'aérosol en région Ile de France

6. Propriétés optiques moyennes de l'aérosol

Les résultats obtenus sur les données hivernales à partir des analyses chimiques, des différentes études de fermeture couplés avec un modèle de transfert radiatif ont permis d'avoir une première estimation de deux paramètres optiques très importants de l'aérosol en Ile de France durant l'hiver. Il s'agit du coefficient d'Angström qui exprime la dépendance spectrale des paramètres

optiques et de l'albédo de simple diffusion (rapport entre coefficient de diffusion et d'extinction). Ce dernier est un des paramètres clés pour caractériser le comportement absorbant de l'aérosol qui influe significativement sur les taux de photolyse (Randriamiarisoa et al., 2001 ; Léon et al., 2000). Les valeurs obtenues sont résumées dans le Tableau 1.

Angström mesuré	1.37±0.05	Angström calculé :	1.33±0.07
		Albédo de simple diffusion calculé :	0.86±0.05 à 450 nm 0.83±0.05 à 700 nm

Tableau 1 : Résultat de l'étude de fermeture sur l'aérosol urbain/périurbain du site de Brétigny

L'albédo de simple diffusion correspondant au model d'aérosol moyen déterminé est de 0.86 à 450 nm et de 0.83 à 700 nm. Ces valeurs sont en bon accord avec celles obtenues pour les aérosols de pollution de la côte Est des Etats Unis (Hegg et al., 1997) et dans le panache de mousson d'hiver issu du sous-continent Indien (Randriamiarisoa et al., 2001).

7. Répartition spatiale

Pour comprendre le rôle de l'aérosol urbain dans les épisodes de pollution, il est nécessaire de suivre son évolution dans le temps et dans l'espace, particulièrement dans la colonne d'atmosphère. Les mesures aéroportées nous permettent d'envisager la définition de modèles empiriques et physiques de l'évolution des propriétés chimiques et radiatives de l'aérosol à l'échelle régionale. Ces modèles seront à terme introduits dans les modèles de chimie/transport pour contraindre la détermination des constantes de photolyse qui interviennent par exemple dans la production de l'ozone troposphérique.

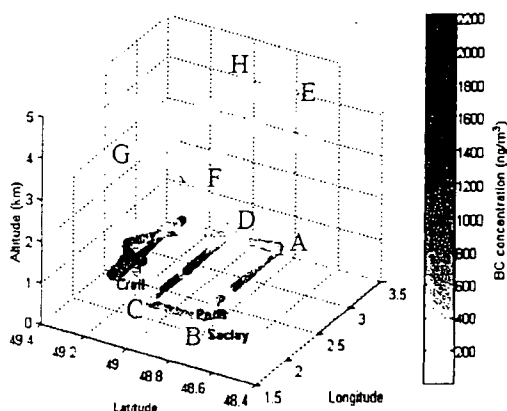


Figure 5 : Concentrations massiques de carbone suie mesurées par un aethalomètre à bord d'un avion pour la journée du 31 juillet 2000 (entre 12h30 et 16h locale).

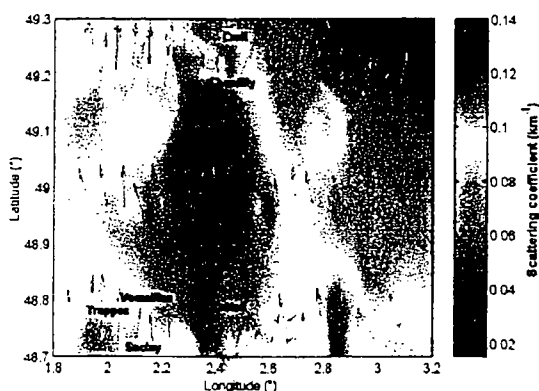


Figure 6 : Distribution spatiale du coefficient de diffusion de l'aérosol mesuré par un néphélomètre pour la journée du 31 juillet 2000.

Des mesures aéroportées ont été effectuées durant la campagne de l'été 2000. Le mois de juillet a été très pluvieux et les occasions de vol ont été très réduites. Quatre vols ont été effectués. Durant chaque vol, nous avons traversé le panache urbain. Pour le 19 et 20 juillet, nous avons un régime de vent local en provenance du Nord, alors que pour les 30 et 31 juillet le vent provenait plutôt du sud. La station SAM a donc été positionnée sur Saclay les 19 et 20 juillet et sur Creil les 30 et 31 juillet.

La figure 5 donne le plan de vol de l'expérience du 31 juillet. L'avion a décollé de Creil et s'est dirigé vers le Sud. Un premier trajet (AB) a été effectuée à 30 km environ au Sud de Paris et un second, symétrique (CD), au Nord de Paris. Au cours de ces deux étapes, l'avion se trouvait à environ

800 m d'altitude (à l'intérieur de la couche limite). Il effectuait alors des mesures in-situ et des mesures Lidar au zenith. Ensuite, des mesures Lidar au nadir correspondant aux trajets (EF) et (GH) ont été faites à une altitude d'environ 4000 m. On peut observer le panache parisien qui apparaît sur les mesures de concentration de carbone suie.

Comme le montre la Figure 5, la concentration moyenne en carbone suie (BC) augmente dans la couche de mélange en allant du Sud ($\approx 600 \text{ ng/m}^3$) au Nord ($\approx 1600 \text{ ng/m}^3$). La production parisienne en BC est donc de l'ordre de $0.8 \text{ } \mu\text{g/m}^3$. De la même manière, nous avons évalué la production d'ozone comme de l'ordre de 30 ppbv. Le coefficient de diffusion représenté par la Figure 6 a augmenté de 30 à 40% entre les mesures au vent et sous le vent de Paris.

8. Conclusion

Le travail scientifique précurseur présenté ici permet de tirer des conclusions intermédiaires avec un bon niveau de confiance sur l'évolution et la modélisation des aérosols urbains en région Ile-de-France :

- L'aérosol semble évoluer significativement d'une saison à une autre. Il semble en effet plus acide en été qu'en hiver.
- La partie organique de l'aérosol est plus importante l'été où les processus de photolyse sont plus efficaces.
- La partie carbonée de l'aérosol joue un rôle important sur les propriétés optiques de l'aérosol. Le carbone suie est la principale composante de l'absorption du rayonnement solaire. Elle conduit à des valeurs d'albédo de simple diffusion entre 0.83 et 0.86 dans le spectre visible en condition hivernale. La concentration de BC ne peut néanmoins pas être considérée comme représentative de l'évolution optique de l'aérosol ; l'humidité relative joue un rôle tout aussi important.
- La granulométrie en masse met en évidence deux modes principaux, que ce soit pour la période hivernale ou pour la période estivale. Le premier mode est centré vers $0.2 \text{ } \mu\text{m}$ en rayon, il est principalement composé de sulfates et de nitrates de potassium et/ou d'ammonium. Sa composition chimique est très variable d'une saison à l'autre. Le second est centré entre 1 et $2 \text{ } \mu\text{m}$. Il est constitué essentiellement de chlorures de sodium, d'ammonium ou de magnésium.
- La granulométrie en nombre fait apparaître 3 modes principaux : un mode de petites particules (mode de nucléation de rayon moyen inférieur à $0.05 \text{ } \mu\text{m}$). Ce mode est suivi par le mode d'accumulation avec des particules de rayons moyen de l'ordre de $0.1 \text{ } \mu\text{m}$. Le troisième mode est constitué de plus grosses particules (supérieures à $0.4 \text{ } \mu\text{m}$).
- L'aérosol du mode d'accumulation est un bon traceur du panache urbain.

Remerciements

Ce travail a été soutenu par l'Institut Pierre-Simon Laplace (IPSL), le Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement, le Conseil Régional d'Ile de France, le Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) et Elf Aquitaine. Nous adressons une vive reconnaissance à nos collègues du LSCE, SA, LMD, LISA, METEO-France et AIRPARIF qui ont participé aux différentes campagnes. Nous remercions également la Mairie de Paris qui nous a donné les moyens d'effectuer des mesures sur le champ de Mars durant l'été 1999.

Bibliographie

Chazette P. et C. Lioussé, A case study of optical and chemical ground Apportionment for urban aerosols in Thessaloniki, *Atm. Env.*, 35 (14), p. 2497-2506, 2001.

Hegg D. A., Livingston J., Hobbs P. V., Novakov T., Russell P., Chemical apportionment of aerosol column optical depth off the mid-Atlantic coast of the United States, *J. Geophys. Res.*, 102, D21, p.25293-25300, 1997.

Léon J.F., P. Chazette, J. Pelon, F. Dulac et H. Randriamarisoa, Aerosol direct radiative impact over the INDOEX area based on passive and active remote sensing, *J. Geophys. Res.*, sous presse, 2001.

Novakov, T., M.O. Andreae, R. Gabriel, T.W. Kirchstetter, O.L. Mayol-Bracero, V. Ramanathan. Origin of carbonaceous aerosols over the tropical Indian Ocean : Biomass burning or fossil fuels (Paper 2000GL011759), 27 (24), p. 4061-4064, 2000.

Randriamarisoa H., P. Chazette et J.F. Léon, Influence of the single scattering albedo on the NO₂ photolytic rate: A new method to retrieve the single scattering albedo, *J. Aerosol Sci.*, 32:suppl. 1, S51-S52, 2001.

Weiss R.E., T.V. Larson et A.P. Waggoner, In situ response measurements of H₂SO₄/(NH₄)₂SO₄ aerosols in rural Virginia, *Env. Sci. Tech.*, 16, 525-532, 1982.

Fractionnement des Particules dans un Nuage à la Station du Puy de Dôme

R. Dupuy*, K. Sellegri et P. Laj

Laboratoire de Météorologie Physique, Observatoire de Physique du Globe de Clermont, UMR6016, Université Blaise Pascal, 63177 Aubière Cedex.

Introduction

La connaissance incomplète des mécanismes régissant l'incorporation des aérosols dans les nuages limite la paramétrisation des transformations des polluants dans les modèles, tant au niveau global qu'à échelle régionale ou locale. Une des limitations à cette connaissance vient de la difficulté à quantifier l'évolution d'une particule dans la troposphère et son comportement en atmosphère humide. Par exemple, la prévision du nombre d'aérosols capable de nucléer à sursaturation donnée (spectre de nucléation des CCN) est un paramètre important pour le développement de paramétrisations réalistes de microphysique et par conséquent de l'albédo des nuages (Leitch et al., 1992). Le spectre de nucléation des CCN détermine également la contribution de la phase particulaire à la composition chimique des gouttelettes, donc à son pH et, par conséquent, influe directement sur la dissolution de gaz solubles dans la phase liquide. A l'heure actuelle, les modèles de simulation de la formation des nuages ne permettent pas à prévoir la fraction des particules d'aérosols pouvant agir comme CCN (Snider and Brenguier, 2000).

Les interactions entre les particules d'aérosol et les nuages ont été étudiées à la station du Puy de Dôme (1465 a.s.l.) durant les hivers 2000 et 2001. Le fractionnement des particules d'aérosol entre les gouttelettes de nuage et l'air qui les entoure dépend aussi bien de la dynamique de formation des nuages que des propriétés intrinsèques des particules (nombre, taille, composition chimique). Notre objectif est d'étudier les interactions entre la microphysique des nuages (i.e. le rayon effectif du nuage (Re) et son contenu en eau (LWC)) et le taux de fractionnement des particules (F_{Np}) pour différentes masses d'air. Nos mesures expérimentales sont comparées aux sorties d'un modèle de formation de nuage.

Méthode

1) Les mesures expérimentales

Une description de la station de mesures expérimentales du Puy de Dôme est faite dans Wobrock, 2001. Nos résultats expérimentaux ont été obtenus à l'aide d'un Counterflow Virtual Impactor (CVI) qui échantillonne les gouttelettes de nuage supérieures à 5 micromètres de diamètre aérodynamique, et d'un Round Jet Impactor (RJI) pour les particules d'aérosol de diamètre inférieur à 5 micromètres. On obtient ainsi une séparation en deux réservoirs des constituants de l'air nuageux, les gouttelettes et les particules interstitielles ou non-activées. Les gouttelettes échantillonnées par le CVI sont asséchées. Ces particules résiduelles sont les particules qui ont servi de noyaux de condensation aux gouttelettes de nuages (CCN), elles sont comptées par un CPC 3010 (TSI, St. Paul, MN). Un CPC 3760 (TSI, St. Paul, MN) est placé en aval du RJI, il permet de déterminer la concentration des particules interstitielles. La somme des deux concentrations donne la concentration totale de particules en présence lors de la formation du nuage (CN). Les deux échantillonneurs sont installés dans un tunnel à vent où la microphysique des nuages est mesurée par deux sondes optiques différentes. Un Particle Volume Monitor version aéroporté (PVM-100A, GSI, Reston, VA) était utilisé pour mesurer le contenu (LWC) et le rayon effectif des gouttelettes (Re) de nuage purement liquide. Il était associé à un Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP-100, PMS, Boulder, CO) qui a permis de mesurer le spectre des gouttelettes, à partir duquel Re , LWC et la concentration des gouttelettes ont été calculés. Le taux de particules incorporées au nuage (F_{Np}) peut ensuite être déterminé en calculant le rapport de CCN sur CN.

Nous avons échantillonné 19 événements nuageux différents d'une durée typique de 8 heures, dont le pas de temps est de 1 s, ce qui correspond à plus de 368500 échantillons (CN, F_{Np} , LWC, Re). Ces mesures représentent une grande variété de type de nuage (frontaux, stratiformes et/ou orographique) pour différentes conditions météorologiques. Ainsi, les concentrations de CCN varient de 50 à 1800 $\#.cm^{-3}$ (valeur moyenne = $630 \pm 380 \#.cm^{-3}$), celles de CN de 50 à 7000 $\#.cm^{-3}$ (valeur moyenne = $1500 \pm 1000 \#.cm^{-3}$). Le contenu en eau des nuages varie entre 0.1 et 0.8 $g.m^{-3}$ avec un écart type de 0.14 pour une valeur moyenne de 0.2 $g.m^{-3}$, tandis que le rayon effectif des gouttelettes varie entre 2 et 10 μm pour une valeur moyenne de $5 \pm 1 \mu m$.

D'après Martin, 1994, le rayon effectif du nuage peut être estimé par $R_{e,paramétré} = \alpha (LWC/CCN)^{1/3}$ où α est une constante qui vaut 70.89 dans un cas continental et 66.83 dans un cas maritime d'un nuage de type stratocumulus avec peu d'entraînement et de mélange. Dans le cas des données du puy de Dôme moyennées par classes de 0.03 $g.m^{-3}$ de LWC, la régression entre Re et $(LWC/CCN)^{1/3}$ est pratiquement linéaire ($R^2=0.98$) avec un coefficient directeur de 71.84 (Figure 1). Il apparaît donc que les données recueillies sont, de ce point de vue, homogènes, les nuages ayant un comportement proche des stratocumulus dans une masse d'air continentale. L'orographie joue donc un rôle important, imposant des sursaturations constantes de l'ordre de 1% typique de nuages à développement vertical.

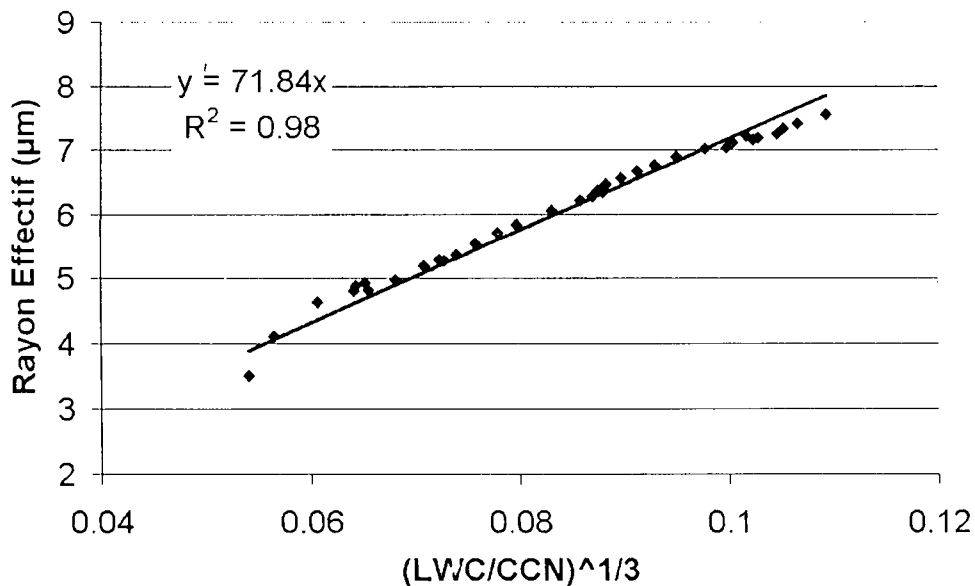


Figure 1 : Rayon effectif des gouttes de nuages en fonction de la paramétrisation de Martin, 1994, pour les événements nuageux du Puy de Dôme (données moyennées par classes de 0.03 $g.m^{-3}$ de LWC).

Les relations reliant les quatre paramètres considérés peuvent être étudiés tout d'abord en prenant chaque événement nuageux indépendamment. Il existe en effet une variabilité importante des paramètres étudiés au cours d'un même événements nuageux comme le montre les mesures effectuées durant la journée du 5 et 6 avril 2001 (cf. fig. 2). Le taux d'incorporation des particules dans le nuage oscille pratiquement sur toute sa gamme de valeur entre 0 (nuage évaporé) et 1 (valeur moyenne = 0.45 ± 0.19). En parallèle, les paramètres microphysiques du nuage sont extrêmement variables (LWC moyen = 0.2 ± 0.09 , et Re moyen = 5.1 ± 0.53). Cela s'explique très certainement par l'advection de masse d'air différente du début de l'événement nuageux jusqu'à 3h du matin le 6 avril, où l'on voit que la concentration totale de particules passe de 3500 $\#.cm^{-3}$ à une valeur moyenne de 1000 $\#.cm^{-3}$.

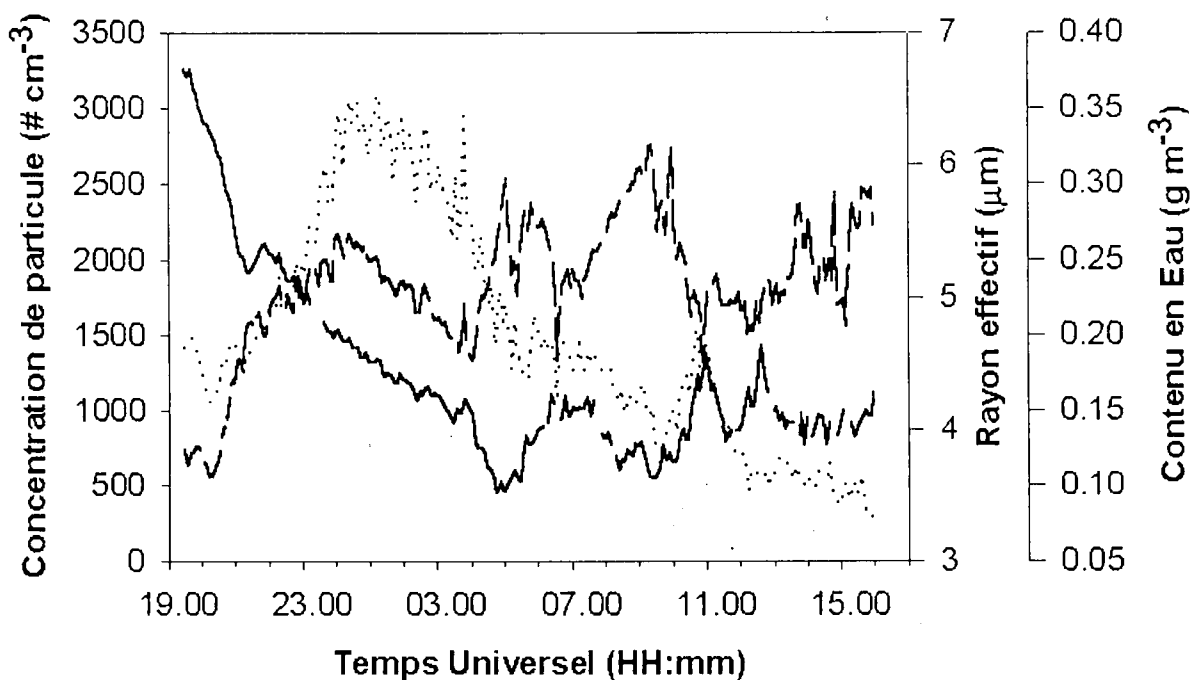


Figure 2 : Evolution temporelle des concentrations de particules résiduelles (en gris) et totales (en trait plein), du contenu en eau (en pointillé) et du rayon effectif (en tiré) pour l'évènement nuageux du 5 et 6 avril 2001 (moyennés sur 5 min).

Une approche statistique de ces données montre que les variations des paramètres considérées sont interdépendantes. Pour la journée du 05/04/2001, F_{Np} et LWC sont corrélés (coefficient de corrélation : 0.7), tandis que CN et Re sont anti-corrélés (coefficient de corrélation : -0.7) (cf. tableau 1a). Une approche statistique similaire effectuée sur l'ensemble de la base de donnée ne montre en revanche aucune corrélation significative (cf. tableau 1b). Les interdépendances n'apparaissent que sur de courtes périodes de temps, voir sur un évènement nuageux. Il résulte qu'il n'existe pas de relation simple permettant, à partir du taux de fractionnement des particules dans un nuage, d'en prévoir les propriétés microphysiques. Il paraît évident qu'un ou plusieurs paramètres non analysés influencent les interactions entre les paramètres mesurés.

LWC	LWC
Re	Re
F_{Np}	F_{Np}
CN	CN
LWC	LWC
1	1
0.01	0.37
0.70	0.11
0.20	0.28
Re	Re
0.01	0.37
1	1
-0.12	-0.25
-0.70	-0.40

F_{Np}	F_{Np}
0.70	0.11
-0.12	-0.25
1	1
-0.15	-0.29
CN	CN
0.20	0.28
-0.70	-0.40
-0.15	-0.29
1	1

Tableau 1a : Matrice de corrélation des échantillons (LWC, Re, F_{Np} , CN) mesurés lors de l'événement nuageux du 05/04/2001.

Tableau 1b : Matrice de corrélation des 368500 échantillons (LWC, Re, F_{Np} , CN) mesurés au Puy de Dôme en hiver 2000 et 2001.

Il est intéressant à ce stade de développer une approche théorique des interactions entre F_{Np} , LWC, CN et Re au moyen d'un modèle de formation de nuage.

2) La modélisation

Les relations entre les paramètres étudiés sont simulées à partir d'un modèle multispectral évoluant dans une parcelle d'air parcourant une trajectoire déterminée par un modèle méso-échelle. Ce modèle de formation des nuages est initialisé par une population d'aérosol dont le spectre dimensionnel correspond au spectre trimodal d'aérosols continentaux de Jaenicke, 1988. Ce spectre est similaire à ceux rencontrés au sommet du Puy de Dôme (Wobrock et al., 2001). La concentration totale de particules est ajustée afin d'obtenir de correspondre à celle mesurée. Les caractéristiques chimiques de cet aérosol sont représentées par la masse moléculaire, le coefficient d'accommodation, le nombre d'ions dissociés et la fraction soluble pour chaque mode du spectre dimensionnel. Afin de modéliser le plus grand nombre de nuages différents, il est possible de faire varier la base du nuage en changeant l'humidité relative au début de la trajectoire trouvée par le modèle méso-échelle.

Afin de faciliter les comparaisons avec les simulations du modèle, les échantillons sont classés en trois sous échantillons tout d'abord suivant leurs concentrations de particule CN. $CN < 1000 \text{ \#.cm}^{-3}$ est un aérosol continental de fond (CAS 1), $1000 < CN < 2500$ est un aérosol continental normal (CAS 2) et $CN > 2500$ est un aérosol continental pollué (CAS 3). On peut considérer que le contenu en eau liquide du nuage est une première approximation de la base du nuage. Par suite, les échantillons ont été classés dans un deuxième temps suivant leur LWC. Trois types de nuages ont été définis : un nuage fin pour un $LWC < 0.1 \text{ g.m}^{-3}$, un nuage moyen où $0.1 \text{ g.m}^{-3} > LWC > 0.2 \text{ g.m}^{-3}$ et un nuage épais avec un $LWC > 0.2 \text{ g.m}^{-3}$. Nous avons donc un classement considérant le type de masse d'air ainsi que la dynamique de formation du nuage.

Nous avons comparé le taux de fractionnement des particules dans les neuf cas décrits ci-dessus. Les histogrammes de la fréquence de distributions de F_{Np} sont pour la plupart monomodaux (excepté le CAS 1-nuage épais). Les modes et les écart-types sont indiqués dans le tableau 2. Ils sont comparés à ceux calculés par le modèle pour les différents cas.

F_{Np}	CAS 1		CAS 2		CAS 3	
	Mesuré	Modélisé	Mesuré	Modélisé	Mesuré	Modélisé
Nuage Fin	0.3 ± 0.15	0.59	0.4 ± 0.15	0.51	0.24 ± 0.05	0.31
Nuage Moyen	0.45 ± 0.15	0.63	0.5 ± 0.1	0.58	0.31 ± 0.05	0.5
Nuage Epais	3 modes	0.54	0.6 ± 0.1	0.48	0.45 ± 0.05	0.4

Tableau 2 : Mode et écart type des fréquences d'apparition du taux d'incorporation des particules dans le nuage et sa valeur équivalente modélisée pour différents types de nuages et masses d'air.

On s'aperçoit d'une part que le F_{Np} mesuré est de 15 à 35 % inférieur que celui prédit par le modèle. D'autre part, contrairement aux simulations du modèle, F_{Np} augmente avec LWC, mais ne diminue pas forcément avec la concentration de particules.

Toutefois, le comportement modélisé du rayon effectif suivant le taux d'incorporation des particules semble confirmer les résultats des mesures (cf. fig. 3). En effet, en maintenant constantes les caractéristiques physico-chimiques des CN, on voit que le taux d'incorporation des particules augmente lorsque la quantité d'eau augmente à partir de la base du nuage. Au maximum de sursaturation, toutes les particules pouvant servir de noyaux de condensation sont activées en gouttelettes et on atteint un maximum d'incorporations des particules dans le nuage. Ensuite, la diminution de la sursaturation va provoquer l'évaporation des petites gouttelettes au profit des grosses entraînant une augmentation de Re . Ainsi, on retrouve la théorie de Köhler qui régit le modèle utilisé dans les mesures, avec un maximum de F_{Np} , suivi d'une décroissance de F_{Np} avec augmentation de Re .

Si l'on regarde les mesures correspondant à des concentrations de 2500 particules.cm⁻³, on s'aperçoit cependant qu'il existe des variations importantes de F_{Np} pour Re croissant. Ces variations de F_{Np} correspondent à celles prévues par le modèle pour une concentration de 1300 particules.cm⁻³ dont la solubilité augmenterait de 30 à 90 %. Or, la solubilité est le facteur chimique relatif aux particules ayant le plus d'influence sur leur taux d'incorporation dans les nuages. De telles variations de F_{Np} sont donc explicables par le modèle dans un cas de variation importante de la solubilité.

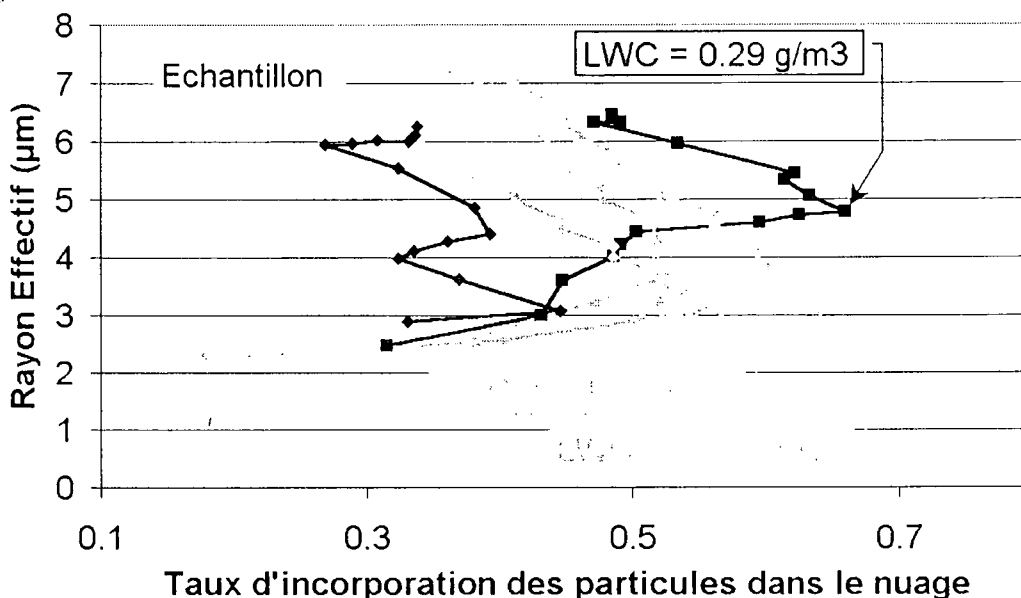


Figure 3 : Rayon effectif en fonction du taux d'incorporation des particules dans le nuage pour le modèle (en gris) et les échantillons (en noir) à CN constant de 1330 ± 10 (carré, solubilité de 90% et triangle, solubilité de 30%) et $2500 \pm 50 \text{ #.cm}^{-3}$ (losange).

Inversement, pour une concentration de CN de 1300 particules.cm⁻³, le taux d'incorporation maximum est atteint pour un Re et un LWC plus important que celui prévu par le modèle. Ceci semble indiquer que les gouttes grossissent plus efficacement que ne le prévoit le modèle. Cette différence ne peut être obtenue en faisant varier les caractéristiques physico-chimiques de l'aérosol de départ.

Ces résultats seraient par contre en accord avec les récents travaux de Feingold, 2001 et Martinsson, 1999, considérant que la présence de certaines composées organiques a pour effet de retarder l'activation d'une fraction de l'aérosol entraînant par la même une quantité plus importante de vapeur d'eau disponible pour les aérosols activés. Ceci expliquerait alors un LWC plus important pour un Re plus gros à F_{Np} maximal. Ceci serait également en accord avec les travaux de Sellegri et al. (en préparation), montrant qu'une fraction importante de l'aérosol organique n'est pas lessivée dans les nuages au puy de Dôme.

Donc, il se peut qu'une mauvaise prise en compte de l'état de mélange des particules par le modèle explique les différences avec les mesures. Sur ce point, la théorie de Köhler montre des lacunes importantes. La prise en compte des processus d'entraînement dans le nuage pourrait également expliquer certaines différences rencontrées entre les mesures et le modèle.

Conclusion

Les mesures effectuées au Puy de Dôme durant les campagnes 2000 et 2001 ont fourni une base de données étendue sur les interactions nuages/particules. Il a été possible de déterminer le taux de fractionnement en nombre des aérosols pour une grande variété de nuages et de conditions environnementales, et d'étudier les variations de ce taux en relation avec les propriétés microphysiques des nuages. Nous avons observé des variations importantes du taux d'incorporation des particules que n'expliquent pas complètement les variations de la microphysique des nuages et qui ne peuvent être reproduites par un modèle de formation de nuage. Or, la croissance très limitée d'une fraction hydrophobe des particules d'aérosols permet une croissance plus efficace de la fraction hygroscopique. Ainsi, il se peut que les différences entre les mesures et le modèle proviennent d'une mauvaise description de la dynamique du nuage et/ou de la chimie de l'aérosol dans le modèle. Notamment, la prise en compte de certains composés organiques et de leur état de mélange apparaît comme un élément déterminant dans le processus d'activation des CCN.

Remerciements

La campagne de mesure PDD2001 a été financée par le programme coordonné PNCA-INSU, par l'ACI Jeune Chercheur (P. Laj), par la Région d'Auvergne, et par l'Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand. Les auteurs remercient Philippe Cétier du CEA de Saclay pour le prêt d'un compteur de particules.

Références

- Feingold, G., and P. Chuang, 2001. Possible effect of surfactants on droplets growth: Implications for cloud microphysical processes and climate. *J. Aerosol Sci.*, 32(S1): S923-S924.
- Jaenicke, R., 1988. Aerosol physics and chemistry. In: K.H. Hellwege (Editor), *Landolt-Bornstein, Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology*. Springer-Verlag, Berlin.
- Leitch, W.R., Isaac, G.A., Strapp, J.W., Banic, C.M. and Wiebe, H.A., 1992. The relationship between cloud droplet number concentration and anthropogenic pollution: observation and climatic implications. *J. Geophys. Res.*, 97(D2): 2463-2474.
- Martin, G.M., Johnson, D.W., and Spice, A., 1994. The measurement and parameterization of effective radius of droplets in warm stratocumulus clouds. *J. Atmos. Sci.*, 51(13): 1823-1854.
- Martinsson, B.G., Frank, G., Cederfelt, S. I., Swietlicki, E., Berg, O. H., Zhou, J., Bower, K. N., Bradbury, C., Birmili, W., Stratmann, F., Wendisch, M., Wiedensohler, A., und Yuskiewicz, B., 1999. Droplet nucleation and growth in orographic clouds in relation to the aerosol population. *Atmos. Res.*, 50: 289-315.
- Sellegri K., P. Laj, R. Dupuy, M. Legrand, S. Preunkert, J-P. Putaud, H. Cachier, Size-dependent scavenging efficiencies of multi-component atmospheric aerosols in clouds, in preparation.
- Snider, J.R. and Brenguier, J.-L., 2000. Cloud condensation Nuclei and cloud droplet measurements during ACE-2. *Tellus*, 52B(2): 828-842.
- Wobrock, W., Andrea I. Flossmann, Marie Monier, Jean-Marc Pichon, Laurent Cortez, Jean-François Fournol, Alfons Schwarzenbock, Stephan Mertes, Jost Heintzenberg, Paolo Laj, Giordano Orsi, Loretta Ricci, Sandro Fuzzi, Harry Ten Brink, Piet Jongejan, Rene Otjes, 2001. The Cloud Ice Mountain Experiment CIME 1998: experiment overview and modelling of the microphysical processes during the seeding by isentropic gas expansion. *Atm. Res.*, 58: 231-265.

VARIATION RAPIDE DE LA COMPOSITION INORGANIQUE DES AEROSOLS LORS DE LA CAMPAGNE ESCOMPTE.

N. Guitard*, M. Schulz, H. Cachier and Y. Balkanski

LSCE/UMR.CEA-CNRS, L'Orme des Merisiers, 91198 Gif sur Yvette Cedex, France.

INTRODUCTION

Le projet présenté ici est le développement et application d'un Analyseur Automatique d'Aérosol (A4) qui permet l'analyse de la composition chimique inorganique des aérosols. L'aérosol global est formé de différentes espèces chimiques et une source spécifique peut-être caractérisée par un histogramme d'abondance. Le mélange d'aérosols est très important pour la compréhension des propriétés optiques et hygroscopiques des aérosols ainsi que pour la connaissance de l'impact radiatif direct et indirect des aérosols. Jusqu'à maintenant, les échantillonnages sur filtre ne permettent pas une résolution temporelle et spatiale suffisante pour caractériser au mieux les concentrations en aérosols. Pour étudier les processus de transformation chimique, une méthode analytique rapide présente donc un grand avantage.

CONCEPT

Le A4 va nous permettre d'obtenir l'analyse de la composition chimique inorganique des aérosols de manière rapide, en continu. L'appareil comprend 3 modules : un premier module de prélèvements et de transferts des aérosols en solution, un second module d'analyse en continu des ions et un troisième module de traitements des données (cf. figure 1).

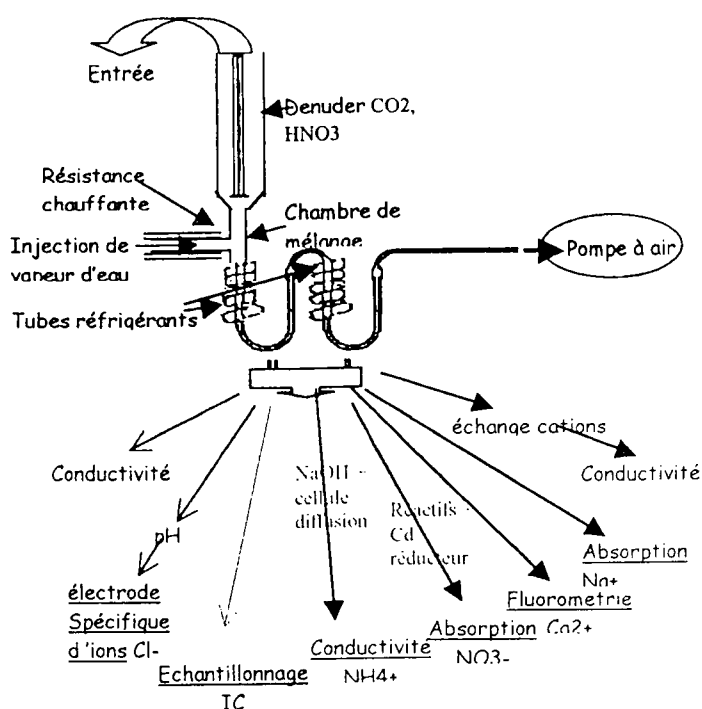


Figure 1 : concept de l'analyseur (en foncé : partie de l'analyseur réalisée, en clair : partie de l'analyseur envisagée)

En premier lieu, l'air est pompé et introduit dans un denuder, afin de retirer les gaz acides. Les aérosols sont ensuite transférés en solution : l'échantillon d'air est introduit dans une chambre de mélange où un jet de vapeur est ajouté suivant Khlystov et al. (1995). Dans cette chambre de mélange, l'eau se condense sur les particules d'aérosols. Les gouttelettes résultantes sont collectées grâce à un tube réfrigérant. Pour déterminer la composition inorganique, nous avons choisi d'analyser différents ions : Na^+ , NH_4^+ , Ca^{2+} , Cl^- et NO_3^- et de mesurer le pH, la conductivité et la somme des cations.

La méthode d'analyse du sodium est basée sur l'absorbance du o-nitrophenol produit par l'hydrolyse du o-nitrophenyl β -D-galactopyranoside catalysé par le β -galactosidase. (L'activité de l'enzyme dépend de la concentration en sodium dans le milieu) (Röthlisberger et al. (2000)). Pour analyser le calcium, nous utiliserons un indicateur fluorescent, la «quin2», un acide tetracarboxylique qui forme des liaisons avec Ca^{2+} dans une stœchiométrie 1/1 (l'intensité de la fluorescence augmente avec la concentration en Ca^{2+}). Pour les ions ammonium, nous mesurons la différence de conductivité avant et après ajout de NaOH dans la solution. (après ajout de NaOH ($\text{NaOH} + \text{NH}_4 \rightarrow \text{NH}_3$), la solution passe à travers une cellule de diffusion et NH_3 passe à travers une membrane en PTFE et est récupérée dans une solution d'eau deionisée). La méthode d'analyse des ions nitrates est basée sur une technique d'absorption : les nitrates sont réduits en nitrites avec du Cadmium copperisé suivi d'une diazotisation avec du sulfanilamide et du naphthylethylenediamine pour former une solution rose-violette. Les ions chlorures sont mesurés grâce à une électrode spécifique. Le pH est mesuré avec une électrode de pH et

la conductivité grâce à une cellule de conductivité. Pour la somme des cations, on mesure la différence de conductivité avant et après une membrane échangeuse de cations.

Les techniques analytiques choisies (Röthlisberger et al. (2000)) ont de basses limites de détection tout en assurant une haute résolution temporelle (cf. tableau 1).

	Temps de réponse (s)	Limite de détection (ppb)	Gamme de concentration en aérosols (ppb)
NH_4^+	< 20	0.1	4 - 880
Na^+	< 20	1	1.3 - 1200
Ca^{2+}	< 20	0.1	0.01 - 180
Cl^-	<60	1000 ?	7.4 - 480
NO_3^-	< 20	1	30 - 750

Tableau 1 : Comparaison entre les limites de détection d'un analyseur rapide de carottes de glace (Université de Berne), utilisant les techniques analytiques présentées précédemment et les gammes de concentration calculées après transfert des aérosols en solution dans notre système d'analyse (A4) : cas d'étude sur 90% des concentrations atmosphériques relevées par Elke Plate (2000) en Mer Baltique et en Mer du Nord, 1994-1998, (nb d'échantillons = 860).

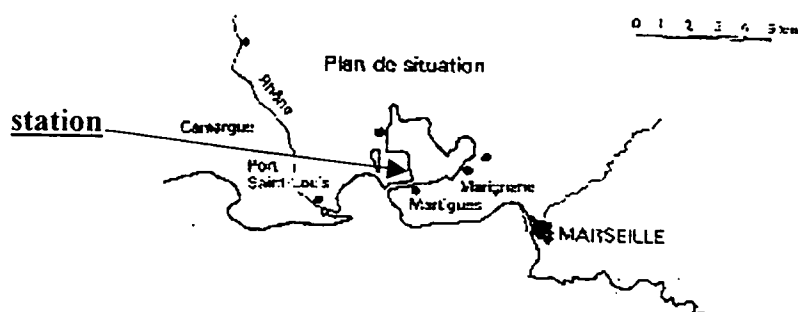
APPLICATION : ESCOMPTE 2001

Un premier test a été réalisé durant la campagne de mesures ESCOMPTE (Expérience sur Site pour CONtraindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de Transport d'Emissions) dans la région de Marseille-Berre, en juin 2001.

La région de l'«Étang de Berre» est le site industriel le plus important de la région « Provence - Alpes - Côtes d'Azur ». Dans le triangle Fos-Berre-Lavera, se rassemblent la sidérurgie, le raffinage, l'aéronautique et la pétrochimie.

Le réseau routier de la région est le plus utilisé après celui de la région parisienne.

Notre site de prélèvement était situé à Martigues dans les locaux d'AIRFOBEP (Association pour la surveillance de la qualité de l'air pour la région de l'étang de Berre et de l'Ouest des Bouches du Rhône), sur une colline surplombant l'étang de Berre.



Lors de cette campagne, nous avons pu mesurer le pH, la conductivité et la concentration en ions chlorures. Nous avons aussi fait des prélèvements en parallèle pour les analyser ensuite en chromatographie ionique.

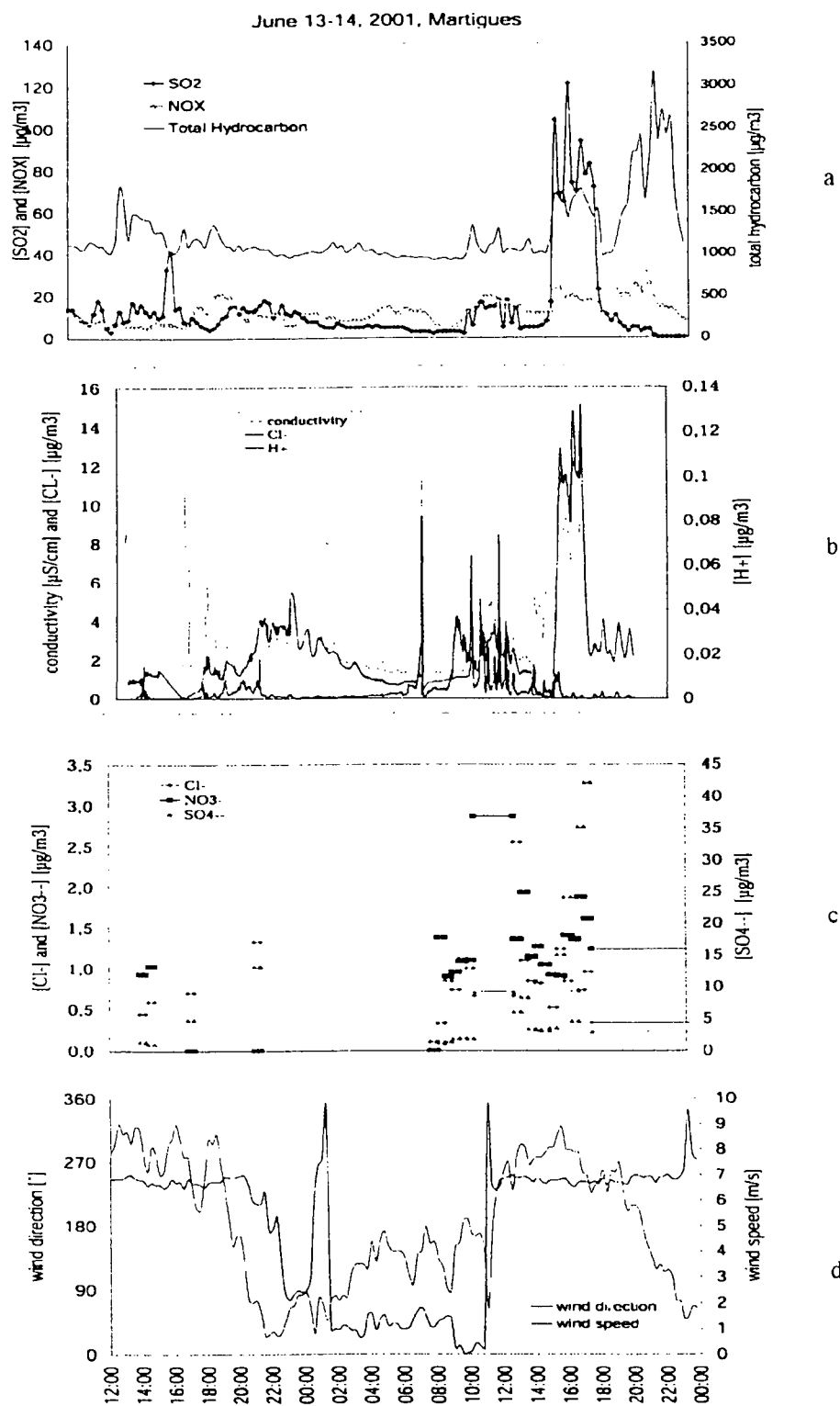


Figure 2a : Variations des différents polluants mesurés par AIRFOBEP à Martigues en fonction du temps pour la période du 13 juin, 12 H UTC au 14 juin 24H UTC, 2001.

Figure 2b : Variations de la conductivité, de la concentration en chlorures et ions hydrogènes mesurés par notre analyseur pendant la même période de temps que précédemment.

Figure 2c : Variations des concentrations en nitrates, chlorures et sulfates mesurées dans les échantillons obtenus en parallèle de nos analyses on-line (échantillons analysés par chromatographie ionique) pendant la même période de temps.

Le premier test de notre analyseur en continu nous a permis d'observer un signal cohérent avec les changements temporels du contenu inorganique des aérosols et corrélé avec les mesures faites par les stations de surveillance de la qualité de l'air (AIRFOBEP). Nous avons pu observer une bonne corrélation la plupart du temps entre la conductivité, la concentration en chlorures et en ions hydrogènes (cf. figure b). Nous pouvons aussi observer une bonne corrélation entre nos signaux et les concentrations en polluants comme SO₂, NO_x et les hydrocarbures, polluants mesurés par AIRFOBEP (cf. figures a et b).

Nous avons pu mettre en évidence des pics de chlorures lors des phénomènes de brise de mer qui ramenaient des sels de mer jusqu'à notre site. Le pic de chlorures qui apparaît le matin du 14 juin (cf. figure b) est associé à un événement de brise de mer (cf. figure d). Pour tous les détecteurs (électrodes de pH et Cl⁻ ainsi que la cellule de conductivité), la résolution en temps est de l'ordre de la minute.

Dans les prochains mois, nous allons inclure les autres détecteurs afin d'être capable de contraindre l'équilibre ionique et d'obtenir ainsi les composants majeurs de l'aérosol. Il sera aussi important de prendre en compte l'interférence des carbonates dans la correction des données de pH et de conductivité. De même, il faudra établir calibration rigoureuse de tous les détecteurs pour l'échelle de concentration 0.1-100 µmol/L.

Pour valider notre analyseur, nous avons pour projet de participer à des campagnes de mesures où des appareils caractérisant les aérosols (caractéristiques physiques et chimiques de l'aérosol) seront présents et permettront alors une intercomparaison entre nos résultats et les méthodes standards d'analyse. La prochaine campagne de mesures à laquelle nous allons participer, est MINATROC (Etude des interactions hétérogènes de l'aérosol minéral, Izania, Tenerife, août 2002). Le A4 sera aussi testé lors du projet PRIMEQUAL (évaluation de l'impact des fines particules sur la qualité de l'air (détermination de la composition chimique, la taille et l'origine de leur variabilité temporelle)).

L'objectif final de ce travail est d'obtenir un appareil miniaturisé capable de mesurer la composition inorganique des aérosols sur des plates formes mobiles telles que le TGV ou les avions (MOZART/programme aérosol).

REFERENCES

- Khlystov, A., Wyers, G.P. and Slanina, J. (1995). the steam-jet aerosol collector. *Atmos. Environm.* 29(17), 229.
- Plate, E. (2000) Variabilitat der Zusammensetzung anorganischer aerosole -insbseondere der reaktiven stickstoffverbindungen - in kustennahen gebieten der Nordsee und Ostsee, thesis, Un. of Hambourg.
- Röthlisberger, R., Bigler, M., Hutterli, M., Sommer, S. and Stauffert, B. (2000). Technique for continuous High-Resolution analysis of trace substances in firm and Ice Cores. *Environ. Sci. Technol.* 34, 338.

Etude d'aérocontamination croisée d'aérosols entre l'extérieur et l'intérieur d'une station du métro parisien.

N. FISCHER*(1,2), S. MAZOUÉ (1), A. RENOUX (2)

(1) RATP, Département Sécurité et Environnement, Lac 265, 13 rue Jules Vallès, 75547 PARIS CEDEX 11

(2) LPATC, Université PARIS XII, 61 avenue du Général de Gaulle, 94010 CRETEIL CEDEX

Introduction

La tendance actuelle vers la surveillance et l'amélioration de la qualité de l'air est à la prise compte des atmosphères intérieures dans lesquelles les individus passent en moyenne environ 90 % de leur temps. La qualité de l'air intérieur est gouvernée à la fois par les activités s'y déroulant et les échanges aérauliques pouvant avoir lieu avec l'air extérieur. L'air présent dans les espaces souterrains du métro est un mélange d'air extérieur, non filtré introduit mécaniquement ou naturellement, et d'air plus "âgé" provenant des tunnels ou des couloirs.

Les teneurs en particules PM₁₀ constatées sur les quais de la majorité des stations souterraines du métro sont généralement supérieures aux concentrations atmosphériques extérieures. Les études menées à ce jour ont pu établir la présence de sources internes.

Une étude de cas est réalisée pendant 4 semaines simultanément au milieu du quai d'une station de métro et en extérieur, à proximité d'un de ses accès afin de tenter de comprendre les mécanismes d'émission de PM₁₀ ainsi que la contribution de chaque environnement dans la composition de l'aérosol souterrain. Pour ce faire, des analyseurs massique et numérique sont mis en œuvre en continu tandis que des prélèvements sur filtres sont réalisés afin d'analyser ensuite les éléments chimiques constitutifs des deux aérosols. Une vue globale de l'ensemble des résultats recueillis au cours de cette étude est présentée dans ce document.

Mise en place de l'étude

Choix de la station à instrumenter

Des études de l'aérosol présent en souterrain ont déjà été réalisées sur deux sites du réseau métropolitain en 1999 (Lesaint) et 2000 (Couty). La station choisie pour cette campagne de mesures se trouve sur une ligne se différenciant en particulier par la typologie de son matériel roulant et par sa ventilation :

- ✓ Ligne à roulement fer
- ✓ Matériau de freinage composite
- ✓ Baies d'aération naturelle en station

D'autre part, la configuration géométrique de la station est également prise en compte. Celle-ci ne possède que deux accès extérieurs et les quais ne sont qu'à une profondeur de 5 m sous la chaussée.

En outre les cartographies de teneurs PM₁₀ déjà réalisées (par principe optique) sur un grand nombre de quais du réseau RATP (Miskizak, 2001) ont mis en évidence des concentrations nettement plus importantes que la moyenne sur la portion de ligne à laquelle appartient la station retenue.

Protocole expérimental

Implantation des points de prélèvement

En extérieur, un camion laboratoire est stationné pendant la durée de la campagne de mesure à proximité d'un des accès piétons à la station, tandis qu'en station le point de mesure se trouve au milieu d'un des deux quais.

Paramètres et moyens de mesure en continu

Des moyens de mesure identiques ou, à défaut, équivalents sont mis en œuvre sur ces deux sites. La concentration massique de l'aérosol PM_{10} est mesurée en continu à l'aide d'un TEOM fonctionnant sur le principe de la microbalance à quartz oscillant.

Un compteur optique de particules (Grimm 1.108) est placé sur le quai de la station afin d'évaluer, dans l'aérosol, la contribution en nombre des différentes granulométries de particules (0,3 à 20 μm).

Prélèvements sur filtres et analyses

Le site « quai » est équipé d'un système de prélèvement séquentiel Partisol+. Celui-ci possède une tête de prélèvement PM_{10} suivi d'un séparateur dichotomique destiné à dissocier les fractions « fine » ($PM_{2,5}$) et « grossière » ($PM_{2,5-10}$) de l'aérosol du quai de la station. Les prélèvements sont programmés pour durer 12 heures. La quantité de matière collectée pendant 24 heures en souterrain risquerait de colmater le filtre.

En ce qui concerne le site extérieur, un second Partisol+ n'étant pas disponible, le camion laboratoire est équipé de deux lignes de prélèvement. L'une est reliée à une tête de prélèvement PM_{10} et la seconde à une tête $PM_{2,5}$. Les teneurs en PM_{10} présentes régulièrement sur l'agglomération parisienne étant inférieures à $60 \mu g.m^{-3}$ même à proximité du boulevard périphérique (Ruellan et Cachier, 2001), les prélèvements extérieurs peuvent durer 24 heures sans risque de colmatage des filtres.

Cette campagne de mesures nécessite l'utilisation de trois types de filtres, tous de diamètre 47 mm. En effet la nature de chacun d'entre eux dépend des espèces chimiques à analyser ultérieurement.

- ✓ Filtres en fibres de verre téfloné (Pallflex), pour une analyse par électrophorèse capillaire afin de déterminer les concentrations en anions et cations (analyse Laboratoire d'Hygiène de la Ville de Paris).
- ✓ Filtres en quartz (Whatman) pour la détermination du carbone organique et élémentaire par spectrométrie Infra-Rouge (analyse Laboratoire d'Hygiène de la Ville de Paris).
- ✓ Filtres en polycarbonate (porosité = 0,8 μm) pour l'analyse multi-élémentaire des éléments insolubles par la méthode PIXE (analyse Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux Gradignan).

D'autre part des prélèvements supplémentaires ont été réalisés sur le quai pendant 24 heures à l'aide du Partisol+. Ils ont été fractionnés en 8 périodes de 3 heures afin d'étudier, pour chaque élément métallique, le profil journalier de leur contribution massique aux deux fractions de l'aérosol PM_{10} souterrain.

Enfin un prélèvement par impaction à basse pression d'une durée de 1 h 30 a lieu en semaine, au cours d'un après-midi. L'analyse PIXE des filtres doit révéler la répartition granulométrique des éléments métalliques selon 13 classes granulométriques allant de 30 nm à plus de 10 μm .

Résultats

Concentration pondérale de l'aérosol PM₁₀

Alors que la concentration de l'aérosol PM₁₀ extérieur reste conforme à celles observées régulièrement sur l'agglomération parisienne, la concentration PM₁₀ relevée sur le quai en période d'exploitation du métro est très supérieure à celle de l'extérieur tandis que dès l'arrêt du trafic, la teneur intérieure diminue pour rejoindre celle de l'extérieur. L'aérosol extérieur ne semble jouer un rôle que la nuit dans les niveaux mesurés en souterrain. Cette observation est corroborée par le profil journalier moyen (en semaine) des concentrations PM₁₀ sur le quai qui est étroitement relié à celui des prévisions de trafic ferroviaire dans cette station (par demi-heure).

Le trafic des rames de métro influence donc clairement les teneurs en PM₁₀ constatées sur le quai. La journée de prélèvement tri-horaire souligne qu'hors période d'exploitation du métro, la contribution en masse de la fraction « grossière » (2,5 – 10 µm) de l'aérosol PM₁₀ diminue, pour ensuite augmenter à la reprise du trafic. La circulation des trains provoque des émissions (primaires et remise en suspension) de particules plus riches en particules « grossières » que celles d'origine extérieure. Sur la période d'étude, le rapport PM_{2.5} / PM₁₀ (en masse) au niveau du quai reste généralement compris entre 50 et 60 % alors qu'à l'extérieur, les émissions résultant du trafic automobile apportent une plus forte contribution à la fraction PM_{2.5}.

Concentration numérique de l'aérosol souterrain

La répartition numérique de l'aérosol de dimensions comprises entre 0,3 et 20 µm confirme la plus forte contribution en nombre des particules fines pendant la nuit (71 % pour la plage 0,3 – 0,4 µm) tandis qu'en période d'exploitation, le nombre de particules compris dans cette plage ne représente plus que 60 % de l'aérosol. De plus les particules de diamètre inférieur à 1 µm représente l'intégralité de l'aérosol à ± 1 % près.

Caractérisation chimique des aérosols extérieur et souterrain

Fraction soluble

En extérieur, les résultats observés sont cohérents avec ceux observés habituellement sur l'agglomération parisienne. En masse, les résultats sont les suivants :

- ✓ 33 % de la fraction PM_{2.5} et 27 % des PM₁₀.
- ✓ 75 % de la fraction soluble des PM₁₀ est contenue par la fraction PM_{2.5}.
- ✓ 80 % de la masse de la fraction soluble retrouvée sur les PM_{2.5} est sous forme d'ions sulfates, nitrates et Na⁻.

Au niveau du quai, la fraction soluble ne représente que 5 %, en masse, à la fois des aérosols PM_{2.5} et PM₁₀. La plupart des espèces présentes à l'extérieur est enrichie à l'exception des ions ammonium (NH₄⁺) et nitrates (NO₃⁻). Les ions fluorure, F⁻, apparaissent en quantité non négligeable en souterrain. Ces résultats traduisent la contribution de sources internes comme par exemple une origine géologique pour les espèces Ca²⁺ et Mg²⁺.

Fraction carbonée

L'analyse du carbone réalisée par le LHVP différencie le carbone suie (élémentaire) du carbone organique. Dans l'atmosphère extérieure le ratio C_{organique} / C_{suie} se situe aux alentours de 0,3 pour les aérosols PM_{2.5} et PM₁₀, ce qui traduit une forte contribution du carbone suie explicable par les émissions du trafic automobile présent à proximité du point d'échantillonnage.

En souterrain, pour les deux fractions PM_{2.5} et PM₁₀, ce ratio est plus élevé et a des valeurs comprises entre 0,6 et 1 illustrant une modification des espèces carbonées imputables à des émissions de sources intérieures même si la fraction carbonée ne représente que 10 % de la masse de l'aérosol PM₁₀ présent au niveau du quai.

Eléments métalliques

Cette fraction représente sur le quai la plus grande partie de l'aérosol PM₁₀ en terme de masse. Le fer, Fe, est l'élément prépondérant dont la concentration explique les deux tiers de la masse de l'aérosol PM₁₀ et également de la fraction fine, PM_{2.5}. Une étude portant sur l'exposition des Londoniens aux particules (Pfeifer *et al*, 1999) avait également conclu à une augmentation de l'exposition à certains métaux pour les individus utilisant le métro comme moyen de transport.

Le tableau ci-dessous fait la synthèse des fractions massiques représentées par chacune des espèces chimiques analysées.

<u>Bilan : fraction massique</u>	<u>Quai</u>		<u>Extérieur</u>	
	PM ₁₀	PM _{2.5}	PM ₁₀	PM _{2.5}
Fraction soluble	5%	5%	27%	33%
Carbone total	10%	13%	32%	42%
Fer	66%	67%	19%	8%
Autres éléments métalliques	10%	10%	29%	17%
Total	91%	94%	107%	100%

En outre les teneurs extérieures de certains éléments métalliques tels que le fer et le baryum sont très élevées. Ces éléments sont des traceurs des émissions souterraines dues à l'exploitation du métro ce qui dénote une contamination du point de prélèvement extérieur par les émissions intérieures.

Recherche des sources

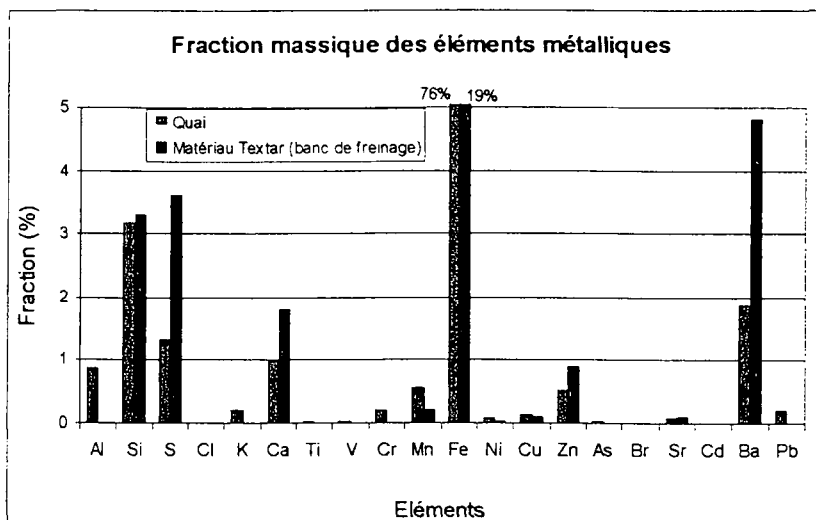
Signature de l'aérosol souterrain par les matériaux de freinage

En 1999, à Sens, les différents matériaux de freinage utilisés sur le réseau ferré de la RATP ont été testés sur banc d'essai afin de déterminer les quantités d'éléments métalliques émis lors de cycles de freinage. La figure ci-dessous représente :

- ✓ D'une part, la fraction massique de ces éléments émis sur banc de freinage (Lesaint, 1999) par le matériau équipant les voitures circulant sur la ligne étudiée.
- ✓ D'autre part, la fraction massique des éléments métalliques associés aux particules de sources intérieures inhérentes à la station. Pour un élément X, elle est calculée comme suit :

$$\frac{[X]_{\text{int}} - [X]_{\text{ext}}}{[PM_{10}]_{\text{int}} - [PM_{10}]_{\text{ext}}}$$

Dans le cas de cette étude, bien que le point extérieur ne soit pas représentatif de tout l'apport d'air en station, pour la plupart des éléments $[X]_{ext}$ est très inférieure à $[X]_{int}$. Par conséquent, la contribution des sources souterraines à la production de l'élément X équivaut approximativement à $[X]_{int} - [X]_{ext}$.



Les principaux éléments métalliques retrouvés sur l'aérosol PM_{10} en station sont bien signés par les émissions liées aux organes de freinage (baryum, soufre, silice et calcium notamment). Toutefois en ce qui concerne le fer, le freinage ne suffit pas seul à expliquer les concentrations retrouvées sur l'aérosol du quai.

Origine extérieure /intérieure

L'analyse multi-élémentaire des filtres correspondant aux prélèvements « tri-horaires » permet de scinder clairement la contribution de chaque élément à la masse de l'aérosol PM_{10} par périodes de temps relativement courtes. Certains éléments tels que l'aluminium (absent du matériau de freinage et retrouvé à l'extérieur de la station) voient leur contribution augmenter hors période d'exploitation au contraire d'espèces telles que le fer ou le baryum dont la proportion chute hors période d'exploitation du métro. Ces résultats confortent la source reliée au freinage et au trafic ferroviaire en général et laisse envisager un apport extérieur dont la contribution ne se révèle importante que pendant l'arrêt du trafic.

Répartition élémentaire par classe granulométrique

Les prélèvements réalisés au niveau du quai à l'aide de l'impacteur en cascade basse pression LPI (Dekati) puis l'analyse PIXE des filtres révèle la répartition de chaque élément. Il ressort des résultats que les éléments associés au freinage (fer, manganèse, nickel ou plomb) sont retrouvés préférentiellement sur 3 plages granulométriques consécutives allant de 1,7 à 7,0 μm . Cette observation va dans le sens d'une origine commune pour ces espèces - le freinage. D'autres éléments tels que le soufre voient leur répartition suivre deux modes ce suggère deux sources différentes. Par exemple le premier mode se situant entre 1,7 et 7,0 μm désigne le freinage comme responsable alors que le second, submicronique, pourrait être expliqué par une origine extérieure.

Conclusion

Afin de déterminer et de quantifier les sources de pollution d'aérosols dans l'environnement du métropolitain, une approche visant à caractériser chimiquement les aérosols extérieur et souterrain est adoptée. Le site étudié reflète un environnement souterrain du métro où

l'exposition aux PM_{10} est très importante en comparaison aux autres stations du réseau notamment à cause de l'absence de ventilation mécanique en inter-station.

Les concentrations de l'aérosol PM_{10} sur le quai sont, en période d'exploitation du métro, gouvernées par le trafic des rames de métro et très supérieures à celles mesurées à proximité de la station. L'aérosol extérieur n'a qu'une faible contribution sur les niveaux souterrains de PM_{10} constatés en période d'exploitation. Les analyses physico-chimiques des aérosols du quai et de l'extérieur mettent en évidence que l'aérosol présent sur le quai de cette station est en grande partie composé de fer et d'autres éléments insolubles. La comparaison de ces résultats avec ceux d'une campagne réalisée en 1999 et qui visait à caractériser les émissions des matériaux de freinage aboutit à incriminer la responsabilité de ce phénomène dans l'empoussièrement de l'air de la station Bréguet-Sabin. Cependant, au vu de certains éléments ne signant pas les émissions du matériau de freinage mais retrouvés dans la composition de l'aérosol souterrain, d'autres sources de particules sont vraisemblables.

Bibliographie

- COUTY, B. (2000). Compréhension des mécanismes d'aérocontamination en milieu souterrain. Etude de l'influence des facteurs extérieurs. Rapport d'étude interne RATP, n° DEE / E00-5155.
- LESAINT, T. (1999). Caractérisation de l'empoussièrement du métro parisien : contribution des organes de freinage du matériel roulant. Rapport d'essai interne RATP.
- MISKISAK, A. (2001). Caractérisation de l'empoussièrement du métro parisien. DESS Sciences des Aérosols, Rapport de stage, Paris XII.
- RUPELLAN, S., CACHIER, H. (2001). Characterisation of fresh particulate vehicular exhausts near Paris high flow road. *Atmospheric Environment* 35, 453-468.
- PFEIFER, G.D., HARRISON, R.M., LYNAM, D.R. (1999). Personal exposures to airborne metals in London taxidriviers and office workers in 1995 and 1996. *The Science of the Total Environment* 235, 253-260.

CARACTERISATION GRANULOMETRIQUE DES PARTICULES PRESENTES DANS UN TUNNEL ROUTIER : ELEMENTS CHIMIQUES ET PARTITION GAZ-PARTICULES DES COMPOSES AROMATIQUES POLYCYCLIQUES - CAS DE L'A-14 SOUS LA DEFENSE

J.P. QUISEFIT - S. GARIVAIT - E. STEINER - V. TESSAURO et N. GOUALIN

Lab. Interuniversitaires des Systèmes Atmosphériques - Université Paris 7 - UMR CNRS 7583 - Bat P1 - CMC 61 av. du Gal De Gaulle - 94010 Créteil [Tél. 01 44 27 39 32 - Fax. 01 44 27 57 46]

I - INTRODUCTION

L'objectif de l'étude menée dans ce tunnel routier était multiple : caractériser la physico-chimie de la composante particulaire, représentative du parc automobile 2000 français sans influence externe (photochimique notamment), déterminer les niveaux d'exposition aux polluants automobiles et la chiffrage de la partition gaz particule des HAP. Nous avons donc instrumenté un site situé à 300m de la sortie du tunnel sous la défense en direction de l'autoroute A 14.

II - CAMPAGNES D'ECHANTILLONNAGE ET MATERIEL MIS EN ŒUVRE

Nous avons choisi, en accord avec la D.D.E. de Puteaux d'installer notre station d'échantillonnage dans la partie finale d'un tunnel sous la Défense juste avant l'entrée sur l'autoroute A14 proprement dite. Les périodes d'étude ont donc porté sur des fins de journée (de 15 à 20 heures, période de fort trafic Paris-Provence). Les journées étudiées furent le 7 juin et le 12 juillet 2000 ainsi que mai et juin 2001. La longueur de tunnel est de 4,2 km. La station était installée en bordure de la seule voie de roulage autorisée, au km 3,9, sur la bande d'arrêt d'urgence condamnée par un muret de pavés de béton de 50 cm de haut. Les principaux instruments installés, à 1,8 m de hauteur ont permis de mesurer en continu les teneurs en oxydes d'azote et en dioxyde de carbone, les paramètres environnementaux (vitesse du courant d'air, température et humidité relative), et d'effectuer des filtrations totales, avec tête de prélèvement omnidirectionnelle R&P PM10, des poussières sur membrane Téflon, par impacteur en cascade basse pression DEKATI (13 étages de 0.013 à 10 μm) et par préleveur biphasique medium volume TISCH. Nous avons ainsi pu déterminer la masse de poussière globale ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) et en fonction de la granulométrie. Les analyses chimiques sur la composante particulaire ont porté sur les composés aromatiques polycycliques grâce à une extraction par micro-ondes puis une analyse par chromatographie liquide haute performance associée à un détecteur de fluorescence.

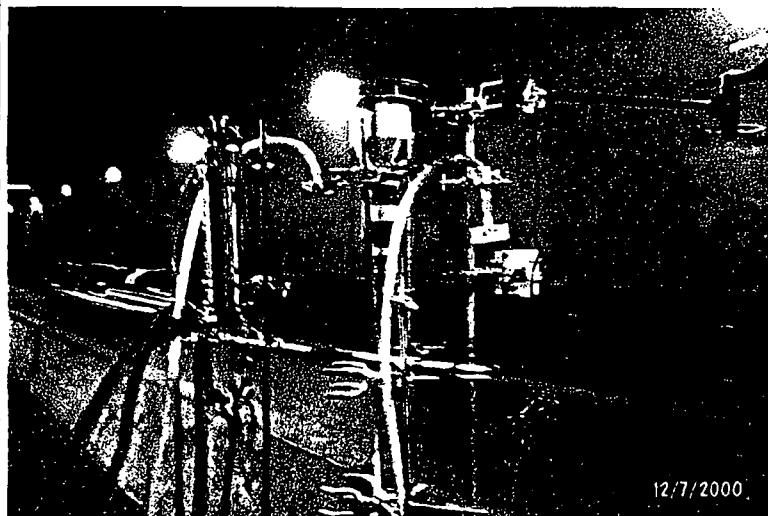
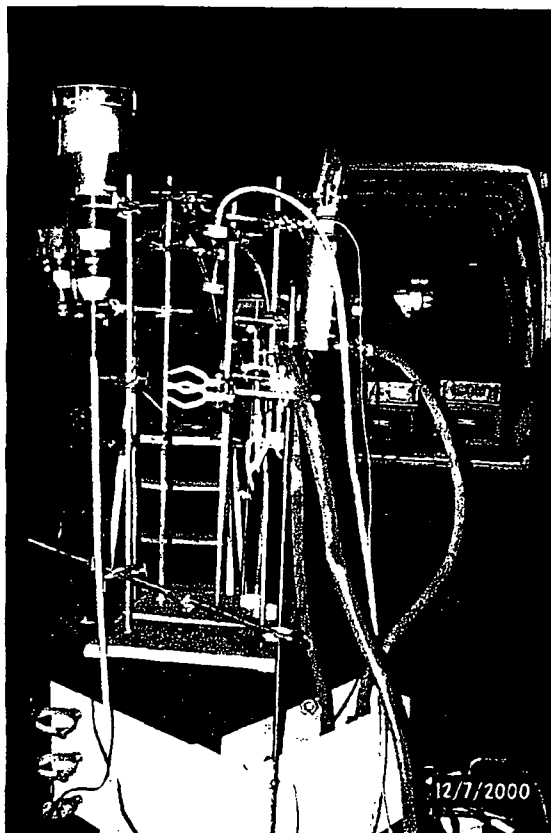


Photo 1 et 2 : installation des échantillonneurs et analyseurs dans le tunnel

Les conditions météorologiques, lors des journées du 7 juin et du 12 juillet 2000, étaient anticycloniques. La température dans le tunnel a été respectivement de 22,5° et 24,5°C et la pression n'a guère bougé de 1025 hPa, enfin l'humidité relative était de 40% puis 35 %. La vitesse du courant d'air oscillait faiblement autour de 2m/sec et remontait le tunnel vers la sortie. L'air balayait donc les 3,9 km de tunnel amont.

III – NIVEAUX D'EXPOSITION AUX POLLUANTS GAZEUX

Deux polluants gazeux ont été suivis en continu au cours des expérimentations : le dioxyde de carbone et les oxydes d'azotes.

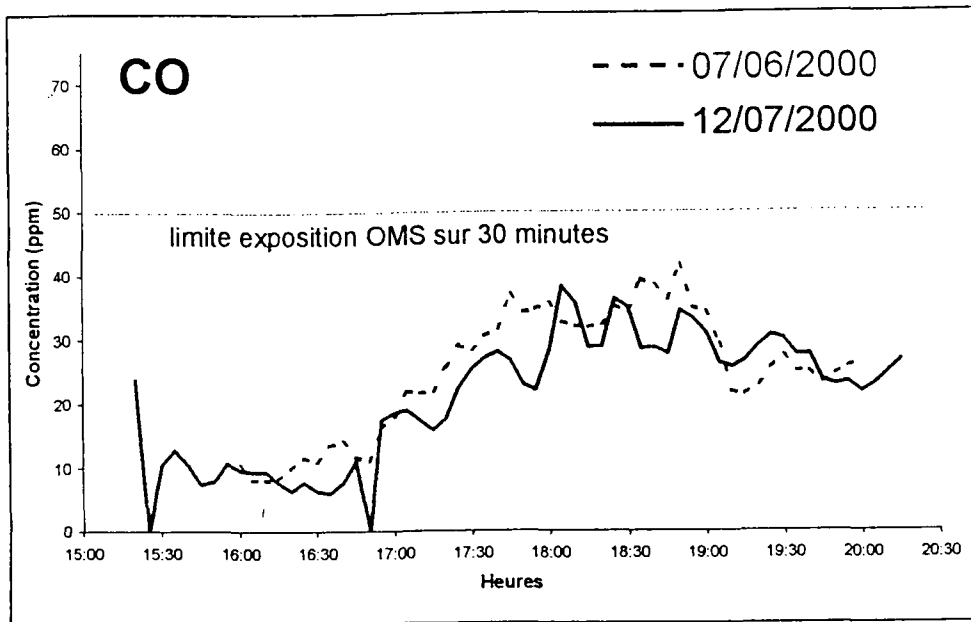


Figure N° 1 : variation de la teneur (ppm) en CO aux cours des jours d'expérimentation (07/06 et 12/07)

Par rapport à la valeur limite d'exposition indiquée par l'O.M.S., de 50 ppm sur 30 min, on peut constater que le monoxyde de carbone peut atteindre un niveau très élevé au regard du temps de séjour potentiel des automobilistes dans le tunnel.

En effet même si la limite de vitesse est fixée à 70 km/h, nous avons souvent constaté que les véhicules (aussi bien les automobiles, utilitaires légers que motocyclettes voire poids lourds) roulaient généralement à des vitesses très supérieures (90 à 130 km/h). Dans ces conditions le temps d'exposition varie de 3 min 45 sec à 1 min 50 sec pour la totalité du séjour dans le tunnel, l'exposition est donc largement en dessous des seuils de l'O.M.S.

Les profils de concentration sont également identiques d'un jour sur l'autre et sont également cohérents avec les mesures effectués par les appareils fixes posés par la DDE

Par contre en ce qui concerne les teneurs en oxydes d'azotes, nous pouvons constater sur la figure N° 2 des teneurs très largement supérieures aux normes. Le NO₂ est systématiquement supérieur au niveau d'exposition (105 ppb sur une heure). Le problème sanitaire ne se pose donc pas lorsque la circulation est fluide car le temps d'exposition n'est que de quelques minutes. Il peut cependant se poser lors d'embouteillage, même court, qui bloquerait la circulation sous les tunnels. Il faut cependant préciser que les tunnels sont équipés de capteurs de pollution interfacés avec une programmation du déclenchement des ventilateurs (opacimètre et CO) lorsqu'ils dépassent des valeurs seuils (ex 50 ppm en CO).

Les valeurs extrêmement élevées constatées en NO_x sont également en accord avec les résultats obtenus par le Lab. Central de la Préfecture de Police de Paris lors d'une campagne antérieure à la notre.

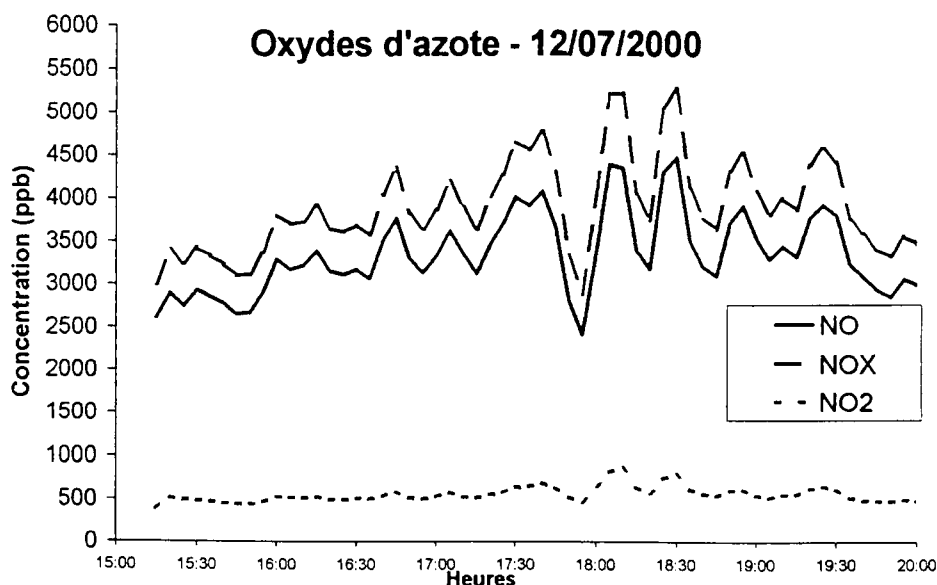


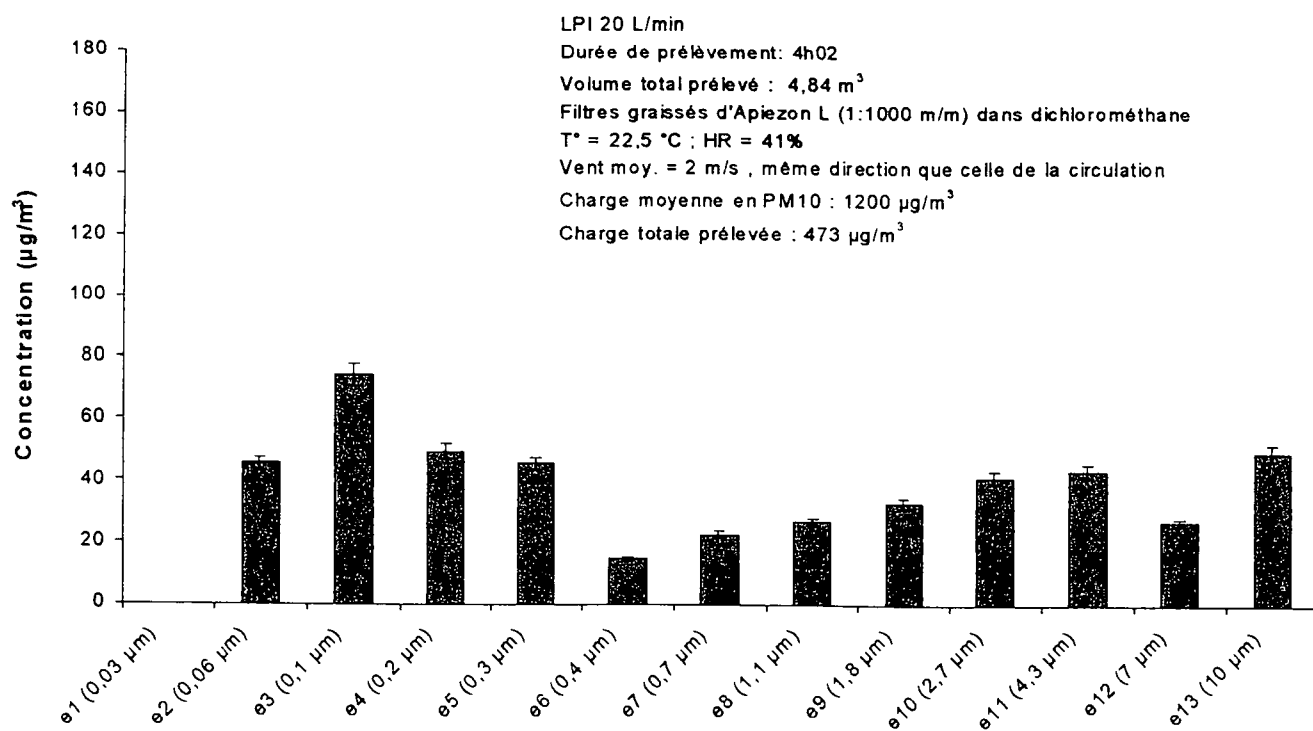
Figure N° 2 : évolution des oxydes d'azote au cours des deux journées d'échantillonnage

IV – LES PARTICULES ATMOSPHERIQUES

IV-a : CONCENTRATION MASSIQUE EN POUSSIERE. La teneur massique en particule a été obtenue par prélèvement en filtration totale sur filtre PTFE avec pré-pesée et pesée finale au retour au laboratoire sur une balance à 0.01mg. Le 7 juin la concentration totale moyenne sur les quatre heures de prélèvement (16h-20h) représentait $1600 \pm 40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ et seulement $790 \pm 40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ le 12 juillet. Quant on sait que la limite d'exposition recommandée par l'O.M.S. est de $125 \mu\text{g}/\text{m}^3$ sur 24 heures on voit que l'on reste inférieur aux normes mais à la condition qu'il n'y ait pas de bouchon de circulation.

IV-b : LA REPARTITION GRANULOMETRIQUE DES POUSSIÈRES. La figure N°3 nous illustre la distribution granulométrique, en masse des poussières collectées grâce à un impacteur basse pression DEKATI (20L/minutes)

Répartition massique des différents étages - 07/06/2000



Figures N° 3 : répartition massique en fonction de la taille des particules.

On peut constater la forte proportion de particules inférieures au micron, nettement plus marquée que ce que l'on trouve habituellement dans l'air ambiant. Les fines particules ($\leq 1 \mu\text{m}$) représentent plus de 50% de la masse totale.

IV-C REPARTITION GRANULOMETRIQUE EN COMPOSES AROMATIQUE POLYCYCLIQUE (HAP) PARTICULAIRES.

L'analyse des H.A.P. a été menée par extraction micro-onde des filtres au dichlorométhane puis amenée à sec avec reprise par de l'acétonitrile pour injection dans une HPLC PERKIN LC 200 [colonne Nucleosil 100-5C₁₈ PAH] couplée à un détecteur de fluorescence programmable LC 240 à lampe Xénon [1]

Les HAP montrent des répartitions granulométriques en accord avec les observations déjà faites en fonction des poids moléculaires. La figure N° 4 illustre bien ces répartitions typiques.

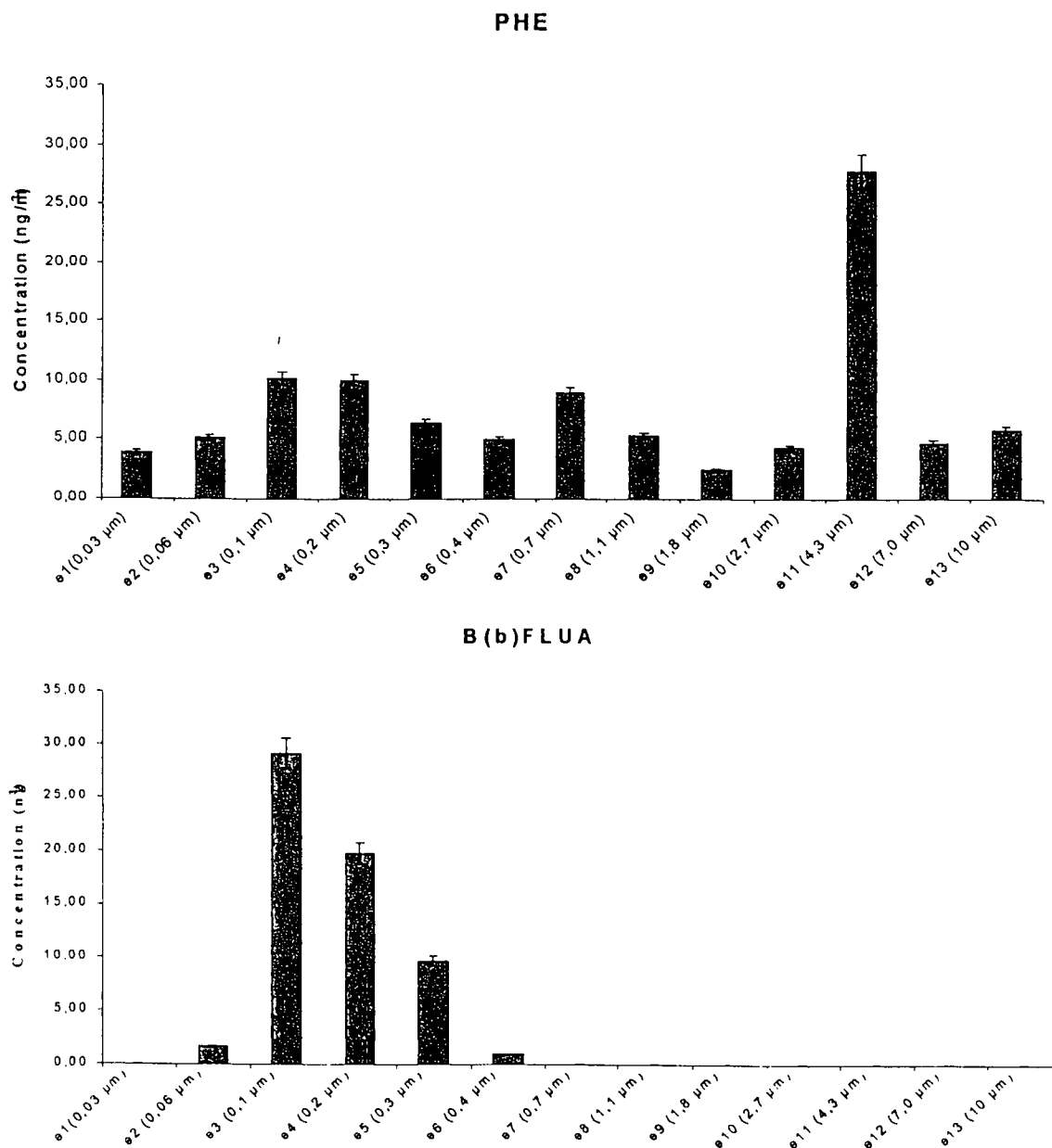


Fig. N° 4 exemple de distribution granulométrique de HAP : monomodal pour le phénanthrène et bimodal pour le benzo(b)fluoranthène

Lorsque l'on étudie les distributions granulométriques des HAP, on peut observer que l'on ne détecte pas de naphthalène dont la tendance est d'être gazeux. Acénaphène et fluorène, phénanthrène et anthracène sont quasi stables sur tous les étages, laissant supposer une adsorption assez probable sur les

supports d'échantillonnage. Pour les HAP plus lourds, les distributions granulométriques sont de plus en plus mono modales centrées sur 0,1µm comme cela a déjà été souligné par diverses études.

Composés	PM 10 12/07 *(ng/m ³)	PM 10 07/06 *(ng/m ³)	Baltimore 1989	Birmingham 1996	Chicago 1995
Naphtalène	17,57	5,34	-	-	-
ACE+FLUO	2,12	0,8	-	114+168	168+406
Phénanthrène	27,84	6,9	209	333	300
Anthracène	5,95	2,19	37,6	51,1	177
Fluoranthène	65,03	13,37	56,4	47,5	117
Pyrène	136,9	27,83	57,5	55,3	193
Benz(b)ANT	33,12	7,46	7,6	14,0	90,2
Chrysène	40,4	8,56	-	25,8	77,9
B(b)FIUO	24,9	5,87	-	11,6	43,6
B(k)FLUO	8,06	2,27	-	5,4	41,2
B(a)PYR	18,45	4,98	5,8	12,7	62,6
DiB(a,h)ANT	11,24	3,17	-	4,4	14,7
B(ghi)PER	42,42	12,22	8,0	35,2	17,0
I-PYR	8,5	2,72	4,6	21,5	20,0

Tableau N° 1 : comparaison des concentrations en HAP particulières obtenus dans différentes études en tunnels
(* notre étude)

Le tableau N° 1 donne les teneurs observées lors de nos campagnes du 07/06 et du 12/07 par rapport aux données trouvées dans la littérature pour des tunnels urbains.

On voit en effet sur cette comparaison des écarts marqués entre nos détermination particulières sur les HAP légers et celles obtenues par nos collègues étrangers (ACE, FLUO et PHE notamment). Par contre les ordres de grandeurs sont respectés pour les HAP lourds, totalement en phase particulaire.

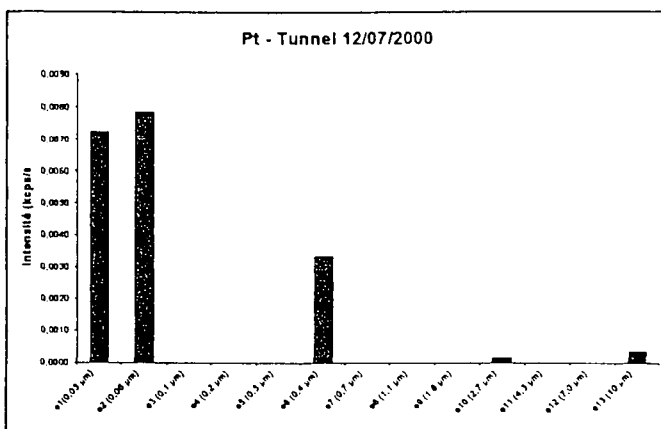
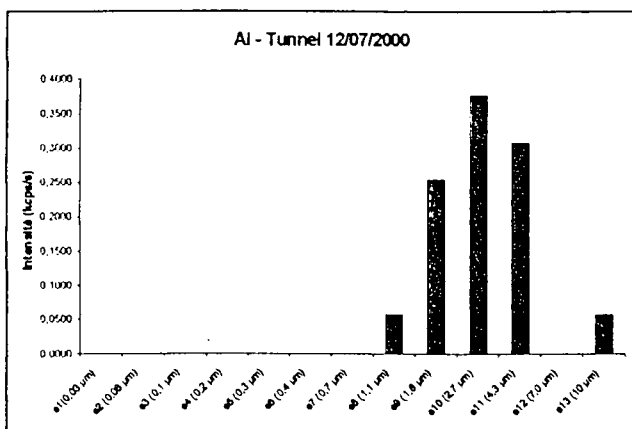
V - PARTITION GAZ PARTICULE DES H.A.P.

Nous avons pu disposer lors des campagnes de terrain 2001 d'un échantillonneur biphasiques gaz-particule (TISCH) ayant un débit d'échantillonnage de 12.5 m³/h qui nous a permis de déterminer la partition gaz/particule des HAP en appliquant strictement la même procédure analytique. Chaque échantillon était ainsi constitué d'un ensemble constitué d'un filtre en fibre de verre suivi par deux adsorbants solides PUF, en série, permettant de capter les HAP gazeux non piégés par le filtre.

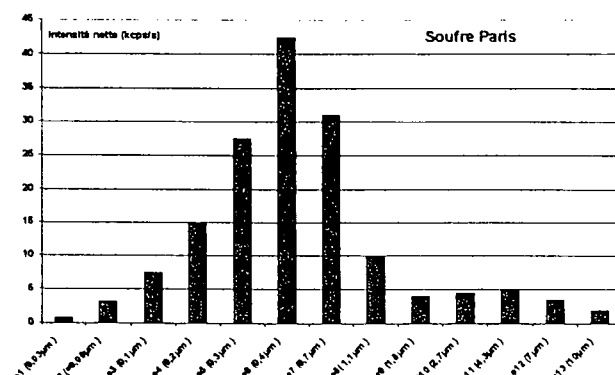
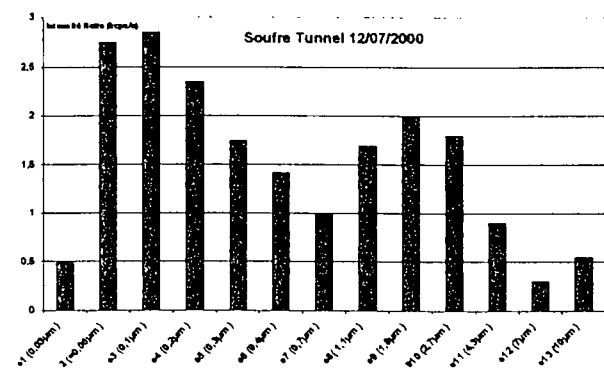
Composés	% en phase gazeuse	Composés	% en phase gazeuse
Naphtalène	99.6	Chrysène	77.6
Acénaphène + Fluorène	99.1	Benzo(b)fluoranthène	0
Phénanthrène	97.2	Benzo(k)fluoranthène	N.A.
Anthracène	N.A.	Benz(a)pyrène	0
Fluoranthène	62.2	Dibenzo(ah)anthracène	0
Pyrène	46.8	Benzo(ghi)pérylène	14.9
Benzo(a)anthracène	46.6	Indéno(123-cd)pyrène	0

Tableau N° 2 : Pourcentage de HAP en phase gazeuse

VI - DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE ELEMENTAIRE



Les éléments associés aux poussières de sol sont distribués suivant une population grosses particules (Ex



de l'Al). De nouveaux éléments apparaissent tels les constituants des catalyses d'échappement (Ex du Pt), plutôt dans les fines particules et enfin certains éléments sont bi-modaux comme le soufre qui comparativement à la distribution en air ambiant illustre bien la génération primaire qui évolue ensuite.

VII - CONCLUSION

Cette étude nous a permis d'apprécier et de qualifier le niveau de concentration des polluants, aussi bien gazeux que particulaire dans un tunnel routier. Compte tenu de la réglementation d'exposition étant ce qu'elle est, on peut conclure que l'air de tunnel de ce type est acceptable tant que la circulation reste fluide, étant donné le temps de séjour court dans le tunnel pour les usagers. Cependant si une situation de bouchon devrait se produire, ce que nous n'avons pu expérimenter, il est à espérer que les consignes de ventilation voire d'arrêt d'entrée des véhicules dans le tunnel soient efficaces. Nous avons pu en effet constater sur nous-même lors des expériences qui nous ont mobilisés de nombreuses heures de présence dans le tunnel que l'impact sanitaire était réel. Les expérimentateurs ont pu en effet constater rapidement des céphalées, une irritation forte des yeux et de la gorge ainsi qu'une difficulté de réaction croissante évident.

Néanmoins, cette expérimentation pilote nous a permis également de conclure qu'il était indispensable de mettre en œuvre un échantillonneur bi-phasique pour qualifier l'émission complète des HAP, ce qui a été fait en 2001 et a permis de montrer la très forte proportion d'HAP légers en phase gazeuse ainsi que leur fraction adsorbée. La répartition entre phase gazeuse et phase particulaire semble correspondre à la théorie. L'étude par impacteur met également bien en évidence l'adsorption des H.A.P. légers sur tous les étages de l'impacteur alors que les H.A.P. plus lourds sont bien identifiés dans la fraction ultra fine des particules. Enfin de nouveaux éléments apparaissent dans les fine particules.

Références bibliographiques

- 1 A.L. BRASSEUR, développement d'une méthodologie pour l'étude de l'évolution chimique des HAP associés aux particules issues de combustion : cas particulier des particules diesel, Thèse, 21 oct. 1999, Université Paris 7 Denis DIDEROT
- 2 C. VANKATARAMAN, S. THOMAS, P. KULKARNI, "Size distributions of polycyclic aromatic hydrocarbons - Gas / Particle partitioning to urban aerosols", *Journal of Aerosol Science*, Vol. 30, 6, 759-770, 1999.

DISPOSITIF EXPERIMENTAL POUR L'ETUDE DE L'EMISSION DES AEROSOLS FIBREUX PAR DES MATERIAUX DE CONSTRUCTION

H. ANTOINE ^(1,2), D. LARZILLERE ⁽¹⁾, J.P. QUISEFIT ⁽²⁾, A. GAUDICHET ⁽²⁾

(1) Centre Scientifique et Technique du Bâtiment,
4 avenue Jean Jaurès 77421 Marne la Vallée (h.antoine@cstb.fr)

(2) Laboratoire Inter universitaire des Systèmes Atmosphérique Paris VII – Paris XII – UMR CNRS 7583
Tour 44 - 45, 5^{ème} étage, 2 place de Jussieu 75251 Paris Cedex 05

RESUME

Les fibres minérales, présentes dans la plupart des matériaux d'isolation, sont des sources potentielles de pollution à l'intérieur des bâtiments. Les niveaux de concentration sont connus dans les usines de production, des mesures sur les chantiers ainsi que des essais inter-laboratoires en chambre grandeur réelle ont été réalisés pour évaluer l'empoussièrement en fibres lors de la pose des produits. En revanche les données sont plus fragmentaires pour l'exposition environnementale à laquelle peuvent être confrontés les occupants des bâtiments. La connaissance de cette exposition passe notamment par l'étude de l'impact du vieillissement sur la capacité des produits à émettre des fibres.

L'objectif de ce travail consiste à mettre en place un outil d'étude de la libération des fibres par des matériaux fibreux, incluant le vieillissement des produits. La recherche a permis de comparer les potentiels respectifs d'émission de fibres des produits en laine de verre et en laine de roche, utilisés dans le bâtiment à des fins d'isolation.

Pour tester la capacité de ces produits à émettre des aérosols fibreux, un banc aéraulique complété d'un dispositif expérimental de sollicitations mécaniques de ces matériaux, a été développé. La méthode expérimentale d'échantillonnage ainsi que les règles de comptage des fibres au microscope électronique à balayage ont été adaptées à l'essai.

L'analyse des premiers résultats obtenus met en évidence des émissions de fibres (en fibres/mètre cube) et des caractéristiques dimensionnelles (longueur, diamètre) différentes selon la nature et l'âge du produit.

Mots clés : aérosols fibreux, laine de verre, laine de roche, matériaux de construction, banc aéraulique d'échantillonnage.

INTRODUCTION

Les fibres minérales, naturelles et artificielles, sont des contaminants de l'air des bâtiments et leur émission potentielle doit faire l'objet d'études du fait de leurs caractéristiques respirables et irritatifs marquées (les fibres "respirables" sont des fibres pouvant être inhalées profondément dans les poumons, au niveau des alvéoles, selon l'acceptation courante dans la littérature anglo-saxonne). En plus de l'impact sanitaire connu de l'amiante, il convient de se préoccuper de celui des autres fibres minérales, fibres artificielles qui sont abondamment présentes dans les constructions notamment aux fins d'isolation thermique. Depuis la fin des années 70, l'utilisation de ces laines s'est accélérée. Le principe de précaution, qui inspire aujourd'hui toute approche en matière de gestion des risques pour la santé, conduit à porter une plus grande attention au comportement des matériaux fibreux, en particulier vis à vis des conditions de "relargage" des fibres dans l'air des locaux.

Les niveaux de concentration sont connus dans les usines de production (KAUFFER E. *et al*, 1990), des mesures ont été effectuées pour évaluer l'empoussièrement en fibres lors de la mise en œuvre de laines minérales dans les secteurs du bâtiment (KAUFFER E. *et al*, 1993). Des essais inter laboratoires (DYBRO JUHL H., 1998 ; HANTON D., 1995), pratiqués en chambre environnementale grandeur réelle par les producteurs de laines minérales ou en chambre de petites dimensions (CLASS P., *et al* 1996) ont été menés afin de déterminer de manière optimale les niveaux d'émission de fibres, lors de la pose de ces matériaux fibreux.

En dépit de ces études, il n'existe pas actuellement de base suffisante qui permette d'évaluer l'exposition environnementale plus couramment désignée sous le terme d'exposition "passive", à laquelle peuvent être confrontés les occupants des bâtiments. La connaissance de cette exposition est un élément essentiel de l'évaluation et de la maîtrise de ces risques. Elle passe également par l'étude de l'impact du vieillissement sur la capacité des matériaux à émettre des fibres.

L'objectif principal de ce travail consiste à mettre en place une procédure et des outils permettant de comparer le comportement de différents matériaux d'isolation, en fonction de facteurs climatiques (température, humidité relative) susceptibles d'altérer leurs caractéristiques physiques (densité apparente, cohésion). Ces évolutions des matériaux ont été associées à des mesures qualitatives (longueur, diamètre) et quantitatives (concentration en fibre/m³) des fibres émises dans un banc d'essai de sollicitations mécaniques. La recherche est axée sur des produits en laine de verre et en laine de roche, utilisés pour l'isolation intérieure des bâtiments.

STRATEGIE GENERALE

Après avoir réalisé un inventaire de la gamme des matériaux isolants fibreux existants, le choix des produits a porté sur deux laines de verre et deux laines de roche commercialisées, non revêtues et utilisées pour l'isolation intérieure des bâtiments. Nous avons choisi des rouleaux et des panneaux de nature, de densité différentes mais destinés à une application similaire.

La démarche expérimentale consiste en la mise en place des essais expérimentaux nécessaires à la compréhension des phénomènes de libération des fibres. Deux essais de vieillissements artificiels poussés, en enceinte climatique, ont été mis en œuvre pour différents temps donnés (1 mois et 10 mois). Les conditions climatiques appliquées ont été fixées en tenant compte des variations climatiques que l'on peut rencontrer dans les combles des habitations, ou des conditions hygrométriques consécutives à un dégât des eaux.

Pour tester la capacité de ces produits à émettre des fibres, un banc d'essai muni d'un dispositif expérimental de sollicitations mécaniques de ces matériaux et d'un système de prélèvement adapté à la mesure de l'émission de fibres a été conçu et réalisé. La méthode expérimentale d'échantillonnage ainsi que les règles de comptage des fibres au microscope électronique à balayage ont été adaptées à l'essai.

MATERIELS ET METHODES

MISE EN PLACE DES ESSAIS DE VIEILLISSEMENT

Deux types de vieillissements artificiels ont été mis en place. Un premier essai en cycle gel/dégel ($-20^{\circ}\text{C}/80^{\circ}\text{C}$) à raison de quatre cycles par jour est appliqué aux quatre matériaux. Un deuxième essai en enceinte à 80°C , saturation en humidité relative est appliqué uniquement aux deux laines de verre ; celles-ci sont séchées dans un laboratoire climatisé à $23^{\circ}\text{C} \pm 2^{\circ}\text{C}$, $50\% \text{ HR} \pm 5\% \text{ HR}$. Les dimensions des éprouvettes ont été fixées à $100 \text{ mm} \times 100 \text{ mm}$ pour assurer un nombre suffisant d'éprouvettes à tester, fonction du volume des enceintes climatiques disponibles.

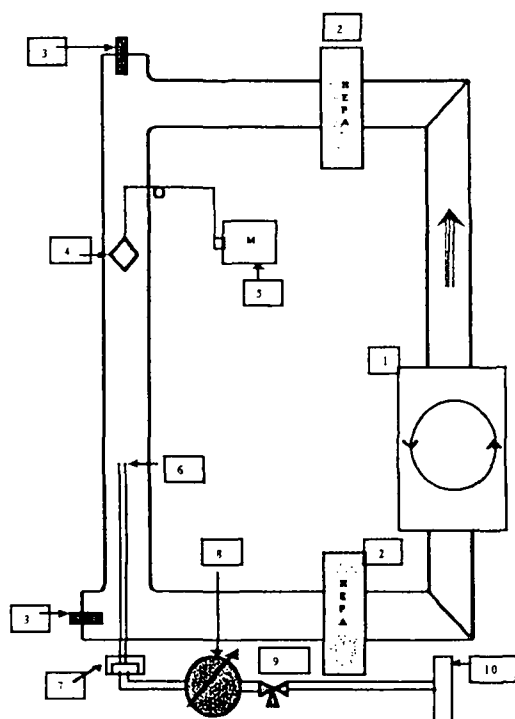
CONCEPTION DU BANC D'ESSAI

Pour étudier la libération de fibres à partir d'éprouvettes de petites dimensions, nous avons choisi de concevoir un banc d'essai expérimental sous forme de tunnel aéraulique fermé pour confiner cette émission de fibres mais aussi pour pouvoir contrôler aisément le flux d'air circulant dans la veine.

Dans le but de comparer la capacité de ces matériaux à émettre des fibres, qu'ils soient neufs ou vieillis artificiellement, nous avons choisi de leur faire subir une sollicitation mécanique contrôlée. Le flux d'air circulant dans le tunnel, entraînant les fibres émises jusqu'au point de prélèvement, doit avoisiner des conditions de régime turbulent stable, ceci pour homogénéiser la vitesse et obtenir, au point de prélèvement, un profil presque uniforme dans le conduit vertical, avec une épaisseur limite aux parois.

PRINCIPE DU MONTAGE

Le banc d'essai expérimental fonctionne en circuit fermé (Figure 1). L'air circulant est généré par une turbine (1). Deux filtres HEPA (filtre absolu, de très haute efficacité) sont installés en amont et en aval du prélèvement pour assurer un air propre circulant dans le système (2).



- 1 : Turbine aspirante
- 2 : Filtres HEPA
- 3 : Capteur T°/HR
- 4 : Nacelle porte-échantillon
- 5 : Système de sollicitations mécaniques de l'éprouvette
- 6 : Tête de prélèvement
- 7 : Porte-filtre
- 8 : Pompe à palettes
- 9 : Vanne de régulation du débitmètre
- 10 : Débitmètre à bille

Figure 1: schéma du banc d'essai expérimental

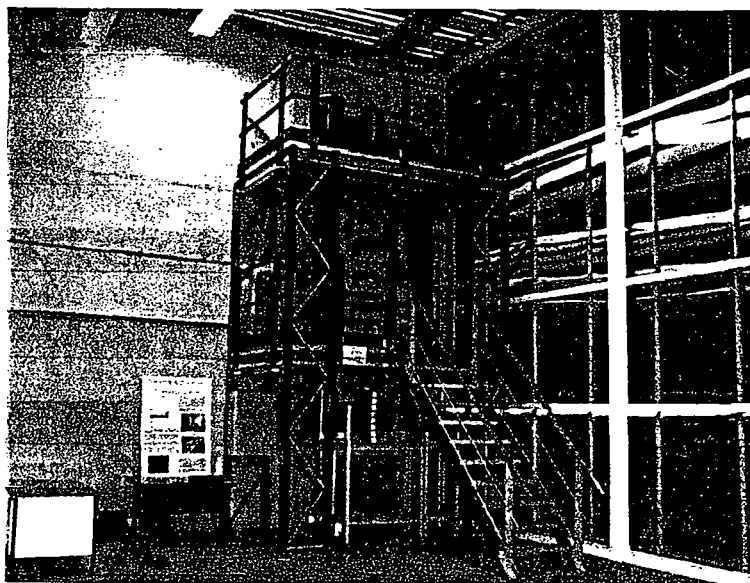
Le banc d'essai est composé d'un tunnel placé dans le sens vertical, à l'intérieur duquel est disposée une éprouvette de laine minérale artificielle maintenue dans une nacelle grillagée en suspension (4), soumise à différentes sollicitations mécaniques grâce à un système conçu spécifiquement à cet effet et placé à l'extérieur du tunnel (5). Le système de sollicitations mécaniques génère un mouvement oscillant de la nacelle. Le choc ainsi que les vibrations produits par la retombée de l'éprouvette dans le fond de la nacelle entraînent l'émission des fibres que les phénomènes de vieillissement auraient rendus libérables.

Le diamètre intérieur du cylindre est de 295 mm, la vitesse du flux circulant est fixée à 0,8 m/s induit par un débit d'air de l'ordre de 200 m³/heure et un nombre de Reynolds d'environ 15 000 (caractéristique d'un régime turbulent) au sein du tunnel.

Le montage dans son ensemble a une forme rectangulaire, les angles sont réalisés au moyen de coudes (parties du système non étudiées) et de tés en PVC pour permettre l'introduction des différents appareillages de caractérisation du système (sondes de mesure de la température et de l'humidité relative) (3) et assurer un nettoyage aisé et sûr du montage après chaque essai, par introduction de différents "outils" de nettoyage. Afin d'optimiser le captage, une fine couche d'inox reliée à la terre est appliquée sur la face interne du conduit pour s'affranchir de tout effet électrostatique lié à la nature des fibres étudiées. Cette feuille d'inox est disposée le long de la section du tube où sont disposés l'éprouvette et le système de prélèvement adapté à la mesure des fibres. La hauteur du banc expérimental est de l'ordre de 4 mètres, et sa largeur de 2 mètres.

Lors de la rédaction du cahier des charges du montage, nous avons choisi de concevoir un banc d'essai dont certains paramètres peuvent varier. Ainsi il a été prévu de concevoir une canne télescopique de prélèvement en inox dont les embouts modulables permettent de faire varier la position de la buse d'entrée dans le tunnel aéraulique (6). Un pas de vis a été usiné à l'extrémité de la buse pour changer la tête d'échantillonnage. Pour assurer le déplacement de la canne à l'endroit le plus approprié, un système de glissière suffisamment épais pour la maintenir parfaitement dans l'axe vertical, a été placé en aval du tunnel, à l'extérieur du montage.

Le système renfermant enfin le filtre de prélèvement est un porte-filtre conçu intégralement en inox (7). Il est placé à l'extérieur du banc, dans un tiroir coulissant contenant deux emplacements pour porte-filtre, afin de pouvoir changer aisément les filtres de prélèvement au cours de l'essai, si besoin est.



Photographie 1 : banc d'essai expérimental in situ

ESSAI DE PRELEVEMENT

Lors de la conception du tunnel aéraulique, complété du système de sollicitations mécaniques des matériaux et de prélèvements de fibres, nous avons pensé effectuer le prélèvement dans des conditions proches de l'isocinétisme.

L'anémomètre à fil chaud utilisé pour la détermination du profil des vitesses est un appareil portable ALNOR, modèle APM 360 à canne télescopique. Cet appareil mesure des vitesses d'air comprises entre 0 et 30 m/s avec une précision de 3 % de la lecture $\pm 0,01$ m/s pour des vitesses supérieures à 0,5 m/s. Les mesures ont été effectuées sur tout le diamètre du tunnel (huit points de mesure symétriques) et ceci à différentes hauteurs (six points de mesure tous les cinquante centimètres environ).

L'éprouvette à tester est située à une distance de 1 mètre 50 de l'arrivée du flux d'air (5 fois le diamètre du tunnel) et le prélèvement est effectué au moins 10 fois les dimensions de l'éprouvette (conditions imposées par la Norme NFX 44 052).

Le débit de prélèvement a été fixé à 0,5 m³/heure pour une durée d'essai de deux heures. Il est régulé au moyen d'un débitmètre à bille.

OBSERVATION PAR MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A BALAYAGE (MEB)

Le comptage et la mesure des fibres prélevées sont réalisés par MEB (JEOL 5 600 LV Low vacuum) à un grossissement de 500 afin d'avoir un nombre suffisant d'objets à observer (sensibilité analytique de 10 fibres par champ). La limite de résolution du microscope électronique dans ces conditions d'observation est fixée à 0,2 μm . Les fibres à observer sont prélevées sur une membrane polycarbonate avec des pores de l'ordre de 0,4 μm de diamètre.

Afin d'éviter tout problème de charge lors de l'observation au MEB, les membranes polycarbonate sont prémétallisées au moyen d'une cible platine (métalliseur JEOL JFC-1300 auto fine coater). Une couche supplémentaire est également déposée après échantillonnage. On veillera, lors du retour à la pression atmosphérique de la chambre de métallisation, à ne pas aspirer les fibres dans le flux d'air. Ce contrôle est assuré par la mise en place de vannes micrométriques au niveau du métalliseur et de son système de vide.

Les fibres prélevées lors de l'essai de sollicitations du matériau fibreux se présentent sous des formes variées, allant de fibres isolées à des configurations ou agglomérats complexes. Dans ce second cas, l'opérateur peut avoir du mal à identifier et à compter les fibres. Les résultats obtenus peuvent être différents selon les règles appliquées. Il est donc nécessaire de définir d'une manière définitive les règles de comptage et de les appliquer systématiquement pour toutes les comparaisons.

L'observation est axée préférentiellement sur la détermination du diamètre des fibres prélevées. La distribution du diamètre des fibres est divisée en deux classes : la fraction de fibres dites "respirables" (fibres de diamètre inférieur à 3 μm) et la fraction de fibres dites "irritatives" (fibres de diamètre supérieur à 3 μm).

REGLES DE COMPTAGE

On considère comme fibre tout objet à bords parallèles, dont le rapport longueur sur diamètre (allongement) est supérieur à 3 sur 1. Les objets de longueur inférieure à 5 μm sont également considérés comme fibres, contrairement à l'habitude. Ceci permet en effet de mettre en évidence les différences observées au niveau du diamètre et de la longueur des fibres émises à partir de matériaux neufs, et des fibres émises à partir de matériaux vieilliss artificiellement, lors de l'essai de sollicitations.

Ces règles de comptage ont pour but de dénombrer TOUS les objets répondant aux critères dimensionnels cités, c'est-à-dire tout objet à bords parallèles, dont le rapport longueur sur diamètre (allongement) est supérieur à 3 sur 1 et dont la longueur est comprise entre 0,2 μm et 250 μm . Cette méthode est une méthode de comptage et non une méthode d'analyse, elle ne prend donc pas en compte la nature des objets observés.

Ces règles ont été adaptées à l'essai à partir des règles existantes pour le comptage et la mesure des fibres par microscopie optique (WHO, 1985 ; OMS, 1998) et microscopie électronique (VDI, 1991).

RESULTATS

Dès la sortie des éprouvettes de l'enceinte du vieillissement artificiel à saturation en humidité relative, haute température, nous avons pu d'ores et déjà observer un tassement du produit dans le temps. Ainsi les éprouvettes de rouleaux de laine de verre semblent avoir perdu près de 50 % de leur épaisseur initiale. Pour le vieillissement en cycle gel/dégel, aucun phénomène observable n'a pu être constaté.

Les essais de prélèvement de fibres par sollicitations mécaniques des matériaux ont été appliqués à chacun des matériaux étudiés et réalisés systématiquement sur trois éprouvettes identiques provenant du même produit. Le petit nombre d'échantillons ne nous permet pas de calculer une moyenne, d'autant plus que la dispersion obtenue pour la détermination de la concentration de fibres libérées lors des différents essais peut être importante. Afin de voir si les variations de concentration observées sont significatives, nous avons effectué un test statistique à partir des valeurs obtenues expérimentalement.

Le test statistique appliqué est le test non paramétrique de rang de Kruskal-Wallis dans le cas de petits échantillons ($n=3$) pour 3 populations estimées ($t = 0$, $t = 1$ mois, $t = 10$ mois). Nous avons adopté dans notre cas le risque de première espèce $\alpha = 10\%$. Le test a été appliqué également pour déterminer la signification des variations observées pour le calcul de la fraction respirable.

Les résultats obtenus à partir des rouleaux de laine de roche ayant vieilli en cycle gel/dégel montrent une augmentation significative de la concentration de fibres libérées. Le matériau neuf libère de 6 000 à 10 000 fibres/ m^3 tandis que le matériau ayant vieilli 10 mois en enceinte peut en libérer le double (Figure 2). Cette augmentation va de pair avec la variation observée pour la fraction de fibres dites "respirables" prélevées. En effet le nombre de fibres respirables peut également croître du simple au double (Figure 3).

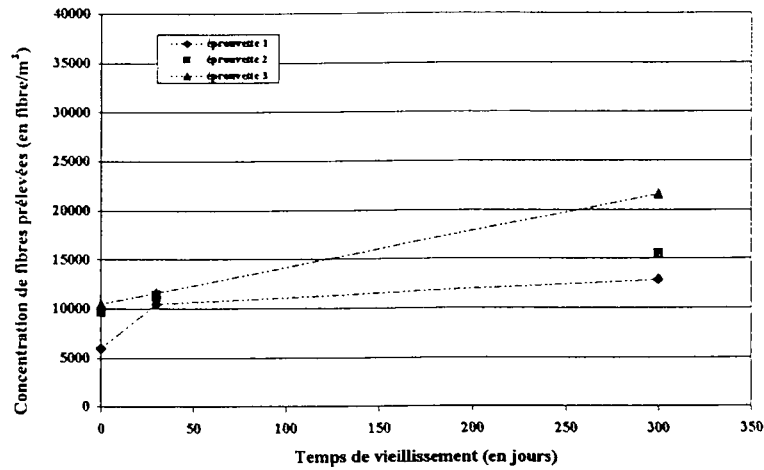


Figure 2: variation de la concentration de fibres prélevées en fonction du temps de vieillissement en cycle gel/dégel. Rouleau de laine de roche

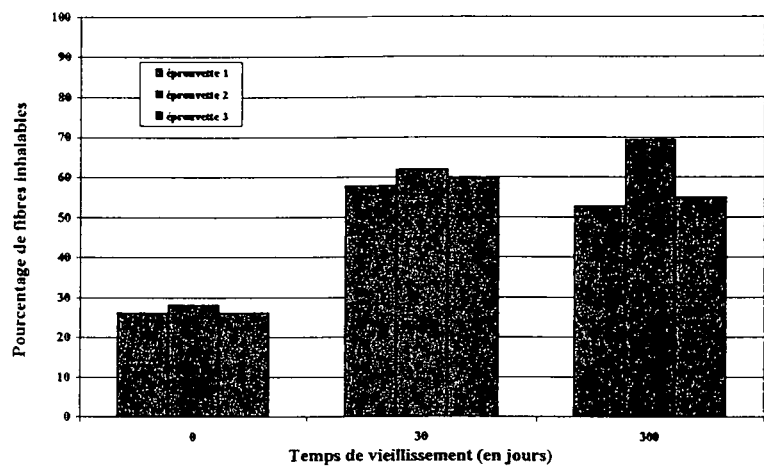


Figure 3 : variation de la fraction de fibres dites "respirables" prélevées en fonction du temps de vieillissement en cycle gel/dégel. Rouleau de laine de roche

Pour l'essai de vieillissement à saturation en humidité relative, haute température, appliqué au rouleau de laine de verre, on observe également une augmentation significative du nombre de fibres prélevées. La cinétique de libération semble cependant plus rapide que dans l'essai de vieillissement précédent (dès le quatorzième jour) et la concentration de fibres libérées plus importante (de l'ordre de 20 000 à 30 000 fibres/m³) (Figure 4). En revanche on observe une variation de la fraction de fibres respirables moins quantifiable mais qui semble indiquer une diminution du nombre de fibres respirables émises au cours du vieillissement (Figure 5).

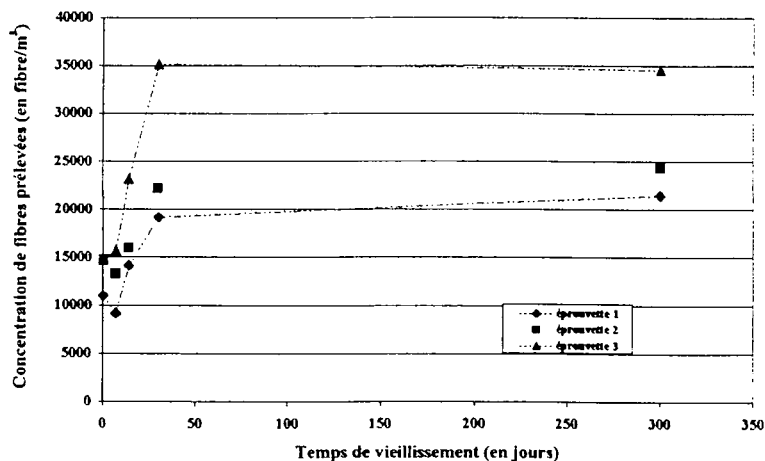


Figure 4 : variation de la concentration de fibres prélevées en fonction du temps de vieillissement à saturation en humidité relative, haute température. Rouleau de laine de verre

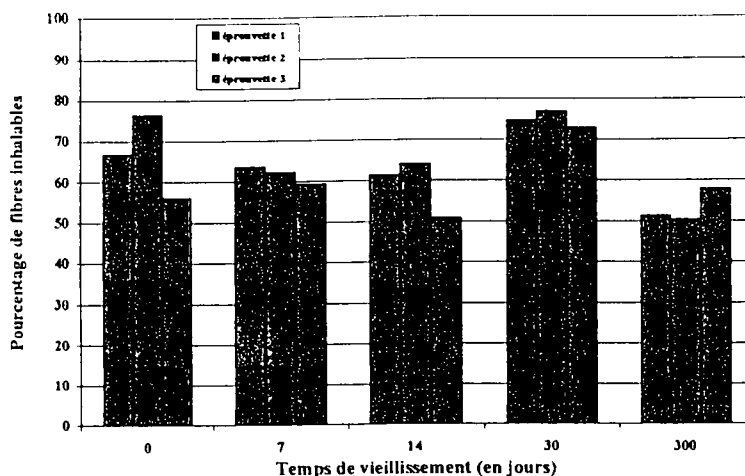


Figure 5 : variation de la fraction de fibres dites "respirables" prélevées en fonction du temps de vieillissement à saturation en humidité relative, haute température. Rouleau de laine de verre

CONCLUSIONS

Ces travaux de recherche ont nécessité la réalisation d'un banc d'essai expérimental qui permette de comparer la capacité d'émission de fibres à partir de matériaux isolants fibreux de petites dimensions. Les essais ont été réalisés sur les quatre matériaux choisis pour représenter l'ensemble des matériaux d'isolation du bâtiment. Les mesures de la concentration de fibres libérées tendent à augmenter en fonction du vieillissement des produits.

Cette libération de fibres résulte d'une certaine décohésion des fibres, attribuable en partie aux conditions climatiques appliquées au niveau des enceintes de vieillissements artificiels, mais aussi à la sollicitation mécanique imposée au cours de l'essai.

Ce banc d'essai permet de comparer la capacité des matériaux fibreux à émettre des fibres en tenant compte du vieillissement du produit. Cette approche devrait également permettre d'obtenir des éléments de réponse quant à la durabilité du produit.

Parallèlement aux mesures d'émission comparées de fibres, des essais de mesure de la force de résistance à la traction ont été réalisés. Les résultats indiquent une perte importante des caractéristiques en cohésion et ceci pour les deux types de vieillissements considérés. Le vieillissement à saturation en humidité relative, haute température semble altérer rapidement la durabilité du produit : deux tiers des caractéristiques de cohésion sont perdues pour un panneau de laine de verre ayant vieilli une semaine en enceinte climatique.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- CLASS, P., R. C. BROWN, et al. (1996). "Evaluation of the relation between the nominal fibre diameter of bulk refractory ceramic fibres and airborne fibre concentration (dustiness) using a laboratory shaking test box." *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft* 56: 319-321.
- DYBRO JUHL H., HUSEMOEN T., LINDQVIST H., NORDH I., TRAPPMANN J., "Standard full-scale chamber tests conditions for examination of mineral wool products", *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft*, 58, n°9, pp 349-352, september 1998.
- HANTON, D. and H. LINDQVIST (1995). "Evaluation of the dustiness of man-made vitreous wool products using a laboratory shaking test." *Staub - Reinhaltung der Luft* 55: 11-15.
- KAUFFER, E., F. BARAT, et al. (1993). "Matériaux isolants formés de fibres minérales artificielles. Niveaux d'empoussièrement et mesures de prévention lors de la pose." *Cahiers de note documentaire INRS* 150: 25-33.
- KAUFFER, E., J. C. VIGNERON, et al. (1990). "Matériaux fibreux. Caractéristiques dimensionnelles. Mesures de niveaux de pollution." *Cahiers de Note Documentaire (INRS)* 141: 817-823.
- OMS (1985). Reference methods for measuring airborne man-made mineral fibres. Copenhagen, World Health Organization.
- OMS (1998). Détermination de la concentration des fibres en suspension dans l'air. Méthode recommandée : la microscopie optique à contraste de phase (comptage sur membrane filtrante).
- VDI (1994). "Measurement of Inorganic Fibrous Particles in the Ambient Air." *VDI Richtlinien Verein Deutscher Ingenieure* 3492 Part 2.

PRINCIPE D'UN COMPTEUR A FLUX CONTINU DE PARTICULES PAR CONDENSATION D'HUMIDITE AMBIANTE (COPACHA)

E. Géhin^{*}, A. Renoux^{**}, B. Gaffet^{***}

^{*} CERTES, Université Paris XII, Av. du Général de Gaulle 94010 Créteil, France. E-Mail : gehin@univ-paris12.fr

^{**} CERAMO Ingénierie, 1, rue Claude Bernard, 77000 La Rochette, France

^{***} LPATC, Université Paris XII, Av. du Général de Gaulle 94010 Créteil, France.

Nomenclature

C_p Capacité thermique massique
 d Diamètre de la tuyère à la section d'abscisse x [m]
 D Diamètre des particules ou des gouttes [m]
 D_{vg} Coefficient de diffusion de la vapeur dans le gaz [$m^2.s^{-1}$]
 H Humidité relative
 I Taux de nucléation [$m^{-3}.s^{-1}$]
 J Flux massique de vapeur arrivant sur une goutte [Kg/s]
 k Conductivité thermique du fluide porteur [$W.m^{-1}.K^{-1}$]
 K Constante de Boltzmann
 K_n Nombre de Knudsen
 L Chaleur latente de vaporisation [J.kg]
 l_{col} Longueur du col [m]
 l_{conv} Longueur du convergent [m]
 M Masse molaire [kg/mole]
 m_d Masse d'une goutte
 m_v Masse d'une molécule de vapeur [$kg.mol^{-1}$]
 N Concentration volumique en particule [m^{-3}]
 p Pression [pa]
 r Constante des gaz parfaits [$J.kg^{-1}.K^{-1}$]
 R_{gp} Constante des gaz parfaits [$J.K^{-1}.mole^{-1}$]
 S Degré de saturation
 T Température [K]
 t_s Temps de séjour [s]

v Vitesse [$m.s^{-1}$]
 V Vitesse thermique moyenne [$m.s^{-1}$]
 v_m Volume de la molécule [m^3]
 x Abscisse dans la tuyère [m]

Symboles

ρ Masse volumique [$kg.m^{-3}$]
 σ Tension de surface [$N.m^{-1}$]
 λ Libre parcours moyen [m]
 μ Viscosité dynamique [pa.s]

Nombres adimensionnels

Kn Nombre de Knudsen
 Nu Nombre de Nusselt
 Re_d Nombre de Reynolds de la goutte
 Sh Nombre de Sherwood

indices

c Fait référence au régime continu
 col Fait référence au col de la tuyère
 i Fait référence à l'état générateur
 l Fait référence à la phase liquide
 d Fait référence à une goutte
 t Fait référence au régime transitoire
 v Fait référence à la vapeur
 vs Fait référence à l'état de vapeur saturante

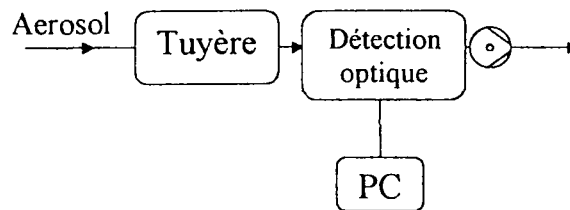
1. INTRODUCTION

Nous nous proposons de présenter le principe d'un nouveau type de CNC fonctionnant grâce à la condensation de l'humidité contenu dans l'air ambiant. Remarquons dès maintenant que notre dispositif (figure 1) est adapté au comptage de particules nanométriques dans les salles propres. En effet, dans certains procédés, les particules dites « tueuses » peuvent atteindre des diamètres de l'ordre de 15 nm (Monteux [2000]) ce qui implique une surveillance permanente de la concentration en particules de dimensions supérieures à ce diamètre. La majorité des CNC existants présentent des inconvénients pour ce type d'applications :

- Les débits de prélèvement sont en général faibles (inférieurs à 1,4 l/min), ce qui rend la détection de faibles concentrations problématique (temps de prélèvement trop long).

- L'alcool Butylique qui est généralement utilisé dans le saturateur peut poser des problèmes de sécurité pour les personnes amenées à travailler quotidiennement avec ce type d'appareillage¹.
- L'appareillage du CNC comprend un saturateur, un condenseur et un compartiment de détection optique. Ces éléments nécessitent maintenance, réglage et étalonnage une simplification du système serait donc profitable.

Le COPACHA (figure 1) utilise donc la présence naturelle de vapeur d'eau dans l'air ambiant pour provoquer le grossissement par condensation des particules en suspension. La condensation de la vapeur d'eau est déclenchée par une détente subsonique continue dans une tuyère dont la sortie est mise en dépression par pompage. Les taux de saturation atteints dépendent de l'humidité relative de l'air, de la section au col de la tuyère et des paramètres de fonctionnement du système (débit, pression aval, température initiale du fluide). Il est donc possible, par une adaptation de ces paramètres, d'obtenir des taux de saturation de l'ordre de 3, ce qui permet d'activer des particules de diamètre supérieur à 4 nanomètres. Le grossissement de l'aérosol peut être accentué après activation par l'allongement du col, ce qui permet d'augmenter le temps de transit et, donc, le diamètre final. La gouttelette obtenue est détectée en sortie de col par un système classique utilisant la diffusion de la lumière.



¹ Figure 1 : Schéma de principe du COPACHA

2. Modélisation du grossissement d'une particule au cours d'une détente en tuyère

L'équation de Kelvin permet d'obtenir le diamètre minimum D_{min} des noyaux qui seront activés pour un taux de saturation S et une température T données :

$$D_{min} = \frac{4 \cdot \sigma_l \cdot M_v}{\rho_l \cdot r_{gp} \cdot T \cdot \ln(S)} \quad [1]$$

Lorsque la particule a un diamètre supérieur à D_{min} elle grossit par condensation. Les phénomènes de transferts de masse et de chaleur entre la particule et le milieu environnant dépendent du nombre de Knudsen du gaz porteur :

$$K_n = \frac{2 \cdot \lambda}{D} \quad [2]$$

Avec λ le libre parcourt moyen du gaz porteur et D le diamètre des gouttes.

Dans notre configuration, les calculs du nombre de Knudsen pour des particules de diamètre de l'ordre du micromètre donnent des valeurs comprises entre 10^{-1} et 10^{-2} . D'après la classification donnée par Devienne [1958], le régime correspondant est donc le régime transitoire. Le flux massique de vapeur arrivant sur la goutte pour le régime transitoire (J_t) et en tenant compte de l'effet du déséquilibre mécanique entre phases est donné par :

$$J_t = C(K_n) \cdot J_c \cdot \frac{Sh}{2} \quad [3]$$

Le modèle utilisé pour le calcul du flux massique de vapeur en régime continu est un modèle diffusif classique (Bricard [1977]) :

$$J_c = 2 \cdot \pi \cdot D_{vg} \cdot D \left(\frac{p_{vo} \cdot M_v}{R_{gp} \cdot T_{\infty}} - \frac{p_{vd} \cdot M_v}{R_{gp} \cdot T_d} \right) \quad [4]$$

¹ Assa Achy [1987] a mis au point un CNC ne présentant pas ces inconvénients, puisqu'il utilise du glycérol en remplacement de l'alcool Butylique et les débits atteints sont de l'ordre de 28 l/min. Parsons et Mavliev [2001] ont, quant à eux, proposé un CNC utilisant de la vapeur d'eau refroidie dans un condenseur.

$p_{v\infty}$ et T_∞ sont respectivement la pression de vapeur et la température du fluide loin de la goutte. p_{vg} est la pression de vapeur à la surface de la goutte de température T_g :

$$p_{vd} = p_{vs}(T_d) \cdot \exp\left(\frac{4 \cdot \sigma_l \cdot M_v}{\rho_l \cdot R_{gp} \cdot T_d \cdot D}\right) \quad [5]$$

$C(kn_v)$ est le coefficient de correction de Fuchs pour la vapeur défini par Fuchs en 1959. La variation de diamètre de la goutte est donc donnée par :

$$D \cdot \frac{dD}{dt} = \frac{2 \cdot D_{vg} \cdot M_v}{\rho_l \cdot R_{gp}} \left(\frac{P_r}{T} - \frac{R_{vd}}{T_d}\right) C(Kn_v) \cdot Sh \quad [6]$$

Du fait de la condensation les gouttes s'échauffent, l'énergie (Q_l) gagnée par unité de temps par une goutte de diamètre D est :

$$Q_l = J_l \cdot L \quad [7]$$

Avec L la chaleur latente de vaporisation de la vapeur.

L'énergie produite par condensation se dissipe par conduction (Q_c) dans le fluide environnant :

$$Q_c = 2 \cdot \pi \cdot D \cdot k \cdot (T_d - T_\infty) \cdot C(kn) \cdot \frac{Nu}{2} \quad [8]$$

k est la conductivité thermique du gaz porteur, $C(kn)$ le coefficient de correction de Fuchs pour le gaz porteur et Nu est le nombre de Nusselt.

En supposant que la température de la goutte est uniforme on obtient donc :

$$\rho_l \cdot C_{pl} \cdot \frac{dT_d}{dt} = \frac{6}{\pi \cdot D^3} \cdot (Q_l - Q_c) \quad [9]$$

Les gouttelettes sont entraînées dans l'écoulement. La force due à la gravité étant négligeable devant les autres termes, l'équation du mouvement d'une particule dans l'écoulement peut s'écrire en fonction de la force de traînée et des forces de pression s'exerçant sur la goutte :

$$m_d \cdot \frac{dv_d}{dt} = \frac{6 \cdot \pi \cdot \mu \cdot C_D \cdot Re_d \cdot D}{48 \cdot C_c} \cdot (v_d - v) - \frac{dp}{dt} \cdot v_d^{-1} \cdot \frac{\pi \cdot D^3}{6} \quad [10]$$

Re_d est le nombre de Reynolds de la goutte :

$$Re_d = \frac{|v_d - v| \cdot D \cdot \rho}{\mu} \quad [11]$$

Avec v , ρ et μ respectivement la vitesse, masse volumique et la viscosité du fluide porteur.

C_D est le coefficient de traînée et C_c est le facteur de Cunningham (Seinfeld, 1986):

$$C_c = 1 + \frac{2\lambda}{D} \left[1.257 + 0.4 \exp\left(\frac{-1.1D}{2\lambda}\right) \right] \quad [12]$$

On supposera que les gouttes sont sphériques, régulièrement réparties dans la phase gazeuse et qu'elles sont présentes en faible concentration ($< 10^7$ particules/cm³). La phase gazeuse est composée d'un mélange d'air et de vapeur d'eau. Le mélange des deux phases est traité comme un pseudo-fluide dont l'écoulement peut être décrit par les mêmes équations qu'un écoulement monophasique. La résolution des équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie auxquelles s'ajoute l'équation d'état du fluide permettent de calculer les pression, température et masse volumique du fluide dans la tuyère.

La pression de vapeur est calculée en tenant compte de la chute de pression de vapeur due à la condensation sur les gouttes et en négligeant tout autre phénomène de condensation (pas de condensation aux parois). On obtient :

$$p_v = \left[\frac{p}{P_i} \cdot P_{vi} \right] \cdot (D^3 - D_i^3) \cdot \frac{\pi \cdot \rho_l \cdot N}{6} \cdot \frac{R_{gp} \cdot T}{M_v} \quad [13]$$

Avec p , p_{vi} , D_i respectivement les pression totales, pression de vapeur et diamètre en entrée de tuyère. N est la concentration volumique en gouttes à la section x dans la tuyère, elle est calculée en fonction de la concentration volumique en entrée de tuyère par :

$$N = N_i \cdot \frac{\rho}{\rho_i} \quad [14]$$

Le modèle établi à l'aide des lois de transferts, décrit le grossissement de particules par condensation d'une vapeur lors de la détente en tuyère. L'ensemble des équations exprimant la croissance des gouttelettes et leur déplacement dans la tuyère sont les équations [6], [9] et [10]. On utilise une méthode de Runge-Kutta pour obtenir à chaque abscisse, les transferts de masse et chaleur sur les gouttelettes, les valeurs de la pression de vapeur, la température, la vitesse et le diamètre de la goutte.

3. Discussion

Notre étude théorique montre qu'il existe un domaine de fonctionnement du dispositif pour lequel :

- ◆ les taux de saturation qui peuvent être atteints dans un air ambiant classique d'humidité relative supérieure à 20 % permettent d'activer des particules de diamètre supérieur à 10 nm,
- ◆ les taux de saturation atteints restent inférieurs au taux de saturation critique,
- ◆ le grossissement des particules activées est suffisant pour en permettre la détection.

D'après Ahn [1988] le taux de saturation critique correspondant au seuil pour lequel apparaît la condensation homogène peut être calculé en recherchant la valeur de S pour laquelle le taux de nucléation $I = 1 \text{ m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$. Il obtient :

$$S_{cr} = \exp \left[\frac{16 \cdot \pi \left(\frac{\sigma}{K \cdot T} \right)^3 \cdot v_m^2}{3 \cdot \ln \left(2 \cdot v_m \left(\frac{P_v}{K \cdot T} \right)^2 \left(\frac{\sigma}{2 \cdot \pi \cdot m_v} \right)^{1/2} \right)} \right]^{1/2} \quad [15]$$

Ce taux de saturation ne doit pas être dépassé, car il y aurait alors création de noyaux de condensation ce qui conduirait à une surestimation du nombre de particules.

Dans nos calculs, nous considérons que la tuyère est de section circulaire et que son diamètre varie linéairement du diamètre d'entrée d_i au diamètre du col d_{col} . La longueur du convergent est notée l_{conv} . La pression et la température de l'état générateur sont respectivement : $P_i = 1.00E+05 \text{ pa}$ et $T_i = 288 \text{ K}$. Nous considérons des longueurs de col différentes afin d'obtenir des temps de séjour suffisants pour le grossissement des particules (figure 2). La zone de fonctionnement de l'appareil est définie sur la figure 3. Elle est comprise entre la courbe supérieure correspondant aux couples (H_i, P_{aval}) produisant un taux de saturation critique au col de la tuyère et la courbe inférieure produisant l'activation au col des particules de diamètre 10 nm.

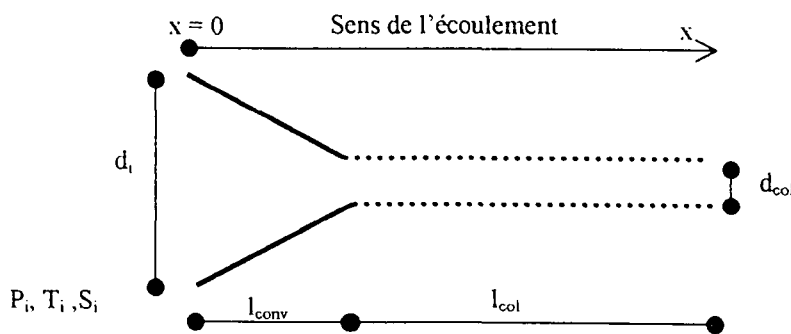


Figure 2 : Géométrie utilisée pour l'étude théorique

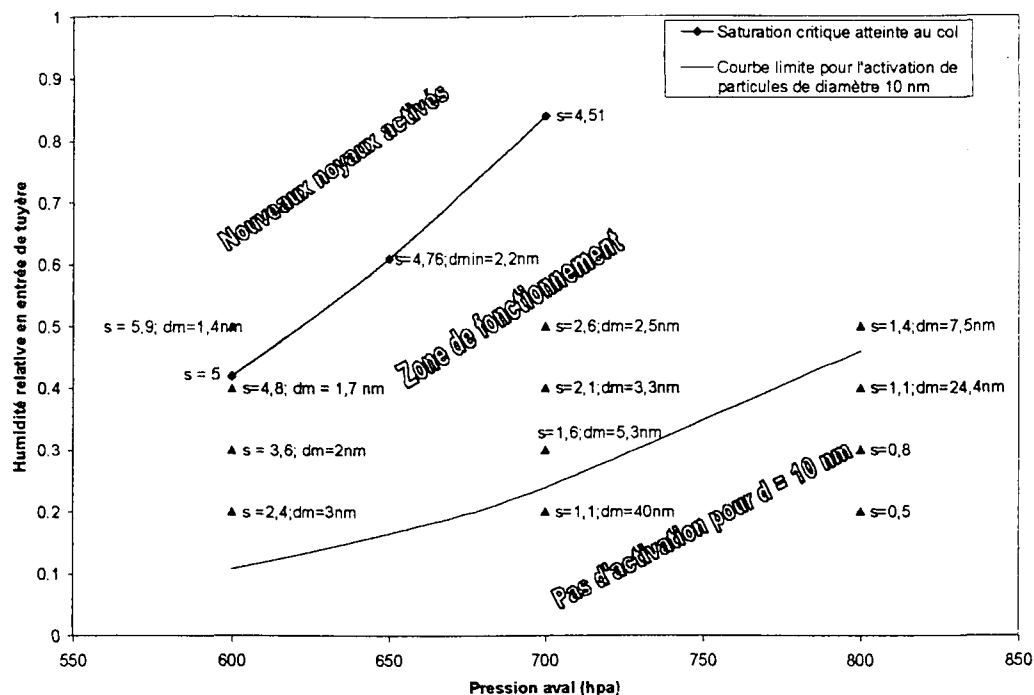


Figure 3 : Zone de fonctionnement du système en fonction du couple humidité relative en entrée de tuyère et pression aval ($A_i/A_{col} = 44,4$).

Une fois le processus de condensation enclenché, il faut que l'aérosol grossisse dans la tuyère jusqu'à un diamètre détectable optiquement. Rappelons que le diamètre minimum détectable classique des compteurs optiques de particules du commerce est de l'ordre de $0,15 \mu\text{m}$. Dans notre système, le grossissement de la particule se produisant essentiellement dans le col de la tuyère, le temps de séjour dans le col est donc un paramètre essentiel. Le tableau 1 donne le diamètre final des gouttes en sortie de tuyère, pour différents temps de séjour et humidités relatives pour des aérosols de diamètre initial 10 nm . On observe que, pour une pression aval de 700 hPa et un temps de séjour supérieur à $0,8 \text{ ms}$, les particules de diamètre initial 10 nm grossissent suffisamment pour être détectées lorsque l'humidité relative est comprise entre 30% et 50% .

H/t_s	$0,34 \text{ ms}$	$0,55 \text{ ms}$	$0,8 \text{ ms}$	1 ms
30%	$0,06 \mu\text{m}$	$0,1 \mu\text{m}$	$0,14 \mu\text{m}$	$0,17 \mu\text{m}$
40%	$0,11 \mu\text{m}$	$0,18 \mu\text{m}$	$0,25 \mu\text{m}$	$0,30 \mu\text{m}$
50%	$0,16 \mu\text{m}$	$0,25 \mu\text{m}$	$0,34 \mu\text{m}$	$0,41 \mu\text{m}$

Tableau 1 : Diamètre final des gouttes pour différents temps de séjour et différentes humidités relatives ($P_{\text{aval}} = 700 \text{ hPa}$, $D_i = 10 \text{ nm}$, $A_i/A_{col} = 44,4$)

4. Conclusion

Notre étude théorique montre que le COPACHA (Compteur Continu de Particules par Condensation d'Humidité Ambiante) doit permettre de détecter des particules de tailles supérieures ou égales à 10 nm pour des humidités relatives supérieures à 20% . La pression aval de fonctionnement doit être adaptée en fonction de l'humidité relative ambiante, et le col doit permettre un temps de séjour minimum de l'ordre de $0,8 \text{ ms}$. Le débit de fonctionnement du système peut atteindre les 30 l/min ce qui permet une utilisation pour de faibles concentrations en aérosols et notamment en salle blanche. Les applications de ce type d'appareil devraient être nombreuses du fait de sa facilité de mise en œuvre.

Bibliographie

- Ahn, K.H.**, (1988), *Ultrafine aerosol measurement and particle activation and droplet growth processes in condensation nucleus counters*, PHD, University of Minnesota.
- Assa Achy, M.**, (1987), *Mise au point et étalonnage d'un compteur de noyaux de condensation à grand débit*, Thèse de doctorat, Université Paris XII.
- Bricard J.**, (1977), *Physique des Aérosols*, Rapport CEA R-4831
- Devienne, M.**, (1958), *Frottement et échanges thermiques dans les gaz raréfiés*, Gauthier-Villars, Paris.
- Fuchs, N.A.**, (1959), *Evaporation and droplets growth in gaseous media*, Pergamon, New York.
- Monteux, G.**, (2000), *Micro-électronique. Comment définir la pureté d'un gaz ?*, Salle Propres et Maîtrise de la Contamination, pp.28-32, Vol. 9.
- Parsons, C.; Mavliev, R.**, (2001), *Design and characterization of a new, water-based high sample-flow condensation nucleus counter*, *Aerosol Science and Technology*, 34, pp. 309-320.
- Seinfeld, J., H.** (1986) *Atmospheric chemistry and physics of air pollution*, Wiley, New York.

MESURE DU TAUX DE RENOUVELLEMENT D'UN AEROSOL DANS UNE ENCEINTE VENTILEE

C. PREVOST (1), L. PAUGAM (2), J.C. LABORDE (1)

(1) Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN)
Laboratoire d'Etude des transferts de Contamination, Epuration et Ventilation
DPEA/SERAC, CEA-Saclay, 91 191 Gif sur Yvette

(2) DESS SAGA Université Paris XII
Laboratoire de Physique des Aérosols et Transfert des Contaminations
Avenue du général de Gaulle, 91 000 Créteil

INTRODUCTION

La compréhension du comportement aérodynamique d'un polluant de nature gazeuse à l'intérieur d'un système ventilé (local, enceinte,...) est rendue aisée par l'utilisation courante des techniques de traçage gazeux qui permettent d'accéder à des paramètres caractéristiques de leur transfert du fait, notamment, de la détection spécifique et en temps réel des traceurs employés (exemple de l'hélium). Il n'en est pas de même pour le comportement des polluants de nature particulaire du fait de l'absence sur le marché, à notre connaissance, d'un dispositif capable de détecter de manière spécifique, en temps réel et en continu, le traceur particulaire mis en oeuvre dans ces applications (la fluorescéine sodée) dont on contrôle parfaitement les caractéristiques granulométriques. Nous avons donc, au sein du laboratoire, développé un prototype capable de répondre à ce besoin. L'objet de cette présente publication est de démontrer les performances du dispositif de détection d'aérosols fluorescents en temps réel pour évaluer le débit de fuite total d'aérosols lorsqu'ils traversent une enceinte ventilée de faibles dimensions, et ce, pour différentes tailles de particules.

TRANSFERT D'UN AEROSOL DANS UNE ENCEINTE VENTILEE

Les mécanismes qui régissent le transfert d'un aérosol à l'intérieur d'un système ventilé sont la plupart du temps relativement complexes. Cependant, les nombreuses études théoriques et expérimentales dédiées à leur compréhension permettent aujourd'hui d'interpréter et de modéliser la plupart des

mécanismes de dépôts des aérosols à l'intérieur du système étudié. Ainsi, le modèle global élaboré par Crump et Seinfeld en 1981 [1] pour décrire le taux de dépôt des aérosols prend en compte les effets de la diffusion Brownienne, de la diffusion turbulente ainsi que ceux liés aux forces de sédimentation.

Mc Murry et Rader ont ajouté dans ce modèle, en 1985, les effets électrostatiques dus aux charges des aérosols [2].

Chen, Yeh et Cheng [3] ont montré, quant à eux, les effets dominants des forces de thermophorèse dans une enceinte où sont présents des gradients de température.

Globalement, il est communément admis que, à température constante et pour des aérosols électriquement neutres, les forces de sédimentation conditionnent largement le dépôt des particules dont le diamètre aérodynamique dépasse environ 1 μm , tandis que prédomine la diffusion Brownienne pour les particules dont le diamètre est inférieur à 0,1 μm . A noter toutefois que les phénomènes deviennent complexes lorsque la turbulence du gaz porteur est accrue.

Lorsqu'un aérosol est émis avec un débit constant q à une concentration C_0 à l'intérieur d'une enceinte ventilée de manière homogène, la modélisation simplifiée de son transfert à l'intérieur de celle-ci s'écrit [4] :

$$\frac{dC}{dt} = q \frac{C_0}{V} - \frac{C}{V}(Q+q) - \frac{C}{V}(K.S_p + V_s.S_s) \quad (1)$$

Il s'agit de l'expression permettant d'accéder à l'évolution de la concentration C en particules selon le temps t .

Les pertes d'aérosols dans une enceinte ventilée de volume V sont liées au taux de renouvellement d'air du local, d'où la prise en

compte du débit d'extraction d'air Q, additionné aux phénomènes de dépôt des aérosols sur les parois et/ou sur le sol de l'enceinte. Les débits équivalents de perte des aérosols par dépôt sur les parois et le sol de l'enceinte dépendent des valeurs de K, la vitesse de dépôts aux parois, de Sp, la surface totale des parois, de Vs, la vitesse de sédimentation et de Ss, la surface au sol de l'enceinte.

L'intégration de l'expression (1) conduit à :

$$C(t) = \frac{q \cdot C_0}{A} \left[1 - \exp\left(-\frac{A \cdot t}{V}\right) \right] \quad (2)$$

avec $A = Q + q + K \cdot Sp + Vs \cdot Ss$. A représente dans ce cas le débit de fuite total de l'aérosol et le rapport V/A , la constante de temps de l'enceinte.

Lorsque l'émission de l'aérosol est stoppée, l'expression (2) devient :

$$C(t) = C^* \exp\left(-\frac{A \cdot t}{V}\right) \quad (3)$$

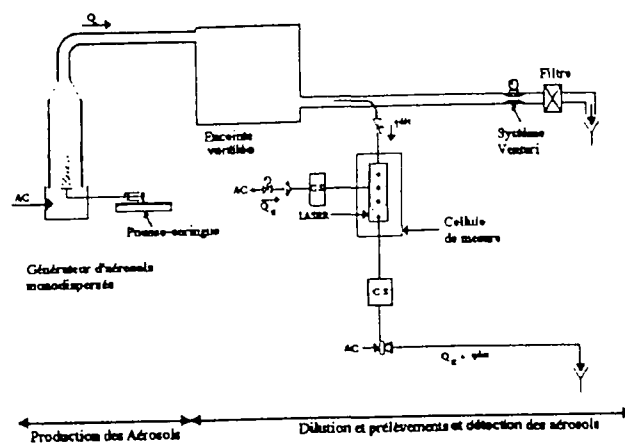
C^* représente la concentration atteinte à l'équilibre.

Le tracé sur papier semi-logarithmique de la fonction $\ln\left(\frac{C}{C^*}\right)$ en fonction du temps permet d'accéder à la valeur du débit de fuite total des particules puisque la pente calculée représente au signe près le rapport A/V .

MONTAGE EXPERIMENTAL

La figure 1 indique les différents éléments du montage expérimental mis en œuvre pour notre étude. Au cœur de ce montage figure l'enceinte expérimentale testée dans laquelle sont injectés successivement les traceurs gazeux et particulaire employés. Cette enceinte représente un local ventilé de forme cubique dont le volume est égal à 1 m^3 . Les parois en verre de cette enceinte sont facilement démontables, ce qui autorise notamment de choisir la configuration de ventilation testée (figure 2) : soufflage haut et extraction basse (SHEB) ou bien soufflage bas et extraction basse (SBEB), qui sont les deux configurations retenues lors des essais. Un ventilateur placé sur le conduit d'extraction permet d'assurer huit renouvellements par heure dans l'enceinte (soit un débit d'extraction de $8 \text{ m}^3/\text{h}$). Le conduit d'extraction est équipé de dispositifs de prélèvement gazeux et particulaire qui permettent d'acheminer l'air

prélevé jusqu'aux dispositifs de détection adaptés ; à noter que le dimensionnement du dispositif de prélèvement particulaire prend en compte l'isocinétisme.



Légende :

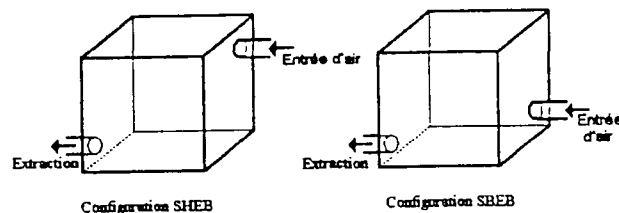
Q : débit de dilution dans le conduit principal (m^3/h),

Q_g : débit d'air de gainage (L/min),

q_{det} : débit de prélèvement dans le détecteur (l/min),

CS : Col Sonique, AC : Air Comprimé

Figure 1 : montage expérimental



Enceinte ventilée

Figure 2 : deux configurations testées

Emission de l'hélium

Le gaz traceur est injecté dans l'enceinte à partir d'une bouteille d'hélium pur dont le débit d'émission est fixé et contrôlé grâce à un capillaire calibré ($2,4 \text{ l/min}$).

Détection de l'hélium

La concentration en gaz traceur dans l'air prélevé à la sortie de l'enceinte est déterminée à partir d'un spectromètre de masse spécifique à l'hélium (ALCATEL) dont la réponse est délivrée en continu et en temps réel.

Production des particules fluorescentes

L'aérosol test est constitué de fines gouttelettes de glycérol marqué à la fluorescéine sodée à la concentration de 10 g/l. Elles sont produites à partir d'un générateur à orifice vibrant du type Berglund-Liu (TSI, modèle 3050) dont le principe de fonctionnement repose sur la fragmentation d'un jet liquide cylindrique lorsque ce jet traverse un orifice soumis à différentes fréquences de vibration. Les aérosols produits à partir de ce générateur ont la particularité d'être monodispersés, ce qui permet d'étudier successivement le comportement de particules de diverses tailles ; les diamètres aérodynamiques (d_{ae}) ainsi testés sont 3, 5 et 10 μm . Le débit d'air en sortie du générateur est réglé à 6 m^3/h . Il permet la dispersion et le séchage des gouttelettes formées.

Le contrôle de la distribution granulométrique des gouttelettes est effectué en amont de l'enceinte, au niveau de l'injection, et en aval de celle-ci, à l'extraction d'air de l'enceinte à partir du système A.P.S (Aerodynamic Particle Sizer, T.S.I.). Ce dispositif permet de rendre compte d'une éventuelle évolution de la taille des gouttelettes lorsque ces dernières traversent l'enceinte.

Détection des aérosols de fluorescéine sodée

Le nombre des particules contenues dans l'air prélevé est déterminé de manière spécifique, en continu et en temps réel par un dispositif de détection innovant qui a fait l'objet d'un développement interne au laboratoire [5] mais qui n'est pas commercialisé ; son principe de fonctionnement repose sur la détection de la fluorescence émise par les particules lorsque celles-ci interceptent un faisceau laser d'excitation focalisé à l'intérieur d'une chambre de mesure. Il autorise le suivi temporel en continu d'aérosols marqués spécifiquement à la fluorescéine sodée. De ce fait, ce dispositif rend possible la comparaison immédiate du comportement d'un gaz et celui d'un aérosol émis dans des conditions identiques à l'intérieur d'une enceinte ventilée.

Mesure des dépôts d'aérosols fluorescents

Le contrôle du dépôt des gouttelettes sur les parois de l'enceinte passe par le positionnement précis sur celles-ci de nombreuses cibles sur lesquelles sont recueillies les particules déposées. Ces cibles (disques de papier filtre) sont ensuite conditionnées afin d'extraire la masse déposée

de fluorescéine sodée par analyse spectrofluorimétrique.

RESULTATS EXPERIMENTAUX ET INTERPRETATION

Caractérisation du taux de renouvellement d'air R de l'enceinte expérimentale.

L'homogénéité de la répartition des flux d'air dans l'enceinte soumise aux deux configurations de ventilation SHEB et SBEB est déterminée à partir de la mesure du taux de renouvellement d'air R par la technique du traçage à l'hélium. Il s'agit d'injecter un débit constant d'hélium en un point situé dans le soufflage et de suivre l'évolution de la concentration résultante C prélevée dans le conduit d'extraction d'air. Dès que la concentration à l'équilibre C^* est atteinte, l'injection en traceur est alors stoppée et la décroissance de la concentration en gaz est suivie jusqu'à ce qu'elle devienne égale au bruit de fond.

Les figures 3 et 4 présentent les courbes $\ln(C/C^*)=f(t)$ obtenues respectivement dans le cas des configurations SHEB et SBEB.

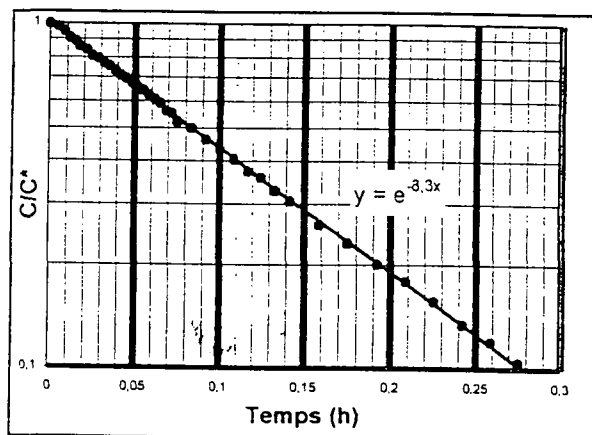


Figure 3 : configuration SHEB

Dans le premier cas étudié (SHEB), l'exploitation de la courbe de décroissance en gaz traceur indique que l'enceinte est ventilée de manière homogène puisqu'une seule pente est mesurée ; le taux de renouvellement R de l'enceinte est déduit du calcul de la pente ; il est dans ce cas égal à 8 h^{-1} , ce qui correspond au taux de renouvellement théorique déterminé à partir du volume de l'enceinte.

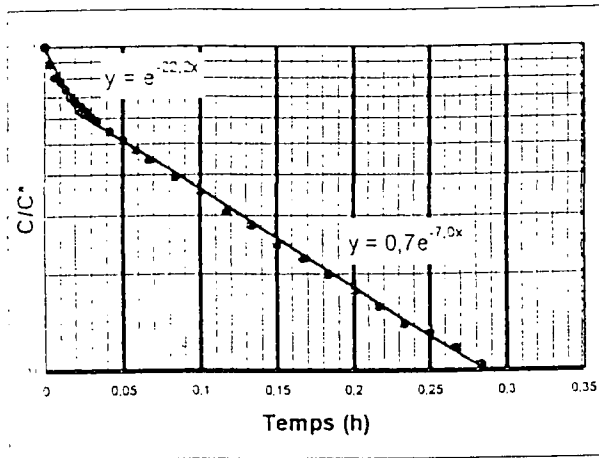


Figure 4 : configuration SBEB

La deuxième configuration de ventilation étudiée démontre la présence de deux zones de mélange à l'intérieur de l'enceinte. La zone de mélange plus active est renouvelée en air au taux R_1 égal à 22 h^{-1} ; la zone moins active est renouvelée au taux R_2 de 7 h^{-1} .

Caractérisation du transfert des particules

Suivi de la concentration particulaire dans l'enceinte

La figure 5 présentée ci-après indique l'évolution de la concentration particulaire mesurée dans le conduit d'extraction lors des phases successives d'un essai type: la première phase de croissance de la concentration particulaire pendant l'injection de l'aérosol au niveau du soufflage est suivie d'une phase de stabilité lors de laquelle la concentration à l'équilibre est atteinte.

A partir de là, l'injection de l'aérosol est stoppée et la concentration particulaire est mesurée par le détecteur jusqu'à ce qu'elle s'annule. Cette phase de décroissance est exploitée pour déterminer le débit de fuite caractéristique de l'aérosol testé.

Trois tailles de gouttelettes sont testées successivement pour chacune des configurations SHEB et SBEB; leur comportement en termes de transfert est comparé dans chaque cas à celui de l'hélium.

Les courbes de décroissance ainsi obtenues pour l'hélium, les particules de diamètre aérodynamique fixé à 3, 5 puis $10 \mu\text{m}$ sont

rassemblées pour chaque configuration sur un même graphe (figures 6 et 7).

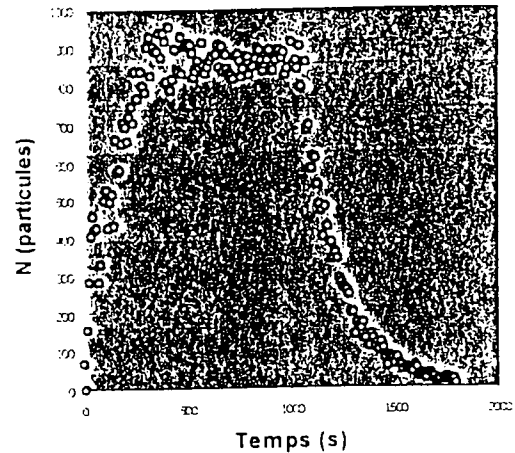


Figure 5 : évolution de la concentration particulaire lors d'un essai type

Pour chaque configuration testée, l'évolution de la concentration en traceur particulaire est similaire à celle mesurée avec le gaz traceur et de ce fait, est représentative également de la qualité de l'homogénéisation de la ventilation dans l'enceinte. Ainsi, une seule pente, soit une seule zone active, est mesurée en configuration SHEB, tandis que deux zones sont décelées en configuration SBEB et ce, quelle que soit la nature du traceur employé, et dans le cas du traceur particulaire, quel que soit le diamètre des particules testées.

Les valeurs absolues R_p des pentes déterminées dans chacun des cas sont renseignées dans les tableaux suivants (tableaux 1 et 2).

Tableau 1 : calcul des pentes en SHEB

	SHEB			
$d_{ae}(\mu\text{m})$	3	5	10	Hélium
$R_p(\text{h}^{-1})$	41	20	22	8

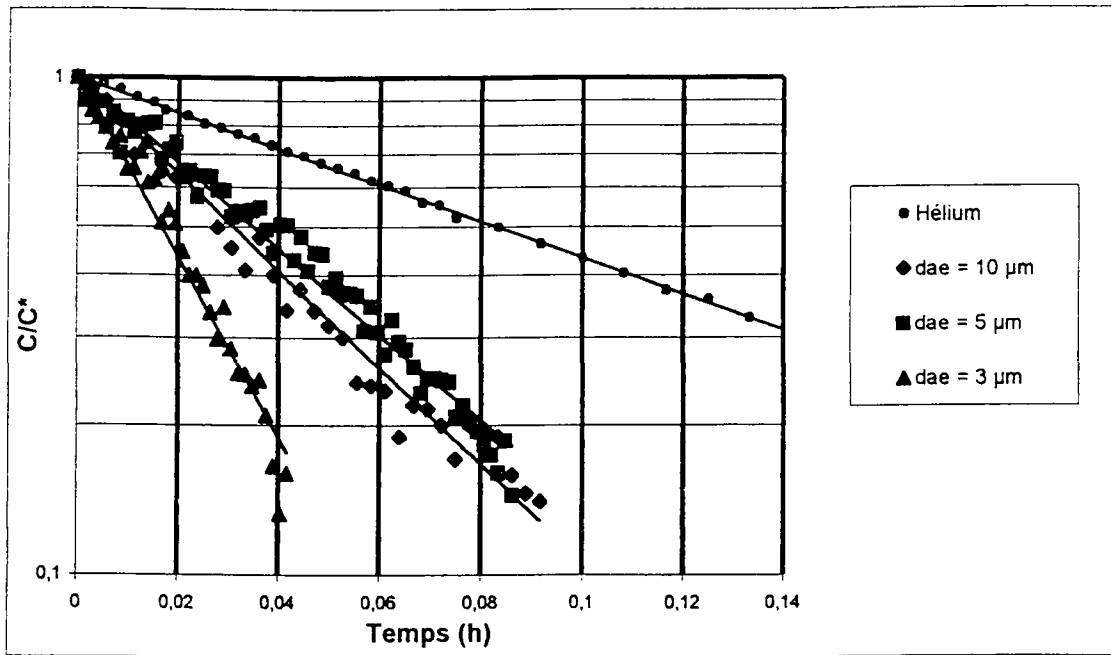


Figure 6 : courbes de décroissance des concentrations en gaz et particules pour la configuration SHEB

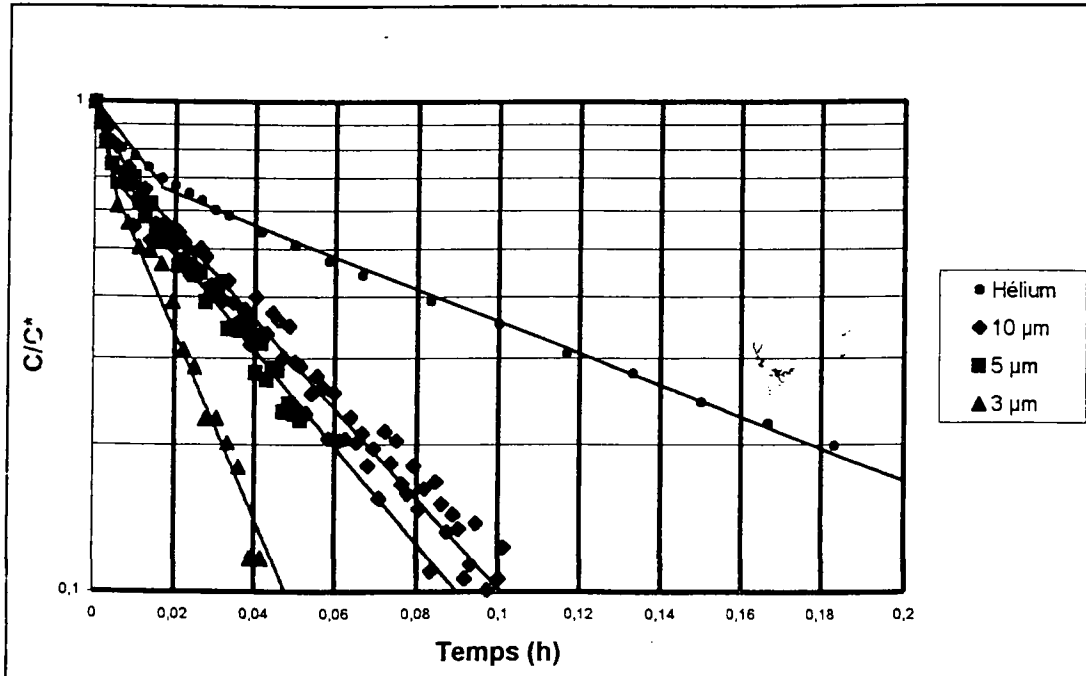


Figure 7 : courbes de décroissance des concentrations en gaz et particules pour la configuration SBEB

Tableau 2 : calcul des pentes en SBEB

	SBEB			
$d_{ae}(\mu m)$	3	5	10	Hélium
$Rp1 (h^{-1})$	88	73	39	22
$Rp2 (h^{-1})$	42	23	20	7

A noter que les pentes des zones les moins actives calculées dans le cas du SBEB sont voisines des pentes uniques déterminées dans le cas du SHEB, mis à part le fait qu'il y a une inversion pour les particules de 5 et 10 μm .

Le manque actuel de modélisation du transfert d'aérosols dans un local ventilé à deux zones ne nous permet pas d'interpréter les courbes obtenues dans le cas du SBEB. Seul le cas du SHEB où l'on a montré que l'enceinte était ventilée de manière parfaitement homogène permet l'étude particulière des débits de fuite globaux des aérosols et les phénomènes prépondérants qui régissent le transport des particules de différentes tailles dans cette enceinte expérimentale à petite échelle.

Détermination du débit de fuite des aérosols dans le cas du SHEB

L'analyse des courbes de décroissance obtenues dans le cas du SHEB permet d'accéder au débit de fuite total A des particules dans l'enceinte ventilée. Rappelons que ce débit de fuite total représente le débit de fuite dû au renouvellement d'air du local (précédemment déterminé par la technique de traçage hélium) additionné au débit de perte des particules essentiellement lié aux phénomènes de dépôt sur le sol et sur les parois de l'enceinte.

La valeur absolue de la pente des droites obtenues est égale à A/V , soit R_p : elle correspond à la somme du taux de renouvellement R de l'enceinte et du taux de dépôt des aérosols β , soit :

$$C(t) = C * \left[1 - \exp \left(- \frac{A}{V} t \right) \right]$$

avec $A = Q + K.S_p + V_s.S_s$

et $R_p = R + \beta$

A l'arrêt de l'injection d'aérosols, on obtient :

$$C(t) = C * \exp(-R_p.t)$$

Le tableau 3 permet de comparer les valeurs expérimentales du taux de renouvellement R_p , équivalent au débit de fuite total des aérosols, avec les valeurs déduites de la technique par traçage hélium pour la détermination de R, additionnées au terme exprimant les pertes par sédimentation Vs.Ss .

Tableau 3 : comparaison des valeurs expérimentales et des valeurs calculées

	SHEB		
$d_{ae}(\mu m)$	$Rp(exp) (h^{-1})$	$Rp = R + V_s.S_s (h^{-1})$	$\delta = Rp(exp) - Rp (h^{-1})$
3	41	9	32
5	20	11	9
10	22	19	3

L'écart δ entre la pente déterminée par l'expérience, $Rp(exp)$, et celle calculée en prenant en compte la perte des aérosols par renouvellement d'air et sédimentation au sol ($R + V_s.S_s$), soit

$$\delta = Rp(exp) - (R + V_s.S_s)$$

est d'autant plus important que la taille des aérosols produits diminue. Or, la valeur δ caractérise l'amplitude du phénomène de dépôt des particules sur les parois de l'enceinte, lié notamment aux mécanismes de diffusion Brownienne, d'inertie turbulente et d'effets électrostatiques. A noter que les faibles dimensions de l'enceinte testée ($1m^3$) amplifient la turbulence générée dans l'enceinte par le soufflage à l'entrée d'air. De plus, la probabilité de chocs particules-paroi est également augmentée.

Devant la difficulté de modéliser précisément les débits de fuite de particules par dépôt sur les parois, que ce soit par diffusion, inertie ou attraction électrique, des essais complémentaires ont dû être menés afin de comprendre quels sont les effets prédominants qui favorisent un débit de fuite important des particules de 3 μm .

En effet, selon le modèle de Crump et Seinfeld [1], au-delà de 1 μm , les auteurs ont montré que le taux de fuite augmente avec le diamètre de la particule, ce qui n'est pas vérifié dans

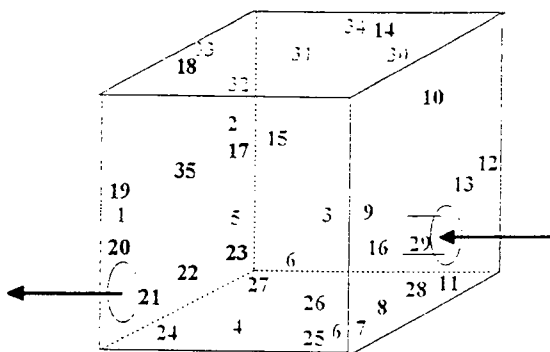
notre étude. Les hypothèses formulées pour expliquer le comportement observé sont essentiellement les deux suivantes :

- l'effet électrostatique des particules n'est pas pris en compte, or il s'avère que celui-ci peut être à l'origine d'un dépôt important des particules dans certains cas,
- l'effet des faibles dimensions de l'enceinte ; Corner et Pendlebury ont montré que le taux de dépôt des particules est inversement proportionnel aux dimensions de l'enceinte testée [6].

Essais complémentaires

Etude de la répartition des dépôts de particules dans l'enceinte

Il s'agit dans un premier temps de localiser et de quantifier de manière précise les dépôts privilégiés des aérosols dans l'enceinte et ce, pour les diamètres aérodynamiques de 3 et 10 μm . A cette fin, avant chaque essai, au minimum 5 filtres ont été disposés sur chacune des parois, soit au total 35 filtres ; ces filtres sont destinés à recueillir la masse d'aérosols impactés en tous points choisis de la surface interne de l'enceinte.



xx : position du filtre n°xx sur les parois de l'enceinte ventilée. Chaque couleur correspond à une paroi différente.

Figure 8 : localisation des filtres sur les parois de l'enceinte

Les essais sont effectués dans la configuration SBEB. Lors de chacun des essais, l'injection des aérosols de fluorescéine sodée est continue et, une fois la concentration à l'équilibre atteinte, les concentrations en amont et en aval de l'enceinte sont contrôlées par différents prélèvements successifs.

La durée totale prévue pour un essai de répartition des dépôts sur les parois est de 75 minutes, ce qui permet d'atteindre une masse significative de fluorescéine sodée sur chacun des filtres.

La figure 9 présente l'histogramme de distribution de la masse de fluorescéine sodée aux différents points testés.

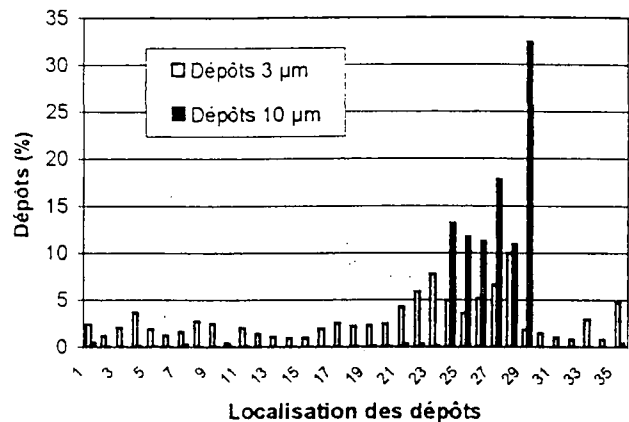


Figure 9 : répartition de la masse totale d'aérosols déposés en chacun des points testés.

Les dépôts des particules de 10 μm sont indéniablement privilégiés sur le sol de l'enceinte (97% de la masse totale déposée est répartie sur les points 24 à 29), ce qui confirme l'effet prépondérant, pour ces particules, des forces de sédimentation lors de leur transfert dans l'enceinte. Quant aux particules testées les plus fines (3 μm), leur répartition est plus étendue sur toutes les parois, et de manière un peu plus marquée, juste sur la paroi en regard de la zone de soufflage (points 21 à 23). On montre ainsi que, bien que soumis également aux effets de sédimentation, mais dans une moindre mesure (31 % seulement de la masse totale déposée), les particules de 3 μm subissent d'autres phénomènes complexes, tels par exemple la turbulence occasionnée notamment dans l'enceinte testée, par le « jet du soufflage » dont la portée atteint la paroi opposée, du fait des faibles dimensions de l'enceinte.

Globalement, ces essais réalisés sur les particules de 3 et 10 μm confortent les résultats obtenus précédemment puisqu'ils tendent à montrer que, pour nos conditions opératoires, le taux de dépôt des particules de 3 μm est supérieur à celui mesuré pour les particules de 10 μm .

Ainsi, dans ces derniers essais, on détermine les valeurs relatives des masses totales déposées par rapport aux masses injectées pendant l'essai, pour chacun des diamètres étudiés : nous mettons ainsi en évidence que la masse totale d'aérosols de 3 μm cumulée sur tous les filtres est plus de 13 fois supérieure à celle obtenue dans le cas des aérosols de 10 μm .

Etude de l'effet de charge des particules

Afin de limiter l'effet de charge électrique des aérosols et d'en vérifier l'incidence sur les dépôts, des essais complémentaires ont été réalisés en interposant une source scellée de Krypton 85 entre le dispositif de production des aérosols et le soufflage de l'enceinte. Cette source permet ainsi de porter les aérosols à l'équilibre de Boltzmann.

Les résultats montrent que dans ce nouvel état de charge, le débit de fuite total est conservé ; en effet, les pentes R_p calculées pour la décroissance de la concentration en particules de 3 ou 10 μm restent identiques à celles calculées en l'absence de la source de Kr 85.

CONCLUSION

Les performances du prototype de détection d'aérosols fluorescents, en temps réel et en continu, sont démontrées dans cette étude particulière visant à quantifier les débits de fuite globaux de particules spécifiques, à l'intérieur d'une enceinte ventilée de petites dimensions. Ce dispositif permet le suivi des phénomènes complexes à cinétique rapide qui régissent les transferts de particules à l'intérieur d'un système ventilé. Ainsi, la comparaison du comportement des gaz et des particules de différentes tailles est aujourd'hui rendue possible.

L'étude montre que dans la gamme granulométrique testée (3 à 10 μm) et dans le cas d'une enceinte de faibles dimensions, les aérosols de plus petite taille possèdent le plus fort débit total de perte, essentiellement lié aux mécanismes de dépôts par diffusion sur les parois de l'enceinte. Les aérosols de plus grands diamètres sont, quant à eux, soumis de manière forte aux effets de sédimentation. Les perspectives de cette étude sont l'influence de l'effet d'échelle de l'enceinte, ainsi que l'application de ce dispositif à d'autres études dans le domaine de l'aérocontamination.

REFERENCES

- [1] Crump J.G. and Seinfeld J.H.
Turbulent deposition and gravitational sedimentation of an aerosol in a vessel of arbitrary shape. *J. Aerosol Science*, Vol 12, No 5, pp 405-415, 1981
- [2] McMurry P.H. and Rader D.J.
Aerosol wall losses in electrically charged chambers. *Aerosol Science and Technology*, 4:249-268, 1985
- [3] Chen B.T., Yeh H.C., and Y.S. Cheng
Evaluation of an environmental reaction chamber. *Aerosol Science and Technology*, 17:9-24, 1992
- [4] Laborde J.C.
Principes et techniques d'évaluation des transferts de contamination, IPSN/DPEA/SERAC, *document de cours INSTN*, Saclay
- [5] Prévost C.
Etude d'un dispositif de comptage en continu d'un aérosol fluorescent, IPSN/DPEA/SERAC, Rapport CEA-R-5763, 1997
- [6] Comer J., Pendlebury E.P.
The coagulation and deposition of a stirred aerosol, *Proceed. Phys Soc (London)* B64:645-654, 1951

UN NOUVEL INSTRUMENT POUR MESURER LA DISTRIBUTION DIMENSIONNELLE DE LA FRACTION NON-ATTACHEE DES PRODUITS A VIE COURTE DU RADON-222

G. Tymen², V. Voisin¹ et N. Michielsens¹

¹ Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, DPEA/SERAC/LPMAC,
CEA-Saclay bât 389, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

² Laboratoire de Recherches Appliquées Atmosphère-Hydrosphère,
Université de Bretagne Occidentale, 6 avenue Le Gorgeu, 29285 Brest Cedex, France.

Introduction

On estime qu'environ la moitié de la dose efficace résultant de l'exposition au rayonnement radioactif naturel est due à l'inhalation des dérivés à vie courte du radon-222. (UNSCEAR, 1999). L'évaluation de la dose délivrée aux tissus cibles de l'arbre trachéo-bronchique nécessite la connaissance précise de la distribution en taille des particules inhalées. Les modèles courants de déposition pulmonaire montrent que la dose de radiation par unité d'exposition est plus élevée pour les produits à vie courte du radon de taille nanométrique (ou fraction non-attachée) que pour les radioéléments attachés aux aérosols ambiants. De plus, les propriétés diffusionnelles de cette composante influencent son attachement aux aérosols présents et sa déposition sur les surfaces qui sont les processus de base utilisés dans le « room model » pour calculer les activités des produits dérivés du radon dans les atmosphères intérieures (Gouronnec *et al.*, 1996).

La plupart des instruments utilisés pour mesurer la distribution en taille de la composante non-attachée est basée sur la méthode des grilles de tamis. Cette technique présente cependant deux inconvénients : d'une part la grille peut collecter une partie de la composante attachée, d'autre part des radioéléments fins peuvent être recréés sous l'effet du recul. Nous avons donc mis au point une nouvelle technique utilisant un canal de diffusion annulaire (ADC) (Tymen *et al.*, 1999) s'affranchissant de ces problèmes, et modifié pour permettre la mesure en continu de la fraction non-attachée (Huet *et al.*, 2001).

Matériels et Méthodes

La première étape consiste à maîtriser la courbe de pénétration d'un canal annulaire en fonction de la taille des particules incidentes. Celle-ci a fait l'objet d'études théoriques antérieures (Kérouanton, 1996) qui ont permis d'exprimer l'efficacité de collection d'un tel conduit sous la forme :

$$E=1-\sum_{i=1}^{\infty} A_i \exp(-2B_i \mu) \quad A_i \text{ et } B_i \text{ sont fonction du rapport } R_1/R_2 \text{ des rayons}$$

interne (R_1) et externe (R_2) et $\mu = \frac{DL}{4U(R_1 - R_2)^2}$ où D est le coefficient de diffusion des particules nanométriques, L la longueur du canal, U la vitesse moyenne de l'air dans l'espace intercyllindrique.

L'intérêt du canal annulaire pour collecter des particules de taille nanométrique a été mis en évidence en comparant les efficacités d'un canal avec une grille puis un tube, de pouvoir d'arrêt équivalent. Sur la figure 1, l'aspect plus pentu de la courbe d'efficacité du canal indique une meilleure sélectivité du canal sur la grille. La différence de comportement apparaît plus atténuée dans le cas du tube mais nécessite un conduit assez long et de plus la longueur d'établissement du régime est plus importante (Figure 2). Ces deux exemples mettent ainsi en évidence l'avantage de s'appuyer sur un système basé sur une batterie de diffusion à canaux annulaires pour notre étude.

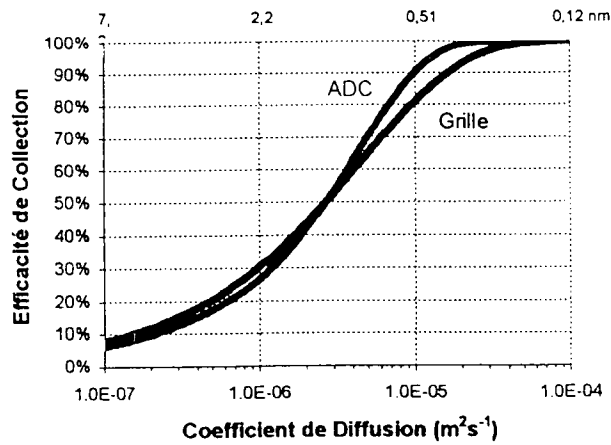


Figure 1 : comparaison entre l'efficacité de collection d'un canal annulaire et d'une grille.

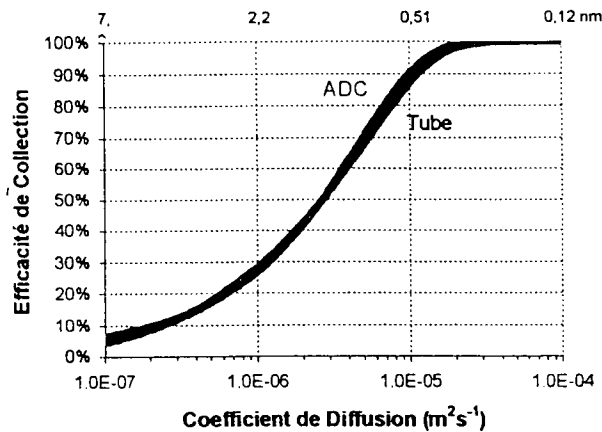
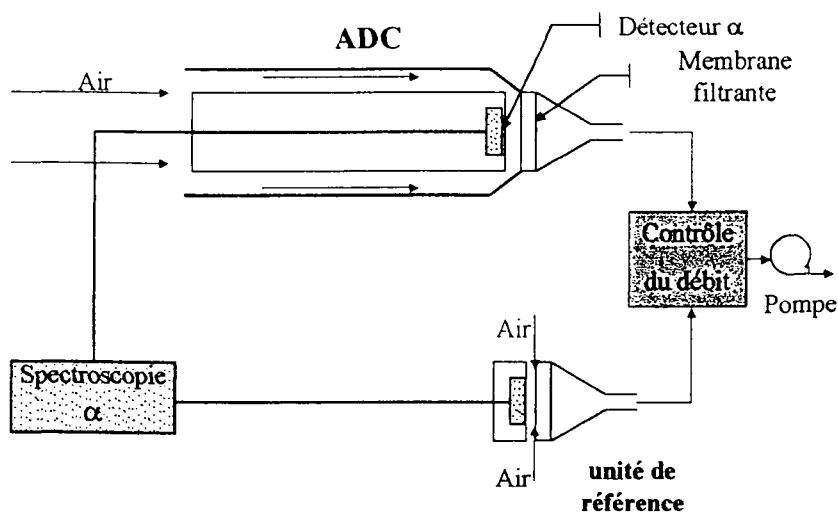


Figure 2 : comparaison entre l'efficacité de collection d'un canal annulaire (R_1-R_2 : 2mm, débit : 13 l/min, longueur : 11cm) et d'un tube (R : 10 mm, débit : 2,37l/min, longueur : 64 cm)

Le dispositif se présente sous la forme de cinq ADC de différente longueur plus un filtre de référence, fonctionnant en parallèle. Durant le prélèvement, les particules nanométriques sont partiellement piégées par diffusion sur les parois internes des canaux tandis que les autres sont collectées sur des membranes filtrantes (Poretics, Polycarbonate, $0,8 \mu\text{m}$) placées en aval. Les émissions alpha du ^{218}Po et ^{214}Po présents sur les filtres, sont analysées en spectrométrie α par des PIPS (Canberra 450) placés à l'extrémité des tubes intérieurs face au filtre, comme le montre le schéma de la figure 3. Les caractéristiques optimales et paramètres opératoires de cette batterie de diffusion, déterminés à partir de l'étude de Kerouanton et al. (1996), sont reportés dans le tableau 1, et les courbes illustrant l'efficacité de chaque canal à la figure 4.



ASFERA 2001

Figure 3 : Coupe schématique d'un ADC et du filtre de référence

	Longueur (cm)	Débit (l.min ⁻¹)	D (50%) (mm.s ⁻¹)	dp (50%) (nm)
ADC1	2.5	13	11.5	0.46
ADC2	4.5	13	6.4	0.7
ADC3	10	13	2.9	1.2
ADC4	25	13	1.1	2.1
ADC5	30	5	0.37	3.7
référence	-	13		

Tableau 1 : Caractéristiques des canaux annulaires pour $R_1=1,8$ cm, $R_2=2$ cm ($R_1/R_2=0,9$)

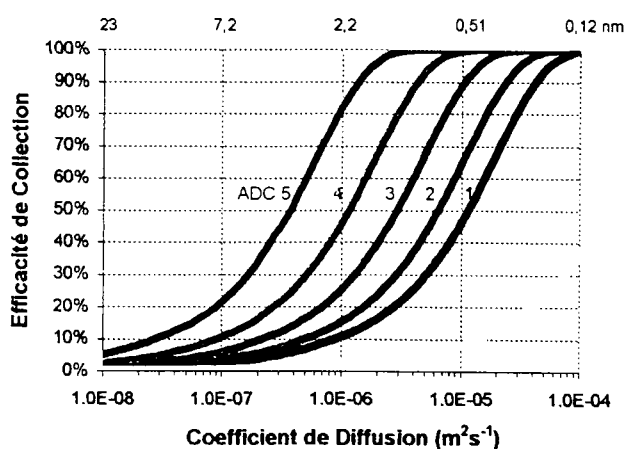


Figure 4 : Courbes d'efficacité de chaque canal

Traitement des données

Pour le calcul des activités volumiques des dérivés à vie courte du radon sur les différents filtres des canaux, nous utilisons la méthode proposée par Tremblay et al. (1979) et modifiée par Ramamurthi (1989). La procédure de détection et d'analyse consiste en la mesure du nombre d'émissions alpha provenant des atomes de Po-218 et Po-214 pendant deux intervalles de comptage successifs. Cette méthode permet en outre, du fait de la conception même du système, d'effectuer le prélèvement et le premier comptage simultanément et ainsi d'obtenir une meilleure précision sur les activités volumiques calculées notamment sur celle du Po-218.

De plus, pour éviter l'influence parasite des cycles précédents sur le cycle en cours le programme de gestion des séquences a été établi pour effectuer des cycles toutes les trois heures afin de permettre aux atomes de Pb-214 et de Bi-214 présents sur les filtres de disparaître avant le début du cycle suivant.

L'organisation des séquences, par cycle de trois heures, s'appuie sur un programme édité sous Quickbasic qui permet d'une part le démarrage de la pompe, à l'aide d'une interface que nous avons mise au point, puis le traitement des données d'activité acquises à partir du logiciel ACCUSPEC d'acquisition des spectres (Canberra).

Ensuite, pour reconstruire la distribution en taille des dérivés nanométriques du radon, dans une gamme de taille allant de 0,3 à 5 nm (c'est à-dire de coefficient de diffusion compris entre 0,2 et 22 $\text{mm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$), nous utilisons la procédure d'inversion non-linéaire EVE des données d'activité volumique, mesurée dans chaque unité. Cette technique de reconstruction développée par Paatero (Paatero, 1990, Tapper, 1995) a fait l'objet de tests d'intercomparaison avec d'autres approches (Butterweck-Dempewolf et al., 2000).

Premiers essais

Les premiers essais en situation expérimentale de cet appareil, ont été obtenus à la suite d'une campagne d'inter-comparaison avec une autre méthode utilisée par l'équipe du Professeur ORTEGA de l'Université Polytechnique de Catalogne (UPC). Cette équipe dispose d'une chambre à radon de 20 m^3 dans laquelle il est possible de simuler des conditions expérimentales propices à l'observation de dérivés nanométriques du radon en quantité substantielle.

Pour obtenir une population nanométrique importante, il faut tout d'abord un nombre de particules très faible dans la chambre. Toute expérimentation passe donc par une phase de ventilation longue afin d'éliminer les particules présentes dans la chambre d'essais. De plus, cette dernière est maintenue en légère surpression afin que les particules extérieures ne puissent pénétrer à travers les parois. Les expériences peuvent démarrer lorsque la concentration en particules est inférieure à 10 cm^{-3} .

Trois séries de tests ont été réalisés : Les deux premières à activité volumique radon maintenue constante à 2000 $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ puis à 5000 $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, la troisième en laissant croître l'activité volumique radon dans la chambre d'essais. Dans chaque expérience, six à sept cycles de 3 heures ont été programmés qui se sont déroulés de façon satisfaisante, tant dans le déclenchement des mesures que dans la phase de récupération des données.

L'examen des données brutes sur les filtres de chaque canal fait apparaître une décroissance de l'activité volumique des dérivés du radon formés essentiellement de Po218 depuis le canal 1 jusqu'au canal 5. Ce dernier ne laisse passer que quelques pourcents d'activité indiquant que la majorité des dérivés du radon sont bien sous forme libre.

On relève en outre la très faible variabilité des mesures sur chaque canal lors des séries où l'activité radon a été maintenue constante : ce qui dénote une bonne

reproductibilité des résultats lorsque les conditions demeurent stables.

Pour ce qui concerne la distribution en taille des radioéléments nanométriques du radon, étant donné la faiblesse de l'activité volumique du Pb-214 et du Bi-214 dans ces conditions expérimentales particulières, seule la reconstruction granulométrique du Po-218 a pu être réalisée.

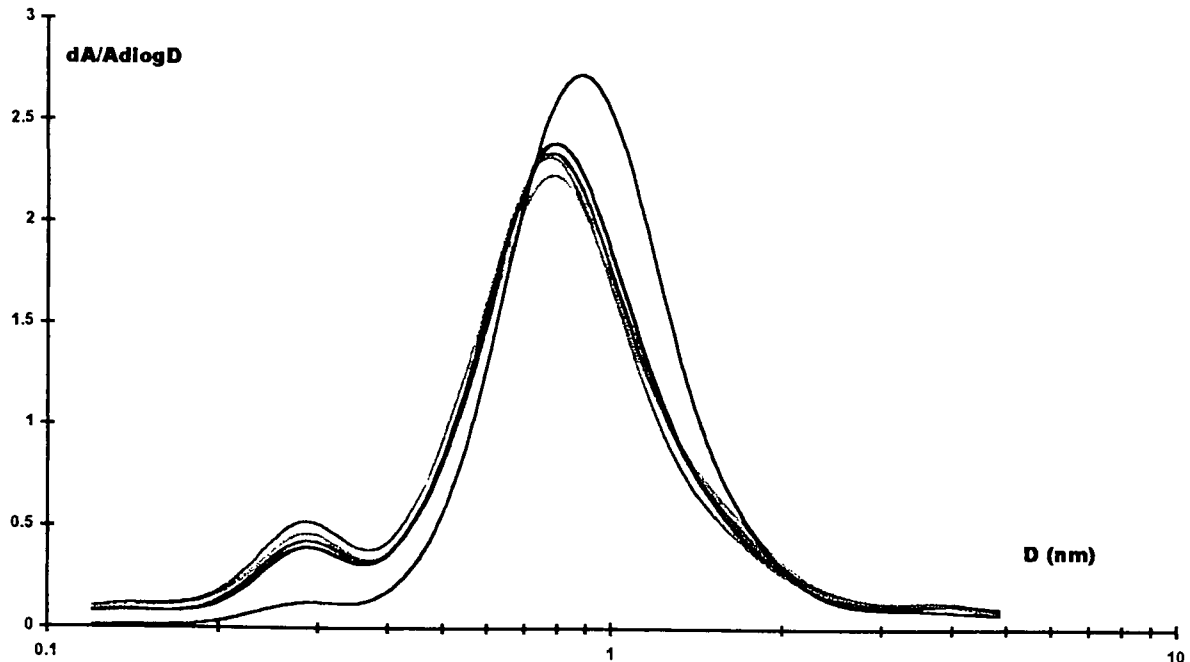


Figure 5 : Distributions dimensionnelles du Po-218 dans la chambre expérimentale pour une activité volumique en radon croissante jusqu'à 4000 Bq/m^3 .

La figure 5 illustre les différentes distributions obtenues pour le Po-218 lors de la série de mesures dans laquelle on laisse croître la concentration en radon dans la chambre au cours du temps. Tout d'abord, on observe une quasi superposition des spectres obtenus à chaque séquence, sauf celle correspondant à la plus basse activité volumique en radon (390 Bq/m^3), ce qui laisse supposer que la taille du Po-218 ne varie pas malgré la croissance de l'activité volumique du radon. En second lieu, ces courbes montrent un mode principal de diamètre autour de 0,8 nm correspondant à un coefficient de diffusion de $5,3 \text{ mm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Le mode secondaire apparaissant vers 0,3 nm n'a pas de réalité physique et représente plutôt un artefact de reconstruction par EVE. Ce résultat semble confirmer ceux obtenus par l'équipe de l'UPC dans les mêmes conditions.

Conclusion

Les premiers tests de fonctionnement du prototype de granulomètre destiné à la mesure des distributions en taille des dérivés à vie courte du radon, réalisés dans la chambre radon de l'Université Polytechnique de Catalogne à Barcelone, ont montré la faisabilité d'une telle mesure et le bon comportement de notre appareil. Ils ont en particulier permis de valider les protocoles de fonctionnement par séquence de durée de 3 heures et d'acquisition des données d'activité pour chaque voie de mesure. La distribution en taille du Po-218 nanométrique lors de cette expérience présente un mode centré sur un coefficient de diffusion de $5.3 \text{ mm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$.

correspondant à un diamètre thermodynamique de 0,8 nm , en cohérence avec les estimations de l'équipe espagnole au stade actuel de l'intercomparaison.

Dans un avenir proche, cette phase d'intercomparaison sera poursuivie en analysant les données obtenues et les processus utilisés par nos deux équipes. De plus, un étalonnage expérimentale est envisagé en utilisant une atmosphère de référence nouvellement développé à BACCARA au sein de l'IPSN.

Références

- Gouronnc A.M., Goutelard F., Montassier N., Boulaud D., Renoux A., Tymen G., Behaviour of radon and its daughters in a basement: model-experiment comparison *Aerosol Sci. Technol.* 25, 73-89, 1996.
- Kerouanton D., G. Tymen and D. Boulaud. Small particle diffusion penetration of an annular duct compared to other geometries , *J. Aerosol Sci.*, 27, 345-349, 1996.
- Butterweck-Dempewolf, G., Ch. Schuler, G. Vezzu, A. Reineking, C. Huet, G. Tymen, J.C. Strong, E. O. Knutson, A. Vargas-Drechsler. "Intercomparison of approximation algorithms for the determination of the size distribution of the unattached fraction of radon progeny". *Aerosol Science and Technology* , 33, 3, 261-273, 2000.
- Huet C. Etude du comportement des descendants à vie courte du radon dans l'habitat ". Thèse université de Brest, 1999.
- Huet C., Tymen G., Boulaud D., "Long-term measurements of equilibrium factor and unattached fraction of short-lived radon decay products in a dwelling – comparison with PRADDO model", *Aerosol Sci. Technol.*, 35, 553-563, 2001.
- Paatero P. The Extreme Value Estimation deconvolution method with application to aerosol research, University of Helsinki, *Report series in Physics*, HU-P-250 (1990).
- Ramamurthi M. The detection and measurement of the activity size distribution ($d_p > 0,5$ nm) associated with radon decay products in indoor air, *Thèse de l'Université d'Illinois*. 1989.
- Tapper U. . Solution of linear inversion problems and factor analytic problems with matrix based models, *Ph. D. thesis*(1995).
- Tremblay R. J., Leclerc A., Mathieu C., Pepin R., Townsend M. G.. Measurement of radon progeny concentration in air by α -particle spectrometric counting during and after air sampling, *Health Physics*, 36, 401-411, 1979
- Tymen G., Kerouanton D., Huet C., Boulaud D.. An annular diffusion channel equipped with a track detector film for long-term measurements of activity concentration and size distribution of ^{218}Po particles, . *J. Aerosol Sci.*, 30, 205-216, 1999.
- UNSCEAR (1999). *Exposures from natural radiation sources*, 48 session of UNSCEAR, Vienne, 12 to 16 april 1999.

SELECTION AERODYNAMIQUE DES PARTICULES D'UN AEROSOL A L'AIDE DE MOUSSES POREUSES EN POLYURETHANNE

P.Görner⁽¹⁾, R.J. Aitken⁽²⁾, L.C. Kenny⁽³⁾, C. Moehlmann⁽⁴⁾, R. Wrobel⁽¹⁾ et J.-F. Fabriès⁽¹⁾

(1) INRS, Av. de Bourgogne, BP 27, 54501 Vandoeuvre, France, (2) IOM, 8, Roxburgh Place, EH8 9SU, Grande Bretagne, (3) HSE, Broad Lane, S3 7HQ, Grande Bretagne, (4) BIA, Alte Heerstrasse 111, 53757 Sankt Augustin, Allemagne.

Résumé

Deux échantillonneurs sélectifs d'aérosol destinés à l'hygiène du travail sont actuellement en cours de développement dans le cadre d'un projet européen "Echantillonnage sélectif d'aérosol utilisant des mousses poreuses en polyuréthane, contrat N° SMT 4-CT96-2137". Ils doivent être capables de mesurer individuellement les concentrations des fractions conventionnelles (inhalable, thoracique et alvéolaire) d'un aérosol sur les lieux de travail. Ces échantillonneurs sont développés sur la base des échantillonneurs connus de la fraction inhalable "IOM sampler" (GB) et "PGP sampler" (D) utilisant des modules complémentaires de sélection des particules. La porosité et la géométrie des mousses sélectives pour la sélection de la fraction thoracique ou de la fraction alvéolaire ont été déterminées à partir d'un modèle semi-empirique. L'efficacité d'échantillonnage des prototypes des échantillonneurs sélectifs a été mesurée au laboratoire et comparée à l'efficacité conventionnelle de pénétration CEN-ISO. Les prototypes sont capables d'échantillonner les fractions conventionnelles thoracique et alvéolaire. Leurs performances ont été améliorées en modifiant légèrement la géométrie des modules. Une éventuelle modification ultérieure de l'efficacité ne sera possible qu'en changeant la porosité de la mousse sélective.

AERODYNAMIC PARTICLE SIZE-SELECTION USING POLYURETHANE POROUS FOAMS

P.Görner, R.J. Aitken, L.C. Kenny, C. Moehlmann, R. Wrobel and J.-F. Fabriès

Abstract

Two personal aerosol samplers for occupational hygiene are currently developed within the joint European project "Size Selective Personal Air Sampling Using Porous Plastic Foams, contract N° SMT 4-CT96-2137". They are designed for personal measurement of the inhalable, thoracic and respirable dust concentrations. The samplers have been developed on the basis of the inhalable aerosol samplers IOM and PGP using particle selecting modules made from polyurethane porous foams. The porosity and geometry of the selecting foams for the thoracic and respirable fractions were derived from a semi-empirical foam penetration model. The performance of the sampler prototypes was measured in laboratory conditions against the CEN-ISO conventional specifications. The prototypes of foam size-selective aerosol samplers are able to collect thoracic and respirable aerosol fractions provided that a slight modification of foam porosity or modules geometry is made.

Introduction

Un projet européen de recherche sur la sélection aérodynamique des particules d'un aérosol à l'aide de mousses poreuses en polyuréthane est en cours depuis 1997. Cinq pays européens contribuent à ce projet (contrat N° SMT 4-CT96-2137) : Allemagne, Royaume Uni, France, Italie et Suisse. L'institut BIA (D) assure la coordination du projet. Le but de la recherche est le développement de sélecteurs à mousses de polyuréthane utilisables en hygiène du travail pour l'échantillonnage des fractions d'aérosols liées à la santé. Deux échantillonneurs d'aérosol inhalable, IOM-sampler (GB) et PGP (D) [1] ont été équipés par des sélecteurs en mousse de polyuréthane afin de sélectionner respectivement la fraction thoracique et la fraction alvéolaire de l'aérosol. L'efficacité d'échantillonnage de ces prototypes a été mesurée dans un tunnel aéraulique avec génération d'aérosol afin de la comparer aux efficacités conventionnelles. Les performances de ces échantillonneurs sont discutées dans cette communication.

Méthode

Les mousses en polyuréthane (PU) présentent une structure alvéolaire en forme de dodécaèdres (Fig. 1) permettant d'être utilisées comme filtres sélectifs des particules [2,3]. La porosité d'une mousse est définie par l'un des trois paramètres : le nombre de pores par unité de longueur (ppi – pore per inch), le diamètre des filaments (d_f), ou la taille des cellules dodécaédriques (d_c) constituant sa structure. Les propriétés filtrantes dépendent de ces paramètres mais également des paramètres aérauliques de filtration. Des modules cylindriques de mousse (Fig. 2) ont été utilisés pour mesurer l'efficacité de filtration en fonction de leurs dimensions, de la porosité de la mousse et du débit d'air (vitesse de filtration) indépendamment dans trois laboratoires : IOM, HSL, (GB) et INRS (F).



Fig. 1 Structure alvéolaire de la mousse PU
Porosité : 90 ppi, $d_f=47 \mu\text{m}$, $d_c=476 \mu\text{m}$

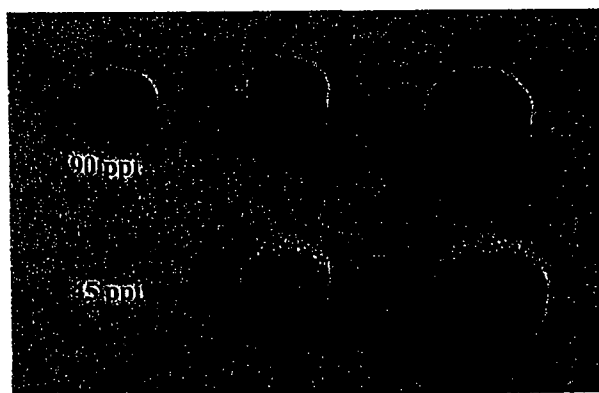


Fig. 2 Modules cylindriques en mousse PU
L = 4, 10, 12 mm ; D = 15, 20 mm

Un modèle semi-empirique de l'efficacité (P) de sélection des particules a été élaboré par Kenny et al. sur la base de ces données expérimentales [4,5]. Le modèle est rappelé par l'équation (1).

$$\ln(P) = -\frac{1}{d_f} \left\{ 5.486St^{2.382} + 3.891Ng^{0.880} \right\} \times 10^{-2} \quad (1)$$

où les quantités St et Ng sont les paramètres respectivement inertiel (nombre de Stokes) et gravitationnel (Ng). Ils ont été définis comme suit :

$$St = \frac{d_{ae}^2 \gamma U}{18\eta d_f} \quad (2)$$

$$Ng = \frac{d_{ae}^2 \gamma g}{18\eta U} \quad (3)$$

Toutes les unités des grandeurs physiques à introduire dans les équations (1-3) sont celles du système SI :

- d_{ae} - diamètre aérodynamique des particules [m]
- d_f - diamètre de filaments de la mousse PU [m]
- g - accélération gravitationnelle [$m.s^{-2}$]
- U - vitesse d'air [$m.s^{-1}$]
- γ - masse volumique de l'eau [$kg.m^{-3}$]
- η - viscosité dynamique de l'air [$kg.m^{-1}.s^{-1}$]

Le modèle montre que le principe de filtration par des mousses en polyuréthane est essentiellement inertiel et que la pénétration des particules en fonction de leur diamètre aérodynamique permet d'atteindre des efficacités proches des efficacités conventionnelles de pénétration dans les voies respiratoires (Fig. 3)

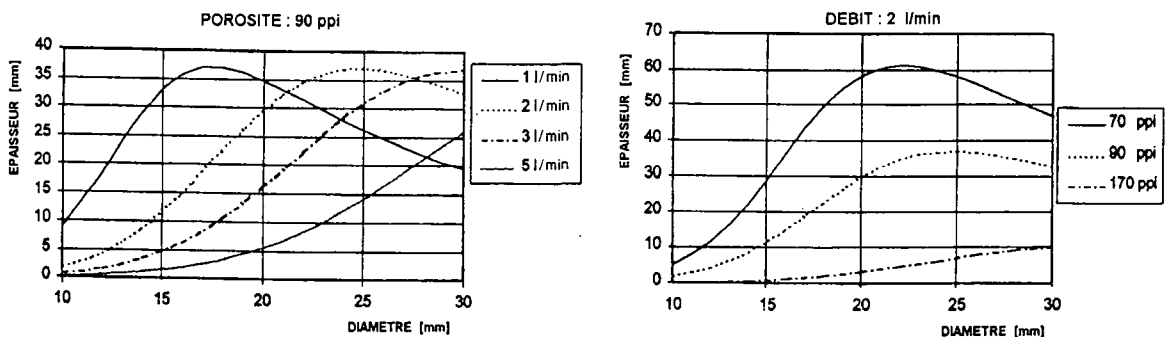


Fig. 3 Dimensions de modules de mousse permettant d'obtenir une efficacité de pénétration proche de la convention alvéolaire en utilisant différentes valeurs de porosité et de débit.

Les parties ascendantes des courbes du modèle dans la figure 3 représentent la région où le principe de filtration est essentiellement inertiel (vitesse élevée). La partie descendante est due à la sédimentation.

Le modèle a été utilisé afin de sélectionner les modules de mousse susceptibles d'équiper les échantillonneurs de l'aérosol inhalable afin de sélectionner la fraction thoracique et alvéolaire. Les échantillonneurs inhalables destinés à être équipés de sélecteurs thoracique et alvéolaire sont représentés dans la figure 4 a,b.

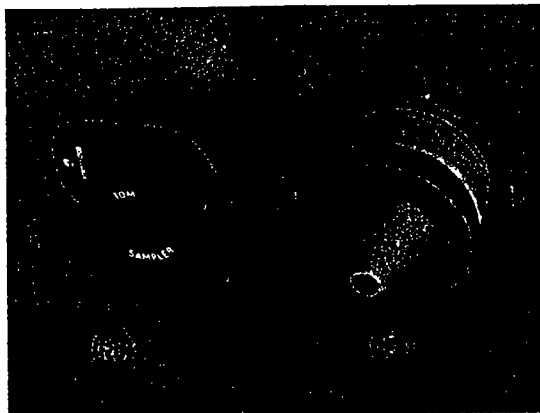


Fig. 4 (a) IOM sampler (GB), débit : 2.0 l/min
(b) PGP sampler (D), débit : 3.5 l/min

Les prototypes des mêmes échantillonneurs avec leurs sélecteurs à mousse sont représentés en vue éclatée dans la figure 5.

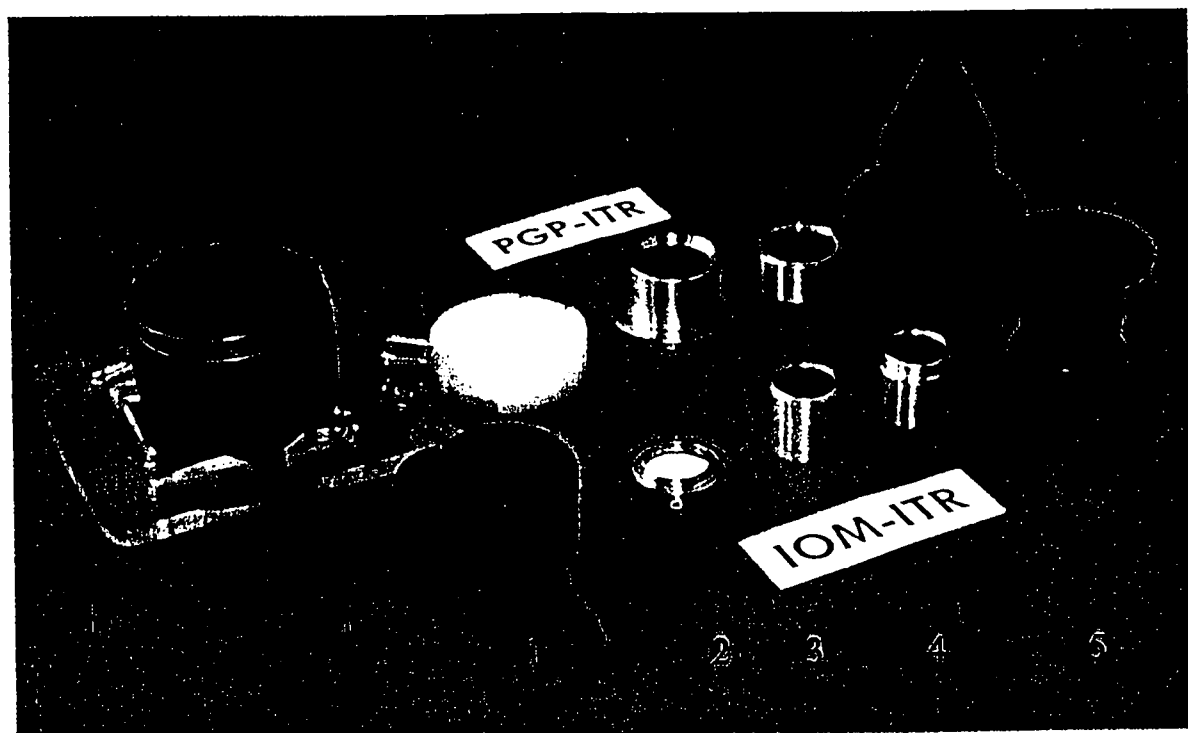


Fig. 5 Prototypes des deux échantillonneurs équipés de leurs modules de sélection de la fraction thoracique et alvéolaire d'aérosol [6]. 1 - Corps de l'appareil, 2 - Cassette porte-filtre, 3 - Sélecteur thoracique, 4 - Sélecteur alvéolaire, 5 - Embout avec l'orifice d'aspiration.

Résultats

Les efficacités de sélection des échantillonneurs équipés des modules sélectifs ont été mesurées dans un tunnel aéraulique à génération d'aérosol par la méthode décrite ailleurs [7] et comparées aux courbes conventionnelles de pénétration des particules dans les voies respiratoires. Un aérosol polydispersé de micro-sphères de verre a été utilisé comme aérosol expérimental. La vitesse d'écoulement dans le tunnel a été proche de l'air calme (0.15 m.s^{-1}). Les résultats indiquent des efficacités proches de celles qui étaient attendues, cependant certains ajustements de la géométrie des modules sélectifs ont été effectués par la suite [8]. Les dimensions et les porosités des modules finalisés sont indiquées dans le Tableau 1 pour les deux échantillonneurs et pour les deux fractions conventionnelles d'aérosol liées à la santé :

Tableau 1 Dimensions et porosités des modules de mousse utilisés comme sélecteurs de la fraction thoracique ou alvéolaire dans des échantillonneurs IOM et PGP sampler, et valeurs expérimentales des diamètres aérodynamiques de particules ($d_{50 \text{ exp.}}$) pour une efficacité d'échantillonnage égale à 50 % (diamètre de coupure).

	Sélecteur de la fraction Thoracique	Sélecteur de la fraction Alvéolaire
Porosité de la mousse	45 ppi, $d_f = 158.59 \pm 4.76 \mu\text{m}$ $d_c = 1634 \pm 96 \mu\text{m}$	90ppi, $d_f = 47.13 \pm 1.17 \mu\text{m}$ $d_c = 476 \pm 36 \mu\text{m}$
Diamètre de coupure d_{50} attendu pour une efficacité de 50 %	$d_{50} = 11.0 \mu\text{m}$	$d_{50} = 4.3 \mu\text{m}$
Module sélecteur pour IOM sampler, 2.0 l/min	D = 15 mm ; L = 14 mm $d_{50 \text{ exp.}} = 12.33 \mu\text{m}$	D = 15 mm ; L = 16 mm $d_{50 \text{ exp.}} = 5.16 \mu\text{m}$
Module sélecteur pour PGP sampler, 3.5 l/min	D = 20 mm ; L = 9 mm $d_{50 \text{ exp.}} = 10.58 \mu\text{m}$	D = 20 mm ; L = 16 mm $d_{50 \text{ exp.}} = 4.84 \mu\text{m}$

Les valeurs expérimentales du diamètre aérodynamique de coupure ($d_{50 \text{ exp.}}$) indiquées dans le Tableau 1 peuvent être comparées aux valeurs attendues de ce diamètre (d_{50}) pour la fraction thoracique et pour la fraction alvéolaire, qui sont également reportées dans le même Tableau 1.

Les efficacités d'échantillonnage en fonction de la taille des particules sont représentées dans la figure 6.

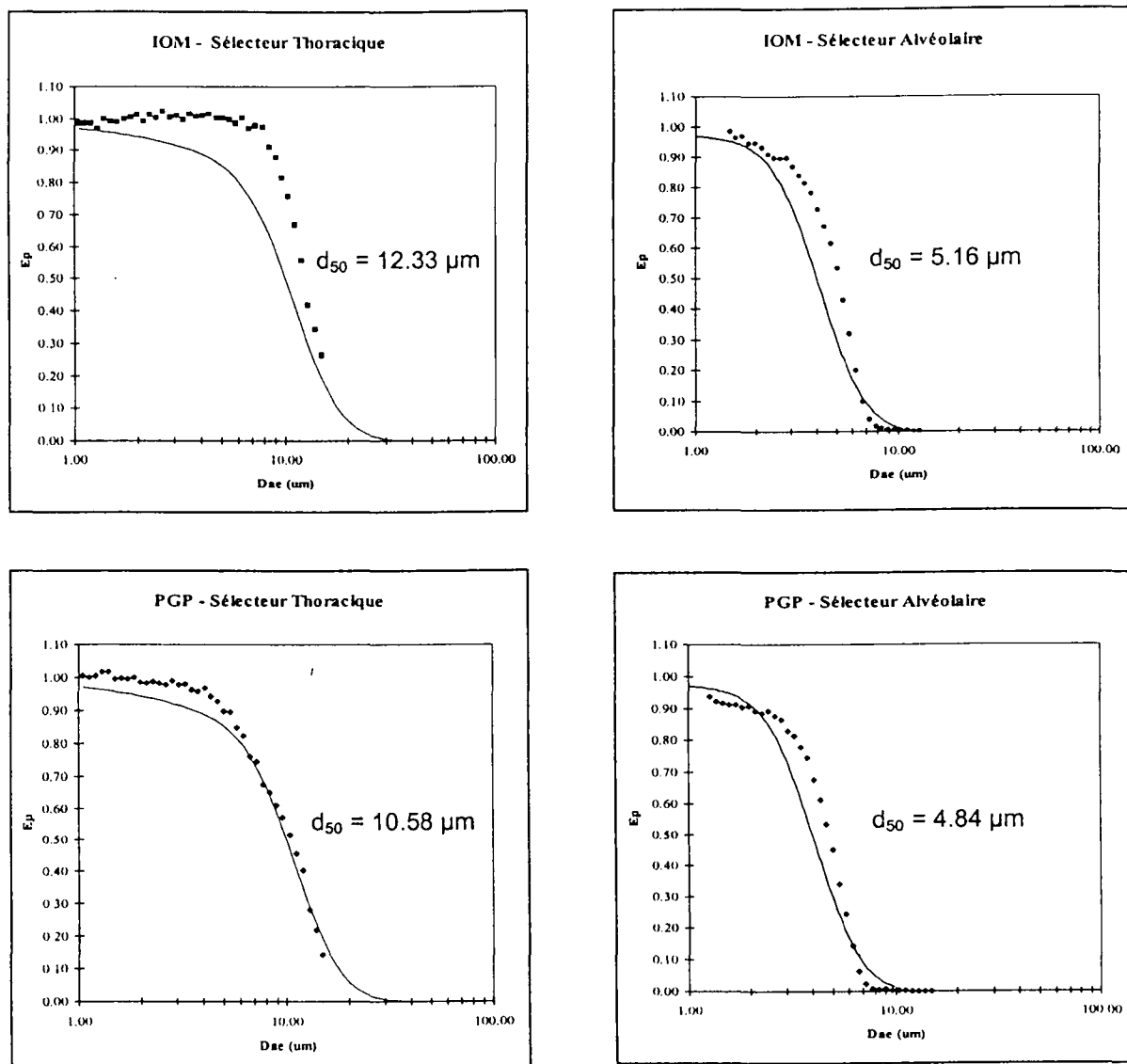


Fig. 6 Efficacité expérimentale d'échantillonnage des échantillonneurs IOM et PGP munis de sélecteurs thoracique ou alvéolaire en fonction du diamètre aérodynamique des particules. En ligne continue sont représentées les courbes conventionnelles CEN-ISO [9, 10].

Conclusion

En théorie, l'efficacité d'échantillonnage d'un échantillonneur d'aérosol doit suivre le plus fidèlement possible une courbe conventionnelle de pénétration donnée. Cette condition est relativement bien satisfaite dans le cas de l'appareil PGP surtout pour la fraction thoracique. Dans le cas de l'échantillonneur IOM, l'efficacité expérimentale est légèrement supérieure à la convention pour les deux fractions. La construction de cet appareil ne permettant plus de modifier la géométrie de modules de mousse, seule la modification de sa porosité permettrait d'approcher l'efficacité expérimentale de l'efficacité conventionnelle.

Références bibliographiques

- [1] Kenny, L.C., Aitken, R., Chalmers, C., Fabriès, J.F., Gonzalez-Fernandez, E., Kromhout, H., Lidén, G., Mark, D., Riediger, G., Prodi, V. (1997) A collaborative European study of personal inhalable aerosol sampler performance.
Annals of Occupational Hygiene **41**, 135-153.
- [2] Brown, R.C. (1980) Porous foam size selectors for respirable dust samplers.
Journal of Aerosol Science, **11**, 151-159.
- [3] Gibson, H., Vincent, J.H. (1981) The penetration of dust through porous foam filter media.
Annals of Occupational Hygiene, **24**, 205-215.
- [4] Kenny, L.C., R.J. Aitken, P. Görner (1999) A design model for porous foam aerosol samplers.
18 annual AAAR conference, 11 - 15 October 1999, Tacoma, Washington.
- [5] Kenny, L.C., R.J. Aitken, G. Beaumont, P. Görner (2001) Investigation and application of a model for porous foam aerosol penetration.
Journal of Aerosol Science, **32**, 271-285
- [6] Moehlmann, C., Aitken, R.J., Kenny, L.C., Görner, P., Vu Duc, T., Zambelli, G. (2001) Size selective personal air sampling : A new approach using porous foams.
Inhaled Particles, 2 - 6 September 2001, Cambridge.
- [7] Fabriès, J.-F., Görner, P., Kauffer, E., Wrobel, R., Vigneron, J.C. (1998) Personal thoracic CIP-T sampler and its static version CATHIA-T.
Annals of Occupational Hygiene, **42**, 453-465.
- [8] Görner, P., Wrobel, R., Fabriès, J.-F., Aitken, R.J., Kenny, L.C., Moehlmann, C. (2001) Measurement of sampling efficiency of porous foam aerosol sampler prototypes.
Journal of Aerosol Science, **32**, Suppl.1, 1063-1064.
- [9] CEN EN 481 (1993) Workplace atmospheres : Specification for conventions for measurement of suspended matter in workplace atmospheres.
Comité Européen de Norm. lisation, Brussels.
- [10] ISO IS 7708 (1995) Air quality - Particle size fractions definitions for the health-related sampling.
International Standards Organization, Geneva.

DEVELOPPEMENT D'UN OUTIL POUR L'EVALUATION IN SITU DES PERFORMANCES DES ECHANTILLONNEURS INDIVIDUELS D'AEROSOLS.

O. Witschger (1), D. Mark (2), R.J. Aitken (3), G. Beaumont (3),
G. Lidén (4), W. Koch (5), H. Komhout (6)

(1) Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols et du Confinement, IPSN/DPEA/SERAC,
CEA / Saclay, Bat 389, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

(2) Health and Safety Laboratory, Broad Lane, Sheffield, S3 7HQ, UK.

(3) Institute of Occupational Medicine, 8 Roxburgh Place, Edinburgh, EH8 9SU, UK.

(4) National Institute for Working Life, Programme of Workplace Air, S-171 84 Solna, Sweden.

(5) Fraunhofer Institut für Toxikologie und Aerosolforschung (FHG), Nikolai-Fuchs-Str.1,
D30625 Hannover, Germany.

(6) Environmental and Occupational Health Group, Department of Environmental Sciences,
PO Box 238, 6700 AE Wageningen, The Netherlands.

TITLE

Development of a novel calibration tool for workplace aerosol samplers.

ABSTRACT

The current method of testing the sampling performance of personal samplers for workplace inhalable aerosols involves the use of laboratory-based facilities (such as wind tunnels and calm-air chambers) in which idealised conditions such as uniform airflow and uniform aerosol concentration are employed. In order to ensure that the performance testing is relevant to real workplace conditions, it is necessary to carry out testing under actual workplace conditions. For this task, a reference instrument is required to provide the standard against which the candidate sampler is compared and calibrated. This paper reports the progress that has been made in the development, design and testing of such a portable novel calibration tool (called CALTOOL). The performance of the CALTOOL has been evaluated in different wind conditions and for a range of particle sizes from 7 to 90 μm . Results show the usefulness of the CALTOOL.

RESUME

Les méthodes d'évaluation des performances des échantillonneurs individuels de la fraction inhalable d'un aérosol utilisent généralement des installations de laboratoire spécifiques où les conditions expérimentales auxquelles sont exposés les préleveurs correspondent à un écoulement d'air uniforme et un aérosol d'essai homogène du point de vue de sa granulométrie et de sa concentration, peu représentatif des conditions réelles rencontrées à un poste de travail. Notre étude, réalisée dans le cadre d'un contrat européen, vise donc le développement d'un outil, facile d'emploi, permettant d'évaluer in situ les performances de préleveurs individuels de la fraction inhalable. L'outil développé, dénommé CALTOOL (CALibration TOOL) est en fait un échantillonneur dont la géométrie est basée sur un torse, des épaules et une tête humaine. Les échantillonneurs individuels à évaluer sont positionnés sur le torse simplifié de CALTOOL et leurs résultats de concentration comparés à ceux mesurés par l'orifice de référence que constitue la bouche. Les expériences, conduites en laboratoire sur CALTOOL, ont permis de déterminer que le débit d'aspiration de l'orifice de référence devait être constant et égal à 20 l/min pour que son efficacité suive correctement la convention-cible inhalable. Par ailleurs, des mesures comparatives d'efficacité effectuées sur CALTOOL et sur un mannequin anthropométrique référencé n'ont pas montré de différences significatives. Enfin, des premiers résultats sur des performances d'échantillonneurs individuels ont été obtenus sur différents postes de travail. Ils montrent clairement l'utilité de l'outil développé.

INTRODUCTION

Les méthodes d'évaluation des performances des échantillonneurs individuels de la fraction inhalable d'un aérosol utilisent généralement des installations de laboratoire spécifiques comme des tunnels aérauliques ou bien encore des chambres dites en « air calme ». Ainsi, les conditions expérimentales auxquelles sont exposées les préleveurs correspondent à un écoulement d'air uniforme et un aérosol d'essai homogène du point de vue de sa granulométrie et de sa concentration (prEN 13205, 1998). Il est clair que ces conditions expérimentales ne correspondent pas toujours aux conditions réelles rencontrées in situ, c'est à dire sur un poste de travail. En effet, il existe de nombreuses situations où le travailleur se trouve fréquemment à proximité d'une source ponctuelle de contamination et dans un environnement aéraulique qui peut être caractérisé par des écoulements d'air instables et inhomogènes.

Notre étude, réalisée dans le cadre d'un contrat européen, vise le développement d'un outil permettant d'évaluer in situ (sur le poste de travail) les performances de préleveurs individuels de la fraction inhalable d'un aérosol ambiant. Compte tenu des difficultés habituellement rencontrées lors des mesures faites sur un poste de travail, une caractéristique importante de cet outil doit être sa facilité d'emploi. Cet article présente l'état d'avancement des travaux à ce jour.

CONCEPTION ET DESCRIPTION DE CALTOOL

La performance d'un préleveur individuel est caractérisée par l'efficacité d'échantillonnage, fonction notamment du diamètre aérodynamique des particules, et qui exprime le rapport de la concentration échantillonnée par le dispositif à étudier à la concentration de référence. Cette dernière étant la concentration de l'aérosol représentatif de la zone où se trouvent les préleveurs individuels à étudier. Dans les études conduites en laboratoire avec des mannequins de taille humaine, cette mesure est effectuée à l'aide de sondes à bords minces suivant différentes méthodes (Aitken *et al.*, 1999 ; Kenny *et al.*, 1997).

Sur un poste de travail, où il est très difficile de déterminer la concentration réelle à laquelle un préleveur individuel serait exposé, la performance d'un préleveur peut être définie par rapport à la concentration en aérosol qui pénètre la bouche d'un mannequin pourvu que l'efficacité de cette bouche soit équivalente à celle qui caractérise en moyenne la bouche d'un travailleur. Cette méthode est celle utilisée dans notre situation.

L'écoulement de l'air au voisinage d'un préleveur individuel est influencé par la présence de l'individu qui le porte, comme l'illustre la Figure 1. Cependant, dans une étude récente Witschger *et al.* (1998) ont démontré qu'il n'était pas nécessaire de reproduire parfaitement le torse humain, et qu'un torse de forme simplifiée pouvait suffire pour l'évaluation des performances d'échantillonnage de préleveurs individuels.

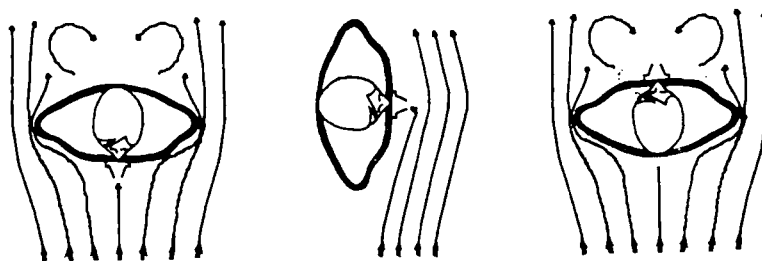


Figure 1 : Illustration des différents écoulements d'air au voisinage d'un torse humain et d'un préleveur individuel d'aérosols pour chacune des orientations par rapport au vent (d'après Witschger *et al.*, 1998).

Sur cette approche de simplification des formes (et donc de maîtrise des coûts de réalisation), un outil dénommé CALTOOL (CALibration TOOL) a été conçu et réalisé. Cet outil, présenté sur la Figure 2, est constitué de trois parties : une tête, un corps et un caisson à la base. La tête simplifiée, amovible et de forme cylindrique (diamètre 175 mm ; hauteur 210 mm) dispose d'un orifice circulaire (diamètre 15 mm) simulant la bouche d'un individu. Cet orifice est directement connecté à un porte filtre de diamètre 47 mm. L'aérosol échantillonné à l'aide de ce dispositif constitue le prélèvement de référence de CALTOOL. Le corps est constitué d'une section ovale (diamètre majeur 420 mm ; diamètre mineur 240 mm) de hauteur 540 mm. La transition entre le corps et la tête simule l'arrondi des épaules. Ce

corps est monté sur un support télescopique qui permet de simuler différentes hauteurs (environ 1,2 m pour position assise à 1,8 m pour une position debout).

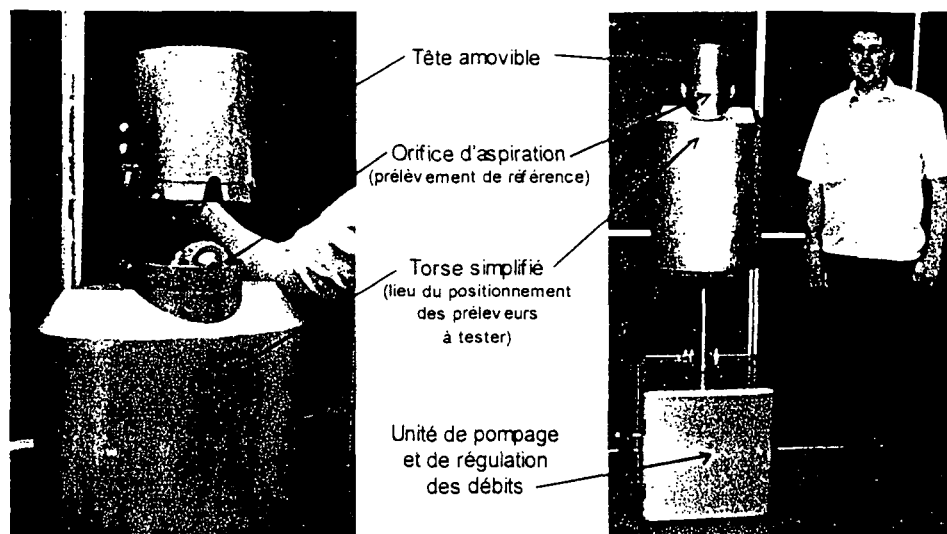


Figure 2 : Photographies décrivant l'outil CALTOOL.

Le caisson à la base de CALTOOL comprends une pompe dont la capacité assure d'une part le débit d'aspiration de la bouche (20 l/min), d'autre part une série de débits caractéristiques de préleveurs individuels (5 possibles dans la gamme 2 à 5 l/min). L'unité de pompage est directement connectée à une rampe d'orifices critiques pour la régulation des débits. Enfin, le caisson dispose de grosses roues permettant un déplacement aisé.

Les préleveurs individuels à évaluer sont positionnés sur le torse de CALTOOL de façon analogue au positionnement sur un opérateur. La performance est directement déterminée en calculant la rapport entre la concentration mesurée par le préleveur à celle mesurée par le prélèvement de référence au niveau de la bouche. CALTOOL peut être également utilisé pour effectuer des études comparatives entre préleveurs individuels montés sur un même torse. Dans ce cas, les concentrations mesurées par les préleveurs utilisés sont directement comparées.

RESULTATS ET DISCUSSION

L'évaluation des performances de CALTOOL a été conduite essentiellement dans deux laboratoires : l'IOM en Angleterre et le NIWL en Suède. Les essais réalisés avaient pour objectifs :

- la caractérisation de la respiration de CALTOOL,
- la comparaison de la mesure de référence CALTOOL à une mesure faite avec un mannequin référencé,
- l'évaluation de l'inhalabilité de CALTOOL en « air en mouvement »,
- l'évaluation de l'inhalabilité de CALTOOL en « air calme ».

Les différentes méthodes expérimentales utilisées lors des essais ont fait l'objet de publications antérieures (Aitken *et al.*, 1999 ; Kenny *et al.* 1999) et ne sont pas décrites ici.

Caractérisation de la respiration simulée

Une première décision importante relative à la conception de CALTOOL concernait le mode de respiration simulée à adopter pour l'orifice de référence (bouche) : respiration cyclique (en terme de débit et de fréquence) ou bien respiration à débit constant ? Des essais en laboratoire ont été effectués pour comparer les efficacités mesurées en mode « aspiration continue » avec un débit de 20 l/min et en mode « aspiration cyclique » avec un débit de 20 l/min et une fréquence respiratoire de 20 inspirations/min, représentatif d'une respiration moyenne en exercice léger (CIPR, 1994). Ces

essais ont été réalisés pour deux environnements aérauliques distincts (air en mouvement à 3 m/s et air calme) et trois diamètres aérodynamiques de particules (6, 34 et 90 μm). Les résultats sont présentés sur la Figure 3 avec leur intervalle de confiance à 95%. Une analyse statistique effectuée sur l'ensemble des points ne montre pas de différence statistiquement significative entre les deux modes de respiration. Ainsi, le mode « aspiration continue » pour simuler la respiration de CALTOOL a été adopté, de plus il est plus facile à mettre en œuvre et à gérer.

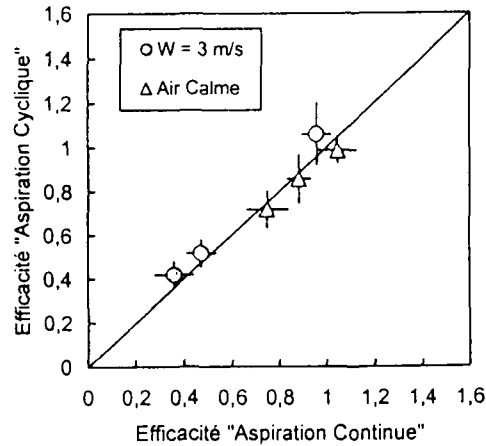


Figure 3 : Comparaison des efficacités moyennes de l'orifice de référence de CALTOOL en mode de d'aspiration cyclique (20l/min à 20 inspirations/min.) et en mode d'aspiration continue (20 l/min). Résultats présentés avec leur intervalle de confiance à 95%.

Comparaison de CALTOOL à un mannequin référencé

Une deuxième série d'essais a été conduite dans l'objectif de comparé l'efficacité de l'orifice de référence de CALTOOL avec celle de l'orifice de référence d'un mannequin aux dimensions anthropométriques et qui est référencé. Le mannequin utilisé dans ces essais est celui référencé « Little Anne » à l'IOM, qui a déjà été utilisé lors de différentes études par le passé (Aitken *et al.*, 1999, Kenny *et al.*, 1997). La Figure 4 montre la comparaison entre les efficacités mesurées avec CALTOOL et avec le mannequin de l'IOM pour des conditions aérauliques jugées défavorables (air en mouvement à 3 m/s) et trois diamètres aérodynamiques de particules (6, 34 et 90 μm). Les essais ont été réalisés suivant la méthode habituellement mise en œuvre à savoir le mannequin en rotation constante telle que cela avait été fait lors d'une étude européenne récente par Kenny *et al.* (1997). Une analyse statistique effectuée sur l'ensemble des points ne montre pas de différence statistiquement significative entre les deux mannequins. Ce résultat valide ainsi la conception de forme simplifiée de CALTOOL.

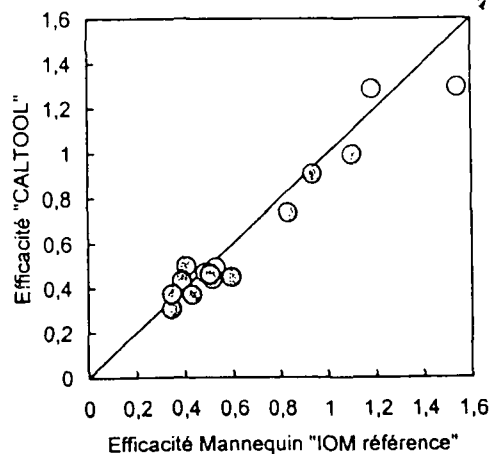


Figure 4 : Comparaison entre les efficacités mesurées avec l'orifice de référence de CALTOOL et d'un mannequin réaliste (Little Anne, IOM).

Inhabilité en « air en mouvement »

Dans un troisième temps, il était important de comparer l'efficacité de l'orifice de référence de CALTOOL vis à vis de la convention cible décrivant la fraction inhalable d'un aérosol (EN 481, 1993). Rappelons que cette convention s'applique pour des environnements caractérisés par des vitesses de l'air comprises entre environ 0,5 m/s et jusqu'à 4 m/s. La Figure 5 compare les résultats obtenus pour une vitesse de l'air de 3 m/s et trois diamètres de particules. On observe que l'orifice de référence de CALTOOL sous estime la convention inhalable pour les diamètres les plus importants. Ce résultat doit être cependant confirmé par de nouveaux essais, actuellement en cours, notamment pour des vitesses d'air différentes.

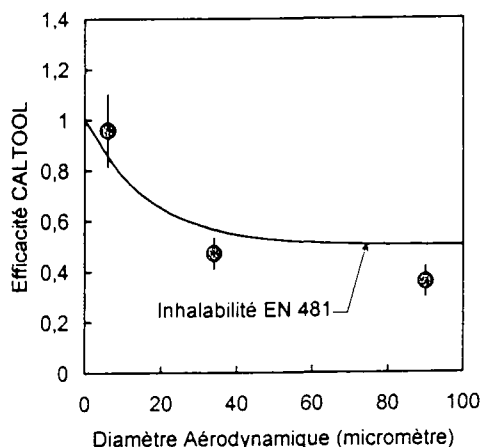


Figure 5 : Efficacités de CALTOOL vis-à-vis de la convention cible EN 481 décrivant la fraction inhalable d'un aérosol ambiant. Données présentées avec leur intervalle de confiance à 95%.

Inhabilité en « air calme »

Un point important de l'étude a concerné l'évaluation des performances de l'orifice de référence de CALTOOL dans un environnement en « air calme », c'est à dire caractérisé par des vitesses de l'air plutôt faibles, ce qui est représentatif d'une grande majorité des environnements intérieurs de travail (Baldwin et Maynard, 1998). La Figure 6 montre les résultats des efficacités en fonction du diamètre aérodynamique des particules qui ont été mesurées par deux instituts différents (l'IOM en Angleterre et le NIWL en Suède) mais suivant une méthodologie similaire, dans une chambre d'air calme de petit volume (Kenny *et al.*, 1999). L'analyse des résultats nous suggère que l'efficacité de CALTOOL peut être décrite par une fonction linéaire du diamètre aérodynamique. Cette courbe est exposée sur la Figure 6 en pointillée.

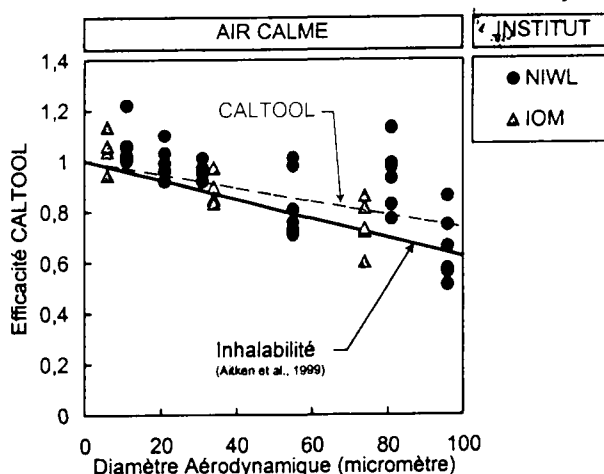


Figure 6 : Efficacités de CALTOOL en environnement d'air calme (vitesses de l'air inférieures à 10 cm/s) et comparaison par rapport à la courbe proposée par Aitken *et al.* (1999) décrivant l'inhalabilité en air calme.

On s'aperçoit que la courbe décrivant l'efficacité de CALTOOL s'écarte de celle décrivant l'inhalabilité en « air calme » proposée par Aitken *et al.* (1999) lorsque le diamètre des particules augmente. A partir de la courbe expérimentale d'efficacité de CALTOOL, nous avons fait une évaluation du biais de la concentration de l'aérosol échantillonné par CALTOOL relatif à la concentration idéale que CALTOOL devrait échantillonner, i.e. la concentration correspondant à la fraction inhalable en air calme. Ce biais Δ est défini par la relation suivante :

$$\Delta = \frac{C_{CALTOOL} - C_{INH,CALM}}{C_{INH,CALM}} \times 100 \quad (\%)$$

avec

$$C_{CALTOOL} = \int_{d_{min}}^{d_{max}} F(DAMM, ETG, Dd) E_{CALTOOL}(Dp) dDp$$

$$C_{INH,CALM} = \int_{d_{min}}^{d_{max}} F(DAMM, ETG, Dd) I_{CALM AIR}(Dp) dDp$$

où $F(DAMM, ETG, Dd)$, $I_{CALM AIR}(Dp)$ et $E_{CALTOOL}(Dp)$ désignent respectivement la fonction de distribution granulométrique de l'aérosol que l'on caractérise par son diamètre aérodynamique médian en masse (*DAMM*) et son écart type géométrique (*ETG*) ; la fonction décrivant l'inhalabilité en air calme ; la fonction décrivant l'efficacité de l'orifice de référence de CALTOOL (déterminée à partir des résultats expérimentaux).

La Figure 7 montre les résultats des calculs de biais effectués en fonction des deux paramètres que sont le *DAMM* et l'*ETG*. On voit que le biais Δ reste faible puisqu'il est inférieur à environ 6 % pour des diamètres médians inférieurs à environ 30 μm et ce, quelque soit l'écart type géométrique de la distribution granulométrique. Pour des diamètres médians inférieurs à 15 μm , le biais est même inférieur à 3 %. Ces résultats montrent clairement que CALTOOL prélève de façon représentative et satisfaisante la fraction inhalable d'un aérosol telle qu'elle a été définie récemment par Aitken *et al.* (1999) pour un environnement d'air calme.

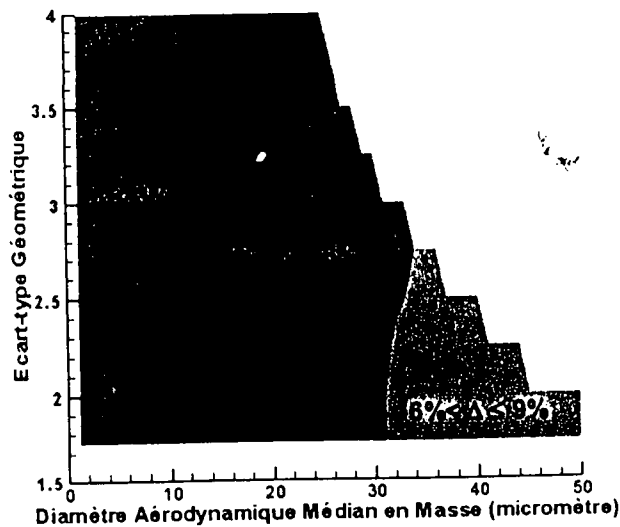


Figure 7 : Carte de biais de l'orifice de référence de CALTOOL vis-à-vis de l'inhalabilité en air calme décrite par Aitken *et al.*, 1999.

Essais préliminaires in situ

En parallèle aux expériences en laboratoire, une première campagne d'essais sur le terrain a été conduite par le FHG en Allemagne. Ces essais ont été réalisés dans différents environnements de travail (menuiserie, sucrerie, aciérie) caractérisés par différents aérosols en terme de granulométrie, de concentration, de type de particules. Outre la faisabilité d'effectuer des mesures sur site à l'aide de CALTOOL, les résultats obtenus sur les préleveurs choisis sont en bon accord avec les performances connues à ce jour. L'ensemble de ces résultats seront présentés dans un article futur.

CONCLUSION ET PERSPECTIVE

Un outil destiné à évaluer les performances d'échantillonnage de préleveurs individuels d'aérosol a été conçu et réalisé. L'outil développé, dénommé CALTOOL (CALibration TOOL) est un échantillonneur dont la géométrie est basée sur un torse, des épaules et une tête humaine. Afin de simuler correctement l'influence du corps humain sur un écoulement d'air, les dimensions (hauteur, largeur du torse, diamètre de la tête ...) ont été respectées mais les formes simplifiées. L'orifice de référence d'aspiration de CALTOOL est localisé au niveau de la bouche et constitué d'un orifice circulaire de 15 mm en aspiration constante à 20 l/min. Le tout est monté sur un ensemble mobile constitué d'un support télescopique et d'une unité contenant une pompe ainsi qu'un système de régulation des débits. Les préleveurs individuels à évaluer sont positionnés sur le torse simplifié de CALTOOL et leurs résultats de concentration comparés à ceux mesurés par l'orifice de référence.

Les essais conduits dans différents laboratoires ont notamment montré que CALTOOL prélevait de façon représentative la fraction inhalable d'un aérosol en environnement d'air calme telle qu'elle a été définie par Aitken *et al.* (1999). Enfin, des premiers résultats sur des performances d'échantillonneurs individuels ont été obtenus sur différents postes de travail. Ils montrent l'utilité de l'outil développé.

Les essais actuellement en cours ont pour objectifs d'évaluer l'adéquation de CALTOOL à mesurer la fraction conventionnelle inhalable définie par la norme EN 481 pour l'air en mouvement. Par ailleurs, des campagnes de terrain ont débuté. Elles concernent différents sites : industrie du cycle du combustible, industrie du caoutchouc, ateliers de mécanique, menuiseries/charpenteries, le bâtiment, boulangeries industrielles, déchetteries industrielles, etc. L'ensemble de ces résultats devrait clairement décrire les performances de CALTOOL, et ainsi promouvoir son utilisation auprès des personnes confrontées à l'évaluation des performances de préleveurs d'aérosols dans les laboratoires de recherche, des utilisateurs que sont les hygiénistes ou bien encore des responsables techniques dans les sociétés qui commercialisent des préleveurs.

RÉFÉRENCES

- Aitken, R.J., Baldwin, P.E.J., Beaumont, G.C., Kenny, L.C., Maynard, A.D. (1999) Aerosol inhalability in low air movement environments. *J. Aerosol Sci.*, 30, 613-626.
- Baldwin, P.E.J., Maynard, A.D. (1998) A survey of wind speeds in indoor workplaces. *Ann. Occup. Hyg.*, 42, 5, 303-313.
- CEN (1999) Workplace Atmospheres – Assessment of the Performance of Instruments for Measurement of Airborne Particle Concentrations. *CEN draft standard prEN13205*, CEN, Bruxelles.
- CIPR (1994) Human Respiratory tract model for radiological protection. *Commission Internationale de Protection Radiologique, publication 66*, Elsevier Science Ltd, Oxford.
- EN 481 (1993) Workplace Atmospheres - Size fraction definitions for measurement of airborne particles in the workplace. *CEN, Bruxelles*.
- Kenny, L.C., Aitken, R.J., Chalmers, C., Fabriès, J.F., Gonzalez-Fernandez, E., Kromhout, H., Lidén, G., Mark, D., Riediger, D., Prodi, V. (1997) A collaborative european study of personal inhalable aerosol sampler performance. *Ann. Occup. Hyg.*, 41, 2, 135-153.
- Kenny, L.C., Aitken, R.J., Baldwin, P.E.J., Beaumont, G.C., Maynard, A.D. (1999) The sampling efficiency of personal inhalable aerosol samplers in low air movement environments. *J. Aerosol Sci.*, 30, 5, 627-638.
- PrEN 13205 (1998) Atmosphères des lieux de travail – Evaluation des performances des instruments de mesurage des concentrations d'aérosols. *CEN, Bruxelles*.
- Witschger, O., Willeke, K., Grinshpun, S., Aizenberg, V., Smith, J., Baron, P. (1998) Simplified method for testing personal inhalable aerosol samplers. *J. Aerosol Sci.*, 29, 855-874.

PERFORMANCE D'ECHANTILLONNAGE DE PRELEVEURS INDIVIDUELS D'AEROSOLS EN ENVIRONNEMENT D'AIR CALME ET A PROXIMITE D'UNE SOURCE DE CONTAMINATION.

O. Witschger, S. Fauvel, G. Basso

Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols et du Confinement,
IPSN/DPEA/SERAC, CEA/Saclay, Bat 389, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

et

S. Grinshpun

Aerosol Research and Exposure Assessment Laboratory,
University of Cincinnati, Cincinnati OH 45267-0056, USA.

TITLE

Performance of Dust Samplers Operating in Slow Air Movement and Near the Contamination Source.

ABSTRACT

Evidence now suggests that the actual air velocities found in indoor workplaces rarely exceed 0,1 cm/s., i.e. they are characterised by either calm or moving very slowly. Other factors need to deserve particular attention as the close location of the source relative to the worker. The work has focused on two aspects, the development of a method for evaluation of the sampling performances of dust samplers in very slow moving air and near a contamination source, and the subsequent measurement of these performances of three existing and widely used personal inhalable samplers. The method is based on a rotating system capable of generating an homogeneous aerosol distribution whilst maintaining very slowly air movement. One important aspect of the work was the definition and validation of the measurement of the reference concentration. The three personal samplers that have been evaluated were the 25 mm closed face cassette, the IOM Inhalable sampler and the Button Aerosol Sampler. Sampling efficiencies were measured as isolated and for six particle aerodynamic sizes (7, 14, 29, 39, 61 and 77 μm). The sampling efficiency 25 mm cassette rapidly decreases to be less than 10% at about 30 μm . The sampling IOM sampler shows a surprising tendency, the efficiency being not monotonic and in the range 100 to 180%. The Button Aerosol Sampler closely follows the aerosol inhalability in low air movement suggested by Aitken *et al.* (1999). The new developed method is expected to be suitable for the performance evaluation of dust personal and static samplers

RESUME

Une analyse des conditions d'exposition aux aérosols habituellement rencontrées sur un lieu de travail intérieur montre que dans une grande majorité des situations rencontrées l'environnement aéraulique au voisinage de la personne se caractérise par des vitesses d'air plutôt faibles, typiquement de l'ordre du cm/s. Une autre condition caractéristique d'un poste de travail intérieur est la faible distance entre la source de contamination et la personne qui lui fait généralement face.

Si les performances d'échantillonnage de certains préleveurs individuels sont connues dans un environnement d'air en mouvement, il n'existe pas à l'heure actuelle de données pour des conditions jugées représentatives d'un poste de travail à savoir : un environnement d'air calme et une proximité de la source de contamination. Une nouvelle méthodologie a été donc développée pour évaluer en laboratoire les performances d'échantillonnage de préleveurs d'aérosols dans ces conditions. Un protocole pour la mesure du prélèvement de référence dans cet environnement a été conçu et validé. Il permet de mesurer des efficacités pour des diamètres aérodynamiques de particules compris entre 7 μm et 77 μm . Les efficacités d'échantillonnage de trois préleveurs individuels d'aérosols (cassette 25 mm fermée à 1 l/min, bouton inhalable à 4 l/min et IOM inhalable à 2 l/min) ont été mesurées et les résultats confrontés aux courbes décrivant l'inhalabilité (air en mouvement et air calme). Une analyse en terme de biais a été faite à partir des résultats d'efficacité. Le préleveur bouton montre l'efficacité d'échantillonnage qui est la plus proche de la fraction totale de l'aérosol ambiant. L'ensemble des résultats obtenus dans cette étude montre clairement la nécessité de connaître au mieux les efficacités d'échantillonnage des préleveurs d'aérosols qui sont utilisés afin de pouvoir apporter les éléments de réponses indispensables à l'analyse des études d'inter comparaison faites sur les lieux de travail.

INTRODUCTION

L'évaluation de l'exposition individuelle à des substances nocives ou toxiques en suspension dans l'air à un poste de travail implique d'utiliser des méthodes particulières basées sur des techniques d'échantillonnage individuel. Parmi ces techniques, celles utilisées pour évaluer la fraction inhalable d'un aérosol posent des questions spécifiques car elles ont des performances qui sont généralement, de par leur conception, sensibles aux paramètres extérieurs que sont la vitesse de l'air et la granulométrie de l'aérosol.

Si l'on analyse les conditions d'une exposition aux aérosols, on s'aperçoit que dans une grande majorité des situations rencontrées l'environnement aérodynamique au voisinage de la personne se caractérise par des vitesses d'air plutôt faibles, typiquement de l'ordre du cm/s et restant largement inférieur à 50 cm/s (Baldwin et Maynard, 1998 ; Whicker *et al.*, 2000). Une autre condition caractéristique d'un poste de travail intérieur est la faible distance entre la source de contamination et la personne qui lui fait généralement face (Guffey *et al.*, 2001).

Il existe maintenant plusieurs préleveurs individuels destinés à mesurer la fraction inhalable d'un aérosol. Si les performances de ces derniers ont été étudiées pour des conditions d'air en mouvement, caractérisées par des vitesses d'air supérieur à 50 cm/s, on ne recense que très peu d'études réalisées pour des conditions d'air calme (Hinds, 1999). Toutefois, il n'existe pas, à l'heure actuelle, de données d'échantillonnage pour des conditions jugées représentatives d'un poste de travail à savoir : un environnement d'air calme et une proximité de la source de contamination.

Le premier objectif de cette étude est de concevoir et évaluer une nouvelle méthode pour mesurer les performances de préleveurs individuels simulant des conditions de faible vitesse de l'air et une proximité de la source de contamination. Le deuxième objectif est de mesurer à l'aide de cette nouvelle méthode les performances de trois préleveurs individuels d'aérosols habituellement utilisés pour mesurer la fraction inhalable.

METHODE EXPERIMENTALE

Dispositif expérimental

Deux importantes conditions étaient requises pour la conception du dispositif présenté sur la Figure 1 : le système de génération simulant la source de contamination devait assurer une bonne distribution spatiale de l'aérosol à une certaine distance de la source et ce, en maintenant des mouvements d'air très faibles (de l'ordre du cm/s).

Au centre du dispositif se trouve positionné le système de génération. Celui-ci est composé d'un générateur à brosse rotative (PALAS) qui permet de disperser des poudres choisies avec un débit ajustable. Par ailleurs ce générateur a une très grande stabilité en terme de concentration dispersée. Enfin, il a été sélectionné pour sa capacité à désagglomérer les poudres. L'aérosol dispersé par le PALAS est véhiculé au sein d'un tuyau jusqu'à un orifice de dispersion. Cet orifice est formé d'une petite grille bombée et percée d'une multitude de micro orifices de diamètre $\approx 500 \mu\text{m}$. Ce système assure ainsi une dispersion initiale horizontale de l'aérosol mais également suivant un angle relativement large ; on peut ainsi considérer en première approximation que la source simulée est localisée et diffuse. L'orifice de dispersion est rotation constante à 2,3 tours/min, assurant ainsi une bonne distribution spatiale de l'aérosol formé autour du système de génération.

Les orifices de captage des préleveurs à évaluer ainsi que le prélèvement de référence sont positionnés sur un cercle imaginaire situé à $H = 100 \text{ cm}$ au dessus du sol et centré sur l'axe de rotation du système de génération. Des essais préliminaires ont permis de déterminer la distance L ainsi que la hauteur H_0 pour que la zone de prélèvement soit d'une part caractérisée par une concentration en aérosol suffisante pour que la durée d'un essai soit limitée à environ 40 minutes, d'autre part définie par une distribution granulométrique représentative de celle de la poudre utilisée.

La régulation des débits d'air des préleveurs est assurée par des orifices critiques spécialement conçus pour notre étude, assurant ainsi une très bonne stabilité au cours d'un essai ainsi qu'une bonne connaissance des volumes d'air prélevés.

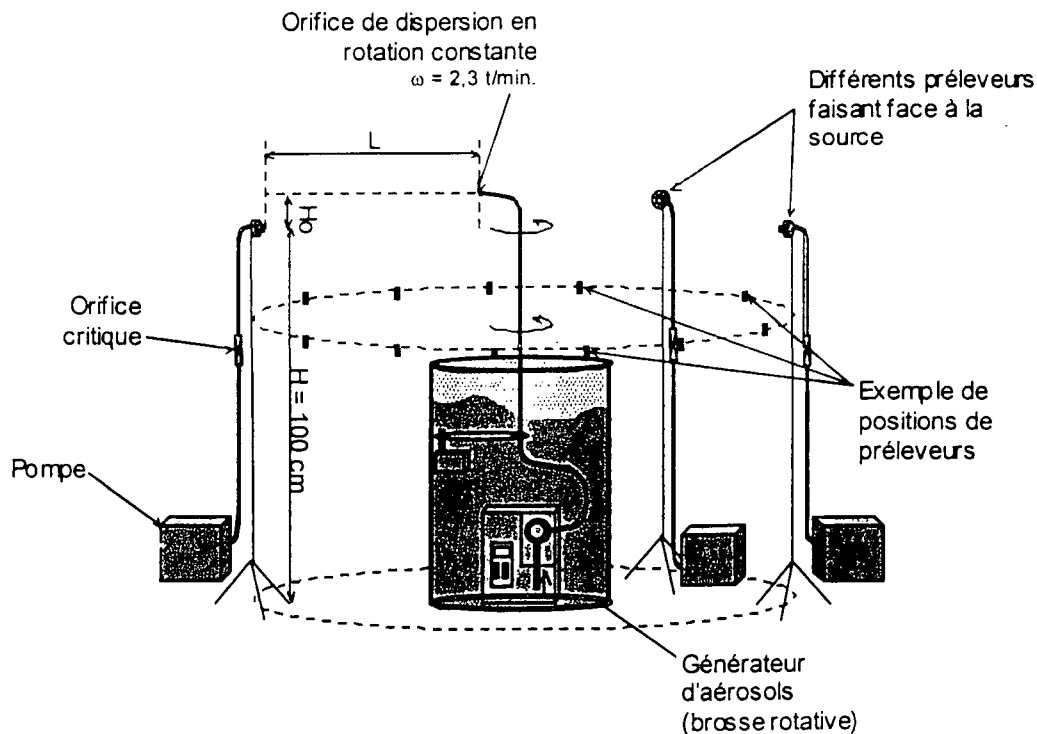


Figure 1 : Schéma du dispositif expérimental et illustration d'un essai.

Lors d'un essai, plusieurs préleveurs (entre 3 et 5 de chaque type) sont disposés le long du cercle imaginaire en parallèle à des préleveurs de référence.

Les préleveurs individuels sont évalués « isolés » par opposition à un positionnement sur un mannequin. Si l'utilisation d'un mannequin plus ou moins simplifié est nécessaire dans un environnement d'air en mouvement (car les écoulements sont modifiés à l'approche d'un torse et agissent sur l'efficacité d'échantillonnage), elle n'est pas indispensable dans un environnement d'air calme. Kenny *et al.* (1999) ont récemment montré que l'évaluation pouvait se faire avec ou sans mannequin, les résultats ne montrant aucune différence.

Prélèvement de référence

L'efficacité d'échantillonnage d'un préleveur est calculée à partir du rapport entre la concentration échantillonnée par le préleveur et la concentration de référence. Une attention particulière a été portée sur le développement du prélèvement de référence car pour un environnement d'air calme, il n'existe pas de méthode simple (Aitken *et al.*, 1999). La méthode que nous avons choisie est basée sur l'utilisation d'une sonde à bords minces positionnée horizontalement et dirigée vers le centre du dispositif expérimental (face à l'orifice de dispersion). Cette sonde est caractérisée par un orifice circulaire de diamètre intérieur 20 mm et aspirant à un débit de 10 l/min, correspondant à une vitesse d'aspiration moyenne de 53 cm/s. La longueur de la sonde est de 20 mm, l'aérosol étant collecté sur un filtre de diamètre 25 mm. La validation « théorique » de notre prélèvement de référence est basée sur deux points :

- Roger *et al.* (1999) a montré pour une sonde similaire mais positionnée verticalement et orientée vers le haut, que l'efficacité de captage était proche de 100% pour des diamètres aérodynamiques inférieurs à environ 50 μm lorsqu'elle était exposée à un aérosol en sédimentation dans un air calme.
- Les efficacités de captage de notre sonde calculées dans nos conditions expérimentales et pour des diamètres aérodynamiques compris entre 7 et 77 μm se situent dans les domaines d'acceptabilité des différents critères d'échantillonnage « représentatifs » dans l'air calme habituellement utilisés. Ces résultats sont reportés sur la Figure 2 en fonction de deux paramètres adimensionnels mQ et kQ caractéristiques respectivement de l'orifice (sa dimension, son débit d'aspiration) et de l'inertie des particules au voisinage de l'orifice.

Des essais spécifiques ont également été effectués pour valider « expérimentalement » notre méthode de prélèvement de référence. Ces essais sont basés sur l'effet du paramètre orientation de la sonde de référence lors d'un prélèvement en air calme. La comparaison entre les résultats des rapports des concentrations mesurées suivant les trois orientations (horizontale, dirigée vers le haut et dirigée vers le bas) et les résultats de calculs effectués à l'aide du modèle de Grinshpun *et al.* (1993) nous permet de conclure que notre référence telle que nous l'avons définie conduit bien à un prélèvement représentatif.

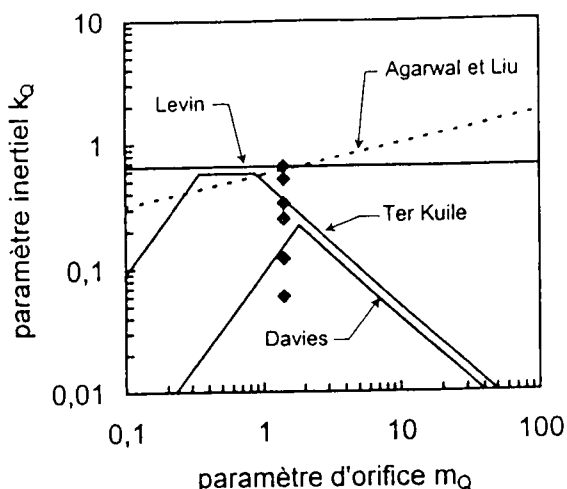


Figure 2 : Critères pour un échantillonnage représentatif dans l'air calme, et comparaison aux valeurs calculées pour la sonde de référence SBM dans nos conditions expérimentales.

Sur l'ensemble de nos essais, la concentration de référence est donc mesurée à l'aide de plusieurs sondes à bords minces qui sont orientées horizontalement et dirigées vers l'orifice de dispersion. La valeur de la concentration de référence prise pour calculer l'efficacité lors d'un essai résulte d'une moyenne sur 3 à 9 sondes suivant les essais réalisés.

Performance du système expérimental

Le choix des poudres utilisées (poudre d'alumine DURMAX) a été fait de manière à couvrir une gamme relativement large des diamètres aérodynamiques. Le Tableau 1 présente les caractéristiques des poudres utilisées ainsi que celles des aérosols collectés à l'aide de nos sondes de références. Les analyses ont été effectuées à l'aide d'un Coulter Multisizer II. Les distributions granulométriques sont caractérisées par le diamètre aérodynamique médian en masse (DAMM) et l'écart type géométrique (ETG).

Tableau 1 : Caractéristiques des poudres d'alumines, des aérosols collectés à l'aide de la sonde de référence SBM et des distances à l'orifice de dispersion (L) qui ont été retenues pour les essais avec les préleveurs. $H_0 = 20$ cm.

Alumine DURMAX SPM	Facteur dynamique de forme ¹ χ	Poudre		Aérosol		Distance à l'orifice de dispersion L (cm)
		DAMM (μ m)	ETG	DAMM (μ m)	ETG	
102	1,45	7,7	1,4	7,1	1,4	100
95	1,65	14,7	1,3	14,1	1,3	100
91	1,15	30,9	1,2	29,4	1,3	100
84	1,2	49,8	1,3	39,2	1,4	100
71	1,0	65,2	1,3	60,8	1,3	60
52	1,0	91,1	1,2	76,9	1,2	60

¹d'après Mark *et al.*, 1985.

On note qu'entre les poudres et les aérosols collectés il existe un écart qui est d'autant plus grand que les particules sont grosses. Celui-ci est évidemment lié aux pertes par sédimentation pendant la phase de transfert entre l'orifice de dispersion et nos sondes de référence. Ainsi, l'aérosol d'essai auquel sont exposés nos préleveurs est celui mesuré par les sondes de référence, et non celui déterminé à partir des caractéristiques de la poudre originale comme c'est habituellement réalisé. Le Tableau 1 présente également les distances à l'orifice de dispersion (L) qui ont été choisies. Pour chaque configuration, il a été vérifié qu'aucune projection directe à l'intérieur des sondes n'était détectable.

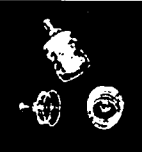


Compte tenu des faibles écarts types qui caractérisent les aérosols d'essais, nous pouvons considérer que ceux-ci sont quasi monodispersés (Mark *et al.*, 1985). Ainsi, l'étude de l'efficacité d'échantillonnage en fonction du diamètre aérodynamique que nous présentons ici est réalisée en générant six aérosols d'essais que nous faisons correspondre aux six diamètres aérodynamiques suivants : 7,1 μm ; 14,1 μm ; 29,4 μm ; 39,2 μm ; 60,8 μm et 76,9 μm .

Plusieurs séries d'essais ont été réalisées pour évaluer les performances de notre dispositif expérimental en terme de stabilité de la concentration au cours d'un essai, homogénéité de l'aérosol au voisinage du cercle de positionnement des préleveurs. Les résultats montrent que l'homogénéité spatiale (suivant l'orientation) est systématiquement inférieure à 12%, et que le gradient vertical de concentration sur la zone ± 10 cm autour de la hauteur de positionnement du cercle imaginaire (H = 100 cm) est faible compte tenu des diamètres des particules importants qui sont générés. Par ailleurs, à l'aide d'un granulomètre mesurant en temps quasi réel (GRIMM 1.108), nous avons pu vérifier qu'au cours d'une expérience (durée de l'ordre de 30 à 40 min.), la concentration était stable (coefficient de variation < 15%) et également que la fréquence de rotation du point de dispersion n'était pas corrélée avec l'évolution temporelle de cette concentration quasi instantanée.

Description des préleveurs individuels testés

Le Tableau 2 présente les trois préleveurs individuels d'aérosols qui ont été évalués avec la nouvelle méthode. Ces trois préleveurs sont la cassette 25 mm fermée (dénommée ici C25), le Bouton Inhalable (BUT) et l'IOM Inhalable (IOM).

Tableau 2 : Description et caractéristiques des trois préleveurs individuels d'aérosols évalués.

Type	Photo	Q_v (l/min)	D_i (mm)	U_i (m/s)
Cassette 25 mm "fermée" C25		1	4	1,33
Bouton Inhalable BUT		4	orifice $\approx 400 \mu\text{m}$ porosité $\approx 20 \%$	0,25
IOM Inhalable IOM		2	15	0,19

Le préleveur C25 est actuellement le seul dispositif qui soit décrit dans une norme française pour effectuer un prélèvement individuel de la fraction inhalable (dénommé dans la passé : fraction inspirable) d'un aérosol ambiant dans l'atmosphère des lieux de travail (NF X 43-257). La norme décrit principalement l'orifice de 4 mm aspirant à un débit de 1 l/min, en indiquant qu'il existe deux types de cassette qui diffèrent par le diamètre du filtre à utiliser (25 mm ou 37 mm). Malgré son utilisation relativement courante dans de nombreux pays, il n'existe que peu de données sur les performances de ce préleveur.

Développé aux Etats Unis, le préleveur BUT est récent et a été développé spécifiquement pour échantillonner la fraction inhalable. Il se caractérise par sa calotte sphérique convexe percée d'une multitude d'orifices circulaires de faible diamètre qui sont disposés uniformément. Une fois captées, les particules sont collectées sur un filtre de

diamètre 25 mm situé juste en aval de cette surface bombée. La suppression du dépôt en ligne et l'uniformité de l'aérosol collecté sur le filtre sont les deux caractéristiques intéressantes du préleveur.

Le préleveur IOM Inhalable, est dédié spécifiquement à la mesure de la fraction inhalable. Les particules sont captées par l'orifice circulaire de diamètre 15 mm et collectées sur un filtre de 25 mm positionné dans une cassette métallique. Le protocole d'utilisation indique que l'aérosol échantillonné est obtenu à partir de la pesée de l'ensemble cassette-filtre.

RESULTATS ET DISCUSSION

La Figure 3 montre les efficacités d'échantillonnage en fonction du diamètre aérodynamique pour les trois préleveurs (C25, BUT et IOM) qui ont été mesurées suivant la nouvelle méthode expérimentale développée. Chaque efficacité a été mesurée au moins trois fois, et les moyennes sont présentées avec leur intervalle de confiance à 95%. La courbe EN 481 (1993) correspond à la courbe conventionnelle Inhalable (pour des vitesses d'air > 0,5 m/s) et la courbe d'Aitken *et al.* (1999) décrit l'inhalabilité en air calme.

On voit clairement que chacun des préleveurs montre une efficacité qui lui est propre et qui diffère beaucoup d'un préleveur à l'autre.

L'efficacité de C25 est de l'ordre de 70% pour un diamètre aérodynamique de 7 μm . Au delà de 10 μm , cette efficacité chute considérablement. Elle est inférieure à 10 % à 30 μm .

Le BUT montre une décroissance relativement lente et monotone de son efficacité de 100 % à 7 μm pour atteindre environ 60 % à 77 μm . Cette décroissance est très proche de la courbe proposée par Aitken *et al.* (1999).

L'IOM montre une évolution de son efficacité d'échantillonnage systématiquement supérieure à 100% et que l'on peut diviser en deux zones. Une première zone correspond à une augmentation forte de l'efficacité, de 130% pour 7 μm à environ 180% pour 30 μm . La deuxième zone montre par contre une décroissance importante pour atteindre 100 % à 77 μm ! On peut avancer que cette évolution relativement inattendue est le résultat (pour la première zone) d'un effet inertie auquel l'IOM est très sensible du fait du diamètre important de son orifice d'entrée et de la faible vitesse d'aspiration, et d'un effet de sédimentation pour la deuxième zone. On peut également noter que la grande variabilité de l'efficacité de l'IOM.

Une analyse statistique faite sur les résultats des efficacités montre que pour le BUT, la variation intra type est faible et peu dispersée, alors qu'elle est forte et très dispersée pour le C25 et l'IOM. Cela signifie qu'une série de préleveur BUT qui est exposée à un même environnement donne des résultats de concentration faiblement dispersés par opposition à une série d'IOM ou bien de C25.

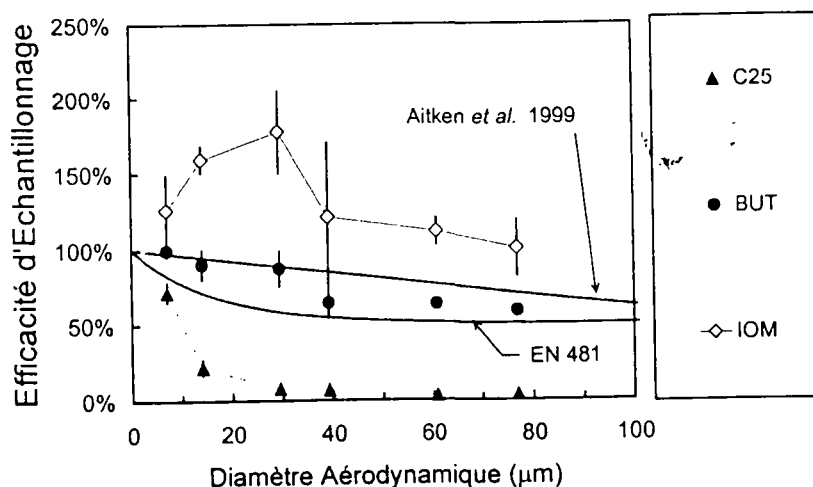


Figure 3 : Efficacité d'échantillonnage en fonction diamètre aérodynamique. Données expérimentales pour les préleveurs C25, BUT et IOM. Comparaison à la convention cible inhalable EN 481 pour l'air en mouvement et à la courbe de Aitken *et al.* (1999) pour l'air calme.

Interrogés par ces résultats quelque peu surprenants de l'IOM, des essais complémentaires ont été réalisés pour caractériser la fraction déposée dans la cassette de l'IOM. La Figure 4 compare les efficacités d'échantillonnage déterminées en suivant le protocole établi (pesée de l'ensemble cassette-filtre) et à partir de la mesure de l'aérosol collecté sur le filtre uniquement. La différence entre les deux efficacités exprime la fraction déposée dans la cassette. On voit que l'efficacité d'échantillonnage exprimée à partir de la mesure sur le filtre uniquement suit une évolution très différente, la fraction déposée est donc très importante. Cette efficacité est de 100% à 7 μm pour atteindre environ 45% à 77 μm . Ce résultat est tout à fait intéressant notamment pour les protocoles d'analyse qui nécessitent que l'aérosol collecté soit déposé sur un filtre comme c'est le cas de l'industrie nucléaire (mesure de l'activité déposée directement sur le filtre) ou bien encore dans le domaine des bio-aérosols par comptage microscopique.

Des essais (non présentés ici) ont également permis de montrer que l'efficacité de l'IOM était fortement dépendante de l'orientation vis à vis de la source de contamination. Cette caractéristique de l'IOM, déjà bien connu dans l'air en mouvement, est liée là encore à la géométrie de son orifice de captage et sa faible vitesse d'aspiration.

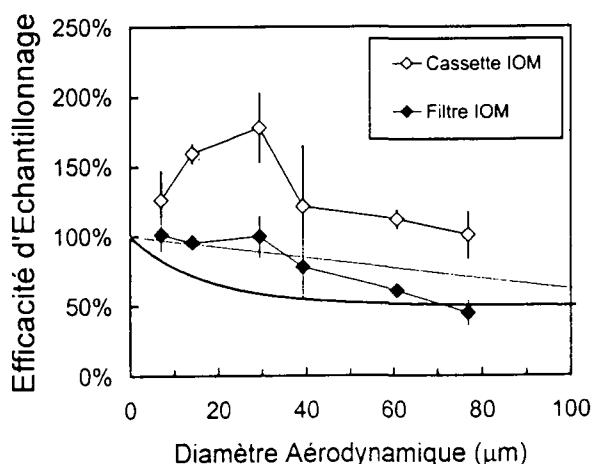


Figure 4 : Efficacité d'échantillonnage en fonction diamètre aérodynamique pour le préleveur IOM suivant le protocole (Cassette IOM) et uniquement avec le filtre (Filtre IOM). Orientation face à la source. Comparaison à la convention inhalable EN 481 pour l'air en mouvement et à la courbe de Aitken *et al.* (1999) pour l'air calme.

A partir des résultats expérimentaux des efficacités d'échantillonnage qui ont été mesurées, les écarts relatifs (biais) entre la concentration mesurée et la concentration totale de l'aérosol ambiant ont été calculés pour différents aérosols polydispersés (écart type géométrique constant et égal à $\sqrt{2}$ de DAMM égal à 5, 10 et 15 μm). Les résultats reportés dans le Tableau 3.

Tableau 3 : Ecarts relatifs par rapport à la concentration de l'aérosol ambiant calculés pour différents aérosols polydispersés caractérisés par un diamètre aérodynamique médian en masse (DAMM) et un écart type géométrique ETG.

Type	DAMM (ETG = 2)		
	5 μm	10 μm	15 μm
C25	-32 %	-53 %	-67 %
BUT	-3 %	-7 %	-12 %
IOM	29 %	43 %	47 %
Filtre IOM	1 %	-1 %	-4 %

Ces résultats montrent clairement que la C25 sous estime la mesure de l'aérosol ambiant, même lorsque l'aérosol est composé de particules plutôt fines ; l'IOM surestime systématiquement la concentration (+29 % pour un DAMM égal à 5 µm). Le BUT sous estime très légèrement la mesure de la concentration totale (-12% au maximum pour un DAMM égal à 15 µm). La meilleure mesure étant donné par la mesure directement sur le filtre de l'IOM, où le biais est au maximum égale à - 4% pour un DAMM égal à 15 µm.

Ces résultats expérimentaux permettent entre autre de calculer les ratios de concentration entre les différents préleveurs s'ils étaient positionnés à proximité l'un de l'autre dans un environnement d'air calme. Ainsi, pour un DAMM égal à 15 µm, on trouve que C25/BUT = 0,4 et IOM/BUT = 1,7.

CONCLUSION

Une nouvelle méthodologie a été développée en laboratoire pour évaluer les performances d'échantillonnage de préleveurs d'aérosols. Cette méthode simule des conditions qui sont jugées représentatives de conditions habituellement rencontrées sur des lieux de travail intérieur : faible vitesse de l'air et une proximité de la source de contamination. Un protocole pour la mesure du prélèvement de référence dans cet environnement a été conçu et validé.

Les efficacités d'échantillonnage de trois préleveurs individuels d'aérosols (C25, BUT et IOM) ont été mesurées et les résultats confrontés aux courbes décrivant l'inhalabilité (air en mouvement et air calme). Une analyse en terme de biais a été faite à partir des résultats des efficacités.

L'ensemble des résultats obtenus dans cette étude montre clairement la nécessité de connaître au mieux les efficacités d'échantillonnage des préleveurs d'aérosols qui sont utilisés afin de pouvoir apporter les éléments de réponses indispensables à l'analyse des études d'inter comparaison faites sur les lieux de travail.

REFERENCES

- Aitken, R.J., Baldwin, P.E.J., Beaumont, G.C., Kenny, L.C., Maynard, A.D. (1999) Aerosol inhalability in low air movement environments. *J. Aerosol Sci.*, 30, 613-626.
- Baldwin, P.E.J., and Maynard, A.D. (1998) A survey of wind speed in indoor workplaces. *Annals of Occupational Hygiene*, 20, 303-313.
- EN 481 (1993) Workplace Atmospheres - Size fraction definitions for measurement of airborne particles in the workplace. *CEN, Bruxelles*.
- Guffey, S.E., Flanagan, M.E., van Belle, G. (2001) Air sampling at the chest and ear as representative of the breathing zone. *American Industrial Hygiene Association Journal*, 62, 416-427.
- Grinshpun, S.A., Willeke, K., Kalatoor, S. (1993) A general equation for aerosol aspiration by thin-walled probes in calm and moving air. *Atmos. Envir.*, 27A, 1459-1470. *Corrigendum, Atmos. Envir.*, 28, 375, 1994
- Hinds, W.C. (1999) Sampling for Inhalable Aerosols. Particle size-selective sampling for particulate air contaminants. *ACGIH, Cincinnati, Ohio*.
- Kenny, L.C., Aitken, R.J., Baldwin, P.E.J., Beaumont, G.C., Maynard, A.D. (1999) The sampling efficiency of personal inhalable aerosol samplers in low air movement environments. *J. Aerosol Sci.*, 30, 5, 627-638.
- Mark, D., Vincent, J.H., Gibson, H., Whitherspoon (1985) Applications of closely graded powders of fused alumina as test dusts for aerosol studies. *J. Aerosol Sci.*, 16, 125-131.
- NF X 43-257 (1988) Air des lieux de travail. Prélèvement individuel de la fraction inspirable de la pollution particulaire. *Norme française, AFNOR, août 1988*.
- Roger, F., Fabriès, J.F., Görner, P., Wrobel, R., Renoux, A. (1999) Entry efficiency of an annular aerosol sampling slot in calm air. *J. Aerosol Sci.*, 30, Suppl. 1, S151-S152.
- Whicker, J.J., Baker, G.D., Wasiolek, P.T. (2000) Quantative measurements of airflow inside a nuclear laboratory. *Health Physics*, 79, 716-721.

FILTRATION DES AEROSOLS SOLIDES MICRONIQUES ET SUBMICRONIQUES SUR MEDIA PLANS : INFLUENCE DE LA VITESSE DE FILTRATION

J-C. Appert-Collin⁽¹⁾, E. Mailfert⁽¹⁾, P. Contal⁽¹⁾, D. Thomas⁽¹⁾, S. Calle⁽¹⁾ et D. Bemer⁽²⁾

Laboratoire de Filtration des Aérosols de Nancy

(1) LSGC/CNRS – UHP – 1, rue Grandville – BP 451 – 54001 Nancy Cedex.

(2) INRS – Avenue de Bourgogne – BP 27 – 54501 Vandoeuvre-les-Nancy Cedex

Résumé : Cette étude porte sur l'influence de la vitesse de filtration et de la taille des particules filtrées sur la compacité du dépôt formé et ceci dans le cadre d'un filtre très haute efficacité. Nous avons mis en évidence la non influence de la vitesse de filtration sur cette compacité pour les particules submicroniques et l'influence de la vitesse à partir d'un certain diamètre (aux alentours de $5\mu\text{m}$) pour les particules microniques. La compacité du gâteau formé augmente alors avec la vitesse de filtration.

INTRODUCTION

La filtration des particules a un fort impact sur la qualité des rejets gazeux industriels dans l'environnement. Beaucoup de systèmes de filtration sont constitués de filtres à fibres. Aussi, il est très important de caractériser la durée de vie de ces filtres par la détermination de leur performance : perte de charge et efficacité de collecte au cours de leur colmatage. Cette communication a pour objet de montrer l'influence de la vitesse sur l'évolution de la perte de charge et sur la compacité du gâteau formé lors de la filtration de particules microniques et submicroniques par des media plans. En effet, une étude bibliographique a mis en évidence des divergences importantes sur l'influence de la vitesse sur la compacité du gâteau. Dans le cadre de la filtration de particules submicroniques (Pénicot, 1998 ; Thomas, 2001), nous avons mis en évidence que la compacité du dépôt était tributaire du diamètre moyen des particules et indépendante de la vitesse de filtration (dans la gamme 1 à 50 cm/s). Nous avons pu regrouper l'ensemble de nos résultats et ceux de différents auteurs sous une même expression :

$$\alpha_g = 0.58 \left(1 - \exp\left(\frac{-d_p}{0.53}\right) \right) \quad (1)$$

où α_g est la compacité du dépôt (-) et d_p le diamètre moyen des particules (μm). Cette relation reste valable pour des particules inférieures à $3\mu\text{m}$.

Pour des particules microniques, Schmidt (1995) a mis en évidence qu'il existe un profil de compacité au sein du gâteau avec une compacité qui diminue au fur et à mesure que l'on s'éloigne de l'interface filtre / gâteau. Aguiar (1992) trouve des valeurs de compacité allant jusqu'à 0,8 pour des particules supérieures à $15\mu\text{m}$. Par ailleurs Silva (1999), Cheng (1998), Aguiar (1992) montrent qu'une augmentation de la vitesse entraîne une augmentation de la compacité du dépôt. Ces observations partagées par Callé (2000) sont en contradiction avec celles de Merlin (2000) qui relie la compacité du dépôt au diamètre aérodynamique median massique (d_{mae}) (dans le domaine 0,18 à $9\mu\text{m}$) et à la vitesse de filtration U_f (comprise entre 2 et 20 cm/s) par :

$$\alpha_g = 0.145 + 4.5 \cdot 10^{-2} d_{mae} - 3.3 \cdot 10^{-3} U_f \quad (2)$$

Cette relation linéaire traduit le fait que la compacité augmente avec la taille des particules et diminue avec la vitesse. Ces résultats antinomiques sur le rôle joué par la vitesse, nous incitent à mener nos propres études expérimentales sur le sujet.

PROTOCOLE OPERATOIRE

1. Présentation de la boucle d'essai

Le montage expérimental (figure 1) est constitué d'un générateur d'aérosol submicronique (fluorescéine sodée) ou micronique (alumine), d'un porte-filtre de diamètre 130 mm, d'un sécheur d'air, d'un débitmètre massique et de deux systèmes de prélèvement placés en amont et en aval du filtre. La température et la pression sont contrôlées en différents points de l'installation. Une régulation de débit permet de maintenir la vitesse de filtration constante tout au long de l'essai. La perte de charge à travers le filtre est mesurée par un capteur de pression différentielle.

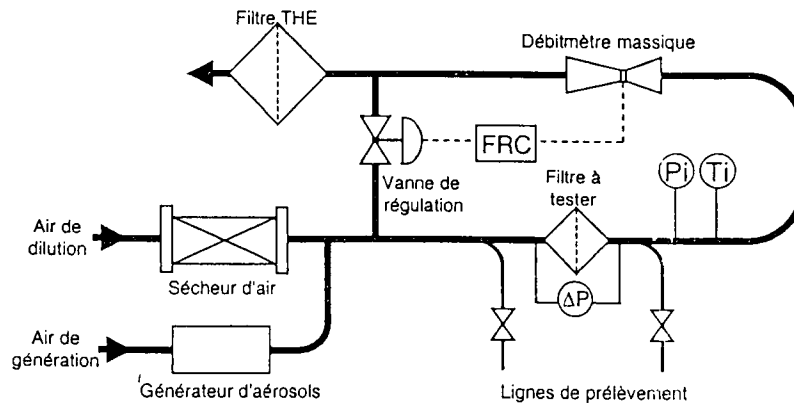


Figure 1 . Banc d'essais

2. Caractéristiques des filtres employés

Le tableau 1 donne les caractéristiques des deux filtres plans étudiés : un filtre à Très Haute Efficacité (ND309) et un filtre à moyenne efficacité (NA320).

Tableau 1 . Caractéristiques des filtres plans

Filtre	Epaisseur (μm)	Compacité α	Diamètre des fibres (μm)	
			d_f	d_r
ND 309	410	0.078	1.21	0.9
NA 320	440	0.061	3.19	3.60

d_f : diamètre moyen des fibres

d_r : diamètre effectif des fibres selon Davies

3. Caractéristiques des aérosols microniques

L'aérosol micronique est constitué par des particules d'alumine de différents diamètres moyens volumiques (d_{mv}) (tableau 2).

Tableau 2 : Caractéristiques des aérosols microniques

référence	WP 40/F1200	DX5R	OPTI.SR 9S	WPF 600/125
$\overline{d_p}$ (d_{mv}) (μm)	4	4.8	8.6	9.1
σ (μm)	0.8	1.7	2.5	2.9
Distribution	monomodale	monomodale	monomodale	monomodale
Masse volumique ρ_p (kg/m^3)	3890	3750	3950	3950

Rq : la distribution granulométrique a été effectuée sur les particules collectées par les filtres

4. Détermination de la compacité du dépôt

4.1. Détermination par l'épaisseur du dépôt

La connaissance de la masse de particule collectée (m), de la surface de filtration (Ω) et de la mesure de l'épaisseur (Z) du filtre permet le calcul de la compacité moyenne du dépôt. Soit :

$$\alpha_g = \frac{m}{\Omega \rho_p Z} \quad (3)$$

Cette approche donne accès à une valeur réelle moyenne de la compacité du dépôt mais présente quelques limites. La valeur obtenue est fortement tributaire de l'incertitude sur la détermination de l'épaisseur du dépôt. Ainsi, la précision sera d'autant plus grande que l'épaisseur du gâteau sera importante.

4.2. Détermination à partir de l'évolution de la perte de charge

L'évolution de la perte de charge lors du colmatage en surface peut être décrit par une fonction linéaire de la masse surfacique collectée par l'approche de Novick :

$$\Delta P = \frac{h_k a_g^2 \alpha_g \mu}{(1 - \alpha_g)^3 \rho_p} U_f \frac{m}{\Omega} \quad (4)$$

Avec a_g surface spécifique (m^{-1}), μ viscosité de l'air (Pa.s), U_f vitesse de filtration ($m.s^{-1}$), m masse de particule collectée (kg) et Ω surface de filtration (m^2).

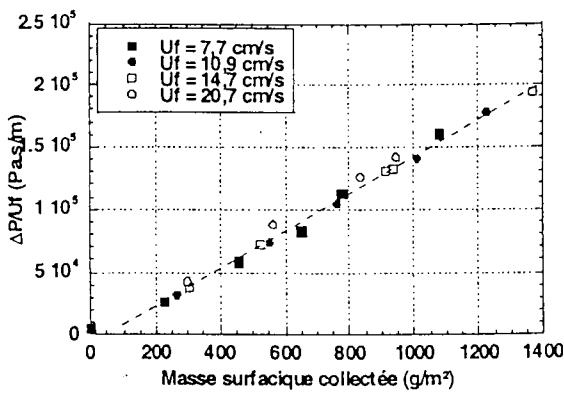
Ainsi la compacité peut être calculée à partir de la détermination expérimentale de la pente ($\Delta P/(m/\Omega)$) en supposant égal à 5 la constante de Kozeny (h_k) ou par la pente ($\Delta P/U_f$) à partir d'essais de perméation.

RESULTATS

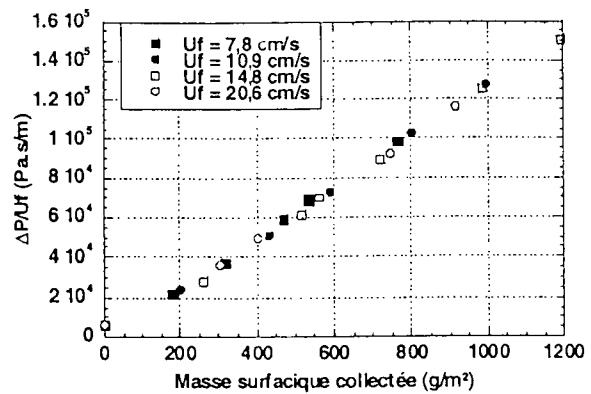
1. Etude du colmatage

Des essais de colmatage ont été réalisés sur deux filtres : un de moyenne efficacité NA 320 et un de très haute efficacité ND 309 afin d'étudier l'incidence de la vitesse sur l'évolution de la perte de charge au cours du colmatage. Les figures suivantes (figures 2(a) à 2(d)) présentent le rapport de la perte de charge sur la vitesse (qui, à la viscosité dynamique du fluide près, μ , représente la résistance à l'écoulement de filtration) pour le filtre THE.

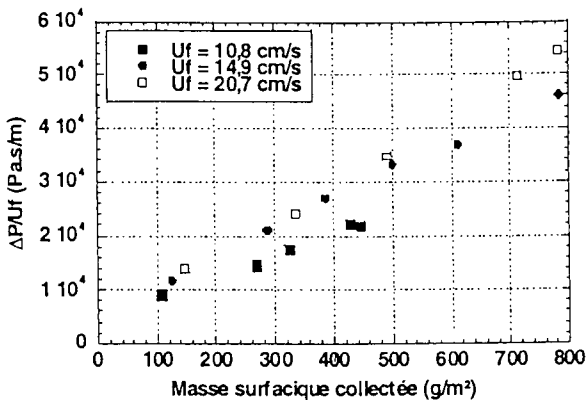
Pour ce filtre ND309, on observe une évolution différente du paramètre $\Delta P/U_f$ suivant la taille des particules. La résistance est équivalente quelle que soit la vitesse de filtration pour des particules collectées de diamètre moyen 4 et $4.8 \mu m$ (DX5R et WP40/F1200). Par contre, au-delà (WPF 600/125 et OPTI.SR 9), la résistance augmente avec la vitesse. Ces résultats particuliers confirment ceux de la littérature sauf ceux de Merlin (2000).



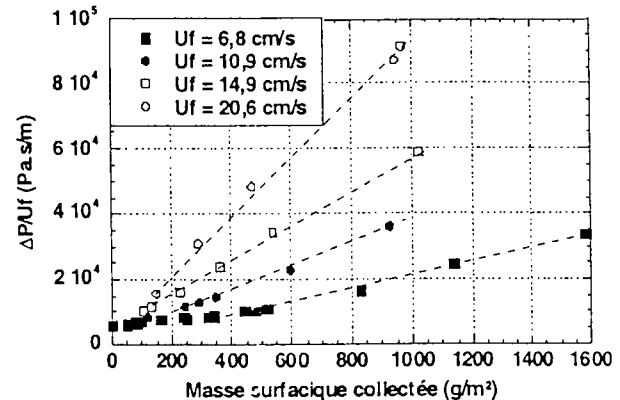
(a) : Alumine DX5R



(b) : Alumine WP 40/F1200



(c) : Alumine WPF 600/125



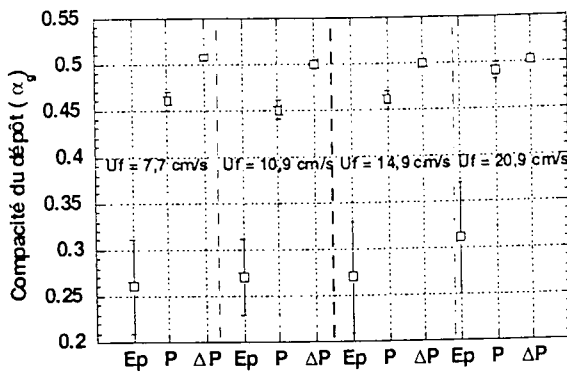
(d) : Alumine OPTI.SR 9S

Figure 2 : Evolution de $\Delta P/U_f$ en fonction de la masse surfacique collectée – (ND309)

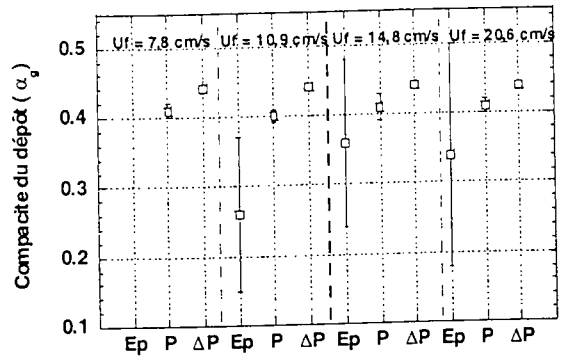
2. Compacité du dépôt

Pour expliquer cette différence de comportement, une des hypothèses possibles est relative à la modification de la compacité du gâteau avec la vitesse de filtration. Afin de vérifier cette supposition, nous avons déterminé l'épaisseur du gâteau formé à l'aide d'un cathétomètre. La connaissance de cette valeur et de la masse du dépôt en surface du filtre nous permet d'accéder à la compacité (équation 3). Parallèlement, la compacité a été déterminée par la pente de l'évolution de la perte de charge en fonction de la masse surfacique collectée (équation 4) ou pour une masse donnée de particules collectées par des essais de perméation (équation 4). Il est important de noter que ces trois méthodes ne permettent de déterminer qu'une valeur moyenne de la compacité (en surface et en épaisseur).

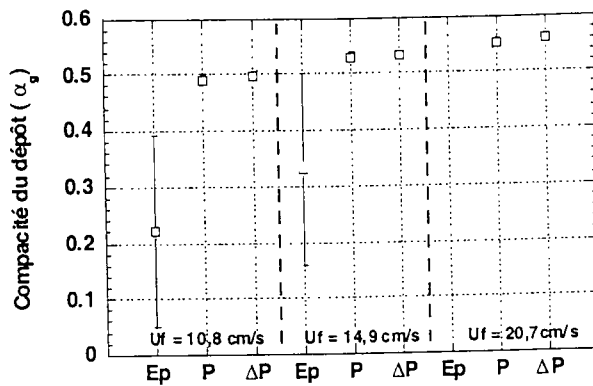
Les figures 3(a) à 3(d) présentent les valeurs de compacité obtenues par ces trois méthodes. Les deux méthodes fondées sur la perméation ou la pente donnent des valeurs sensiblement identiques. Elles surestiment néanmoins les valeurs obtenues par la méthode liée à la mesure de l'épaisseur dont l'incertitude est importante. Bien que séduisante, puisque directe, la détermination de la compacité du dépôt par mesure de l'épaisseur a été abandonnée. En effet, outre la détermination difficile pour les faibles épaisseurs du gâteau, les mesures ont révélé une épaisseur du dépôt non uniforme. Le dépôt est plus important au centre et à la périphérie du filtre. Ce phénomène est d'autant plus marqué que la vitesse de filtration est grande.



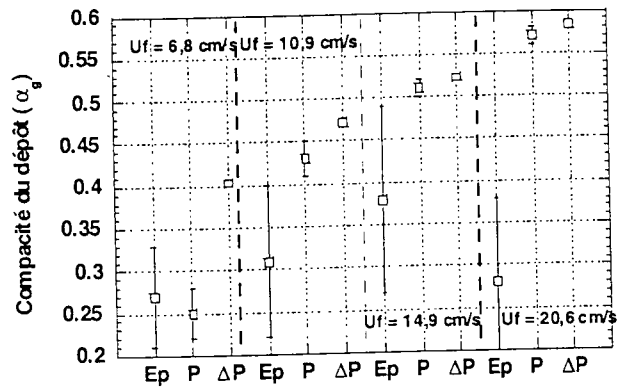
(a) : Alumine DX5R



(b) : Alumine WP 40/F1200



(c) : Alumine WPF 600/125



(d) : Alumine OPTI.SR 9S

Figure 3 : Comparaison des compacités déterminées par les trois méthodes à différentes vitesses de filtration pour les 4 aluminés

Légende :

Ep : Détermination de la compacité par épaisseur

P : Détermination de la compacité par perméation

Delta P : détermination de la compacité à partir de la pente du colmatage

La figure 4 montre que la compacité semble indépendante de la vitesse pour des particules inférieures à 5 μm (diamètre volumique). Au-delà, la compacité augmente avec le diamètre des particules et la vitesse de filtration (figure 4).

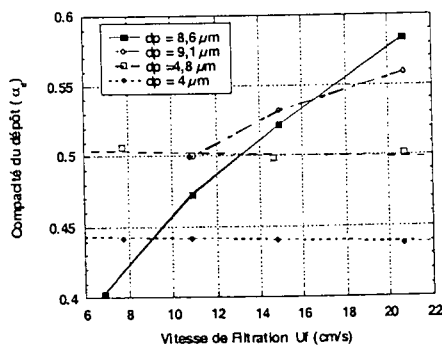


Figure 4 : Evolution de la compacité du gâteau en fonction de la vitesse de filtration U_f

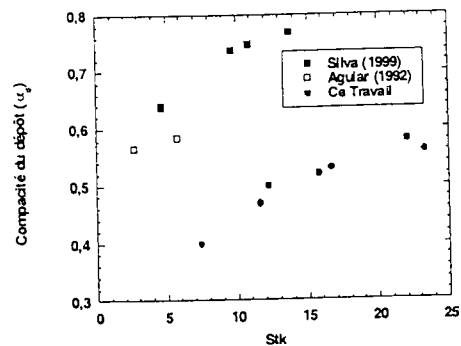


Figure 5 : Evolution de la compacité du gâteau en fonction du nombre de Stokes (St_k)

Il peut donc être intéressant, pour les particules de diamètre supérieur à $5 \mu\text{m}$, de trouver une représentation de la compacité en fonction d'un paramètre prenant en compte à la fois vitesse d'écoulement, diamètre de particules et la masse volumique des particules, comme par exemple le nombre de Stokes de grain ($S_{ik} = \rho_p U_f d_p^2 / (18 \mu d_p)$) (figure 5). L'ensemble de nos points suit une même évolution. Une comparaison de ce mode de représentation avec des résultats de la littérature montre cependant une certaine dispersion des résultats. Nous pouvons penser que la structure du médium filtrant joue un rôle dans la constitution du dépôt qu'il est difficile à l'heure actuelle d'éclaircir.

CONCLUSIONS

Cette étude a permis de confirmer les résultats de la littérature concernant la résistance à l'écoulement et la compacité du gâteau formé. Il semblerait donc que ces deux paramètres soient fonction de la vitesse d'écoulement et de la taille des particules. Au-delà d'une certaine taille de particule (autour de $5\mu\text{m}$), résistance et compacité augmentent avec la vitesse et ceci dans le cas d'un filtre THE où la perte de charge est conditionnée par le dépôt formé en surface.

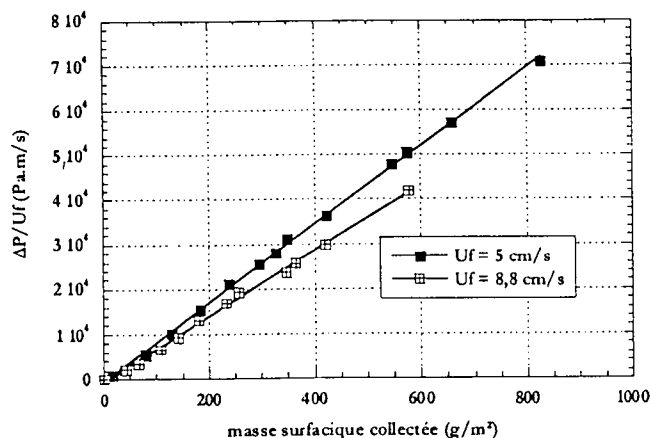


Figure 6 : Evolution de $\Delta P/U_f$ en fonction de la masse surfacique collectée pour le filtre NA320 - Alumine : DX5R

En ce qui concerne les filtres moyenne efficacité (type NA 320), le comportement semble différent étant donné que la résistance à l'écoulement diminue avec la vitesse dans le cas de particules de $5\mu\text{m}$ (figure 6). Ceci peut être lié à un profil de pénétration différent ou à un arrangement du dépôt en surface différent mais ce résultat demande à être confirmé aux travers d'essais supplémentaires et constitue la suite de ce travail.

REFERENCES

- Aguiar M.L., Coury J.R., *Air filtration in fabric filters : cake-cloth adhesion forces*, Fluid/Particle Separation Journal, 4 Vol5 (1992), 193 –198
- Callé S., *Etude des performances des media filtrants utilisés en dépolluissage industriel*, Thèse INPL, Octobre 2000
- Cheng Y.H., Tsai C.J., *Factors influencing pressure drop through a dust cake during filtration*, Aerosol Science and Technology, 29 (1998), 315 – 328
- Merlin P., Artous S., Laborde J.C., Mocho V.M., *Influence de la vitesse de filtration sur le colmatage en milieu gazeux d'un médium filtrant plan par des aérosols solides*, 16^{ème} Congrès Français sur les Aérosols, Paris (2000), 22 – 28
- Penicot P., *Etude de la performances de filtres à fibres lors de la filtration d'aérosols liquides ou solides submicroniques*, Thèse INPL, Octobre 1998
- Schmidt E., *Experimental investigation into compression of dust cakes deposited on filter media*, Filtration and Separation, September (1995), 789 -793
- Silva C.R.N., Negrini V.S., Aguiar M.L., Coury J.R., *Influence of gas velocity on cake formation and detachment*, Powder Technology, 101 (1999), 165 –172
- Thomas D., Penicot P., Contal P., Leclerc D. and Vendel J., *Clogging of fibrous filter by solid aerosol particles. Experimental and modelling study*, Chem. Eng. Science, 56 (11) (2001), 3549-3561

ECOMESURE

Expéditeur

Nom

Fonction

Société - Laboratoire

Adresse

Téléphone

Fax

E-mail

Appel téléphonique

Visite d'un technicien ECOMESURE souhaitée

Devis

ECOMESURE

BP 13

91640 Janvry

Programme d'activités

ECOMESURE est heureux de vous présenter son programme d'activités.

- ▲ Pour obtenir une information générale, il vous suffit de cocher les cases correspondantes de la liste par activités.
- ▲ Pour obtenir une information plus précise ainsi qu'un devis, nous vous conseillons d'utiliser la liste par marques au verso.
- ▲ N'oubliez-pas d'inscrire votre nom et votre adresse complète.

Nous vous en remercions par avance.

ENVIRONNEMENT / AIR INTÉRIEUR

- Analyseur de poussières en continu
- Séquenceurs de filtres PM -10 et PM -2,5
- Préleveurs de poussières
- Granulomètres par impaction en cascade
- Analyseurs de gaz
- Calibrateurs
- Echantillonneurs de C.O.V.
- Préleveurs pour la spéciation des poussières (métaux lourds, H.A.P, pesticides, etc.)

CONTRÔLE DE LA CONTAMINATION

Air, Liquide, Gaz

- Comptage de particules (salles blanches)
- Comptage de particules sur gaz sous pression
- Contrôle bactériologique dans l'air
- Comptage de particules dans les liquides
- Mesure des particules en suspension dans l'eau potable
- Analyseur de C.O.T.
- Générateurs DOP pour test filtres HEPA

ÉMISSION

- Analyseur massique de poussières en temps réel
- Préleveurs isocinétiques pour cheminées
- Analyseur d'imbrûlés dans les cendres
- Analyseurs de gaz
- Analyseurs de C.O.V, H.A.P, dioxine

HYGIÈNE INDUSTRIELLE - SÉCURITÉ

- Analyseurs et détecteurs de poussières portatifs
- Préleveur combiné gaz/poussières portatif
- Granulomètres par impaction en cascade
- Mesureurs de champs électromagnétiques

AÉROSOLS / FILTRATION

- Générateurs d'aérosols monodispersés
- Générateurs de poussières à grande capacité
- Bancs de test automatiques pour filtres
- Granulomètres laser
- Etalonnage de compteurs de particules air et liquides.

ECOMESURE

B.P. 13 - F-91640 Janvry

Tél : (+33) 01 64 90 55 55 - Fax : (+33) 01 64 90 55 66

E-mail : contact@ecomasure.com - www.ecomasure.com

Environnement / Air intérieur

Analyse en continu des polluants atmosphériques

ANALYSEUR MASSIQUE DE POUSSIÈRES EN TEMPS RÉEL R & P TEOM 1400

Mesure en temps réel de la masse de poussières déposée sur le filtre de collection

Disponible en version PM-10 et PM-2,5

Gamme : de 0 à plusieurs centaines de mg/m^3

Résolution : $0,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$

Sortie analogique et RS 232

Options : séquenceur de filtres ACCU à 8 voies, sonde météo

APPLICATIONS : réseaux de mesure de la pollution atmosphérique, camion laboratoire, hygiène industrielle.

REMARQUE : le TEOM 1400 est le seul analyseur de poussières en continu dont le principe repose sur la mesure directe de la masse de particules en suspension dans l'air.

ANALYSEURS DE POUSSIÈRES R & P DUSTSCAN "SENTINELLE"

Mesure de la lumière diffusée par les particules avec protection des optiques par air filtré

Gamme : 0 - 500 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ à 0 - 100 mg/m^3

Résolution : $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$

Boîtier étanche, ligne d'entrée chauffée, acquisition de données interne

Options : anémomètre / girouette

APPLICATIONS : léger et très simple à installer, le DUSTSCAN sentinelle est spécialement adapté pour la détection des épisodes de pollution, la surveillance de sites industriels.

ANALYSEUR DE CARBONE DANS LES POUSSIÈRES EN SUSPENSION DANS L'AIR

R & P 5400

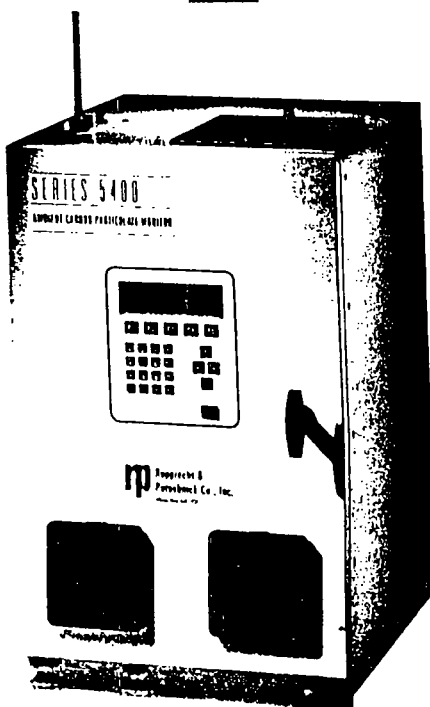
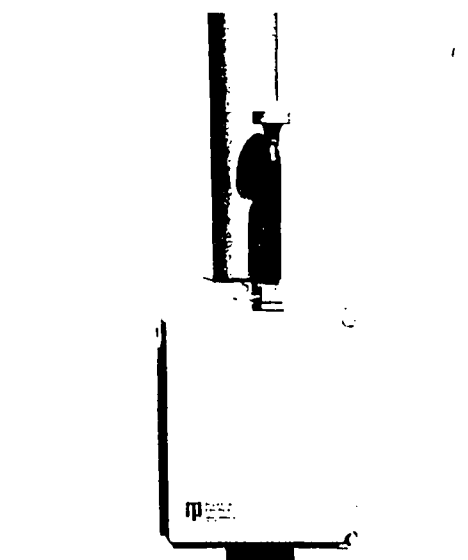
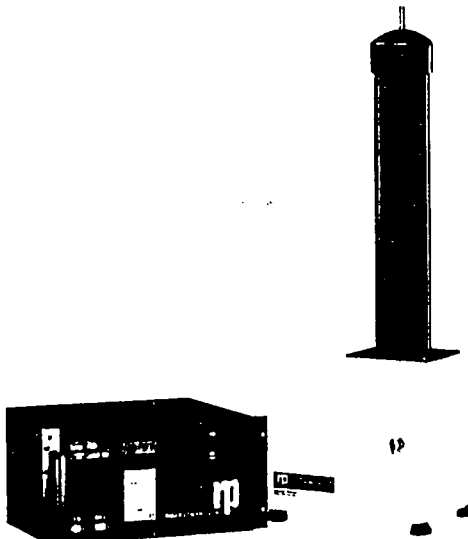
Mesure simultanée du carbone élémentaire (suie) et du carbone organique

Procédure d'étalonnage simple, précise et rigoureuse

Minimisation des artefacts par collection sur impacteur

Conçu pour installation en réseau : fonctionnement automatique sans intervention humaine, nombreuses interfaces, étalonnage automatique...

REMARQUE : le R & P 5400 permet de quantifier non seulement la concentration en carbone suie mais également en produits organiques plus volatils adsorbés sur les poussières. La séparation entre les deux espèces est obtenue par désorption thermique programmée. Le carbone est ensuite oxydé à haute température en CO_2 et mesuré sélectivement par un analyseur IR.



Analyse en continu des polluants atmosphériques

ANALYSEUR DES HAP ADSORBÉS SUR LES POUSSIÈRES ECOChem PAS 2000

Principe : photo-ionisation des HAP adsorbés par lampe UV Excimer

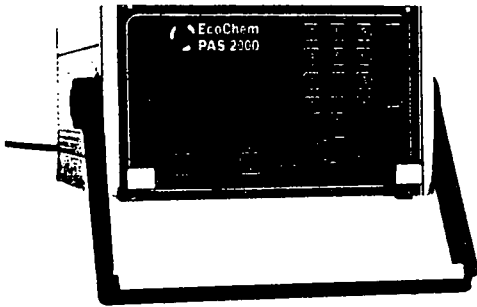
Gamme : 3 ng/m³ à 100 µg/m³

Temps de réponse : inférieur à 10 secondes

Appareil facilement transportable

APPLICATIONS : qualité de l'air intérieur et extérieur, émissions diesel, chauffage à combustibles fossiles, incinérateur.
Spécialement adapté à la recherche rapide des sites les plus exposés.

REMARQUE : existe en version "émission" avec diluteur incorporé.



ANALYSEUR GRANULOMÉTRIQUE DES PARTICULES ULTRA FINES DEKATI ELPI OUTDOOR

Gamme de granulométrie : 0,01 µm à 10 µm

Débit d'aspiration : 30 l/mn

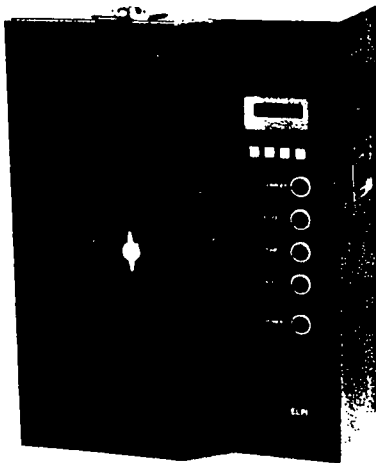
Procédure de Zéro automatique à intervalle de temps donné

Distribution granulométrique en nombre, en surface, en volume ou en masse de l'aérosol atmosphérique

Récupération possible de la contamination déposée sur chaque étage

Logiciel d'acquisition, de pilotage et de traitement des données sous Windows

REMARQUE : basé sur le principe de l'impacteur en cascade, l'ELPI OUTDOOR a été optimisé pour une utilisation en réseau de mesure de la qualité de l'air.
L'ELPI mesure non seulement les fractions PM-10, PM-2,5 et PM-1, mais également la répartition des particules ultra fines jusqu'à 10 nanomètres.



ANALYSEURS DE SULFATES ET NITRATES PARTICULAIRES R & P 8400 NIS

Mesure spécifique de la concentration en nitrates particulaires (R&P 8400 N) ou en sulfates particulaires (R&P 8400S)

Résolution en temps : 10 mn

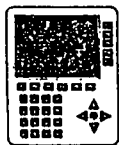
Gamme : 0 à 1 mg/m³

Résolution : 0,2 µg/m³

Sorties analogique et RS 232

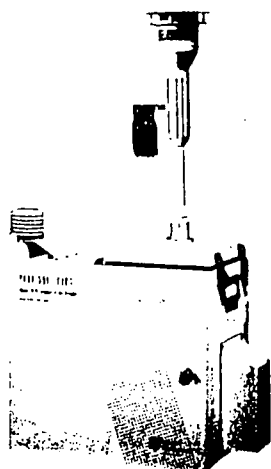
Principe : oxydation flash, suivie de la détection du NO₂ (nitrates) par chimiluminescence ou du SO₂ (sulfates) par fluorescence UV

REMARQUE : du fait de leur volatilité, les sulfates et nitrates sont difficiles à échantillonner sur filtres. L'analyse rapide en continu permet de s'affranchir de la perte de matière et de connaître avec exactitude la concentration dans l'air de ces deux polluants.



Environnement / Air intérieur

Prélèvement / Échantillonnage des polluants atmosphériques



PRÉLEVEUR SÉQUENTIEL DE POUSSIÈRES EN SUSPENSION **R & P PARTISOL PLUS**

Capacité : 1 à 16 filtres de diamètre 47 mm

Régulateur électronique de débit volumique

Versions poussières totales, PM-10, PM-2,5, dichotomique (PM-10 et PM-2,5)

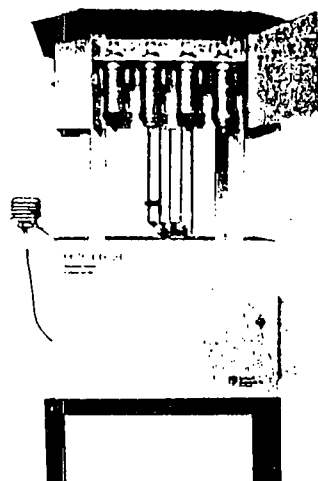
Séquence gérée par microprocesseur avec possibilité d'échantillonnage conditionnel

Acquisition interne de données / événements

Commandable à distance par RS 232, modem ou signaux analogiques

Options : sonde météo, modem.

APPLICATIONS : analyse des métaux lourds, mesure des fractions PM-10 et PM-2,5, etc. Possibilité d'échantillonner en fonction des conditions météo et de mesurer la fraction PM-10 et PM-2,5 sur un même préleveur.



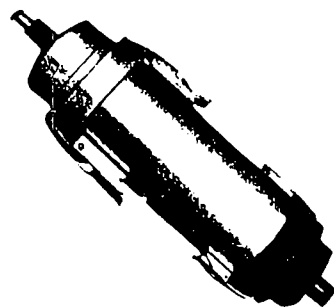
ÉCHANTILLONNEUR D'AIR MULTIPOLLUANTS **R & P PARTISOL SPECIATION**

Développé pour la collection simultanée / séquentielle d'échantillons particuliers et gazeux en vue de quantifier un ensemble de polluants atmosphériques solides, semi volatils, volatils : fractions PM-10 et PM-2,5, métaux lourds, nitrates, HAP, pesticides, dioxines, etc.

12 voies de prélèvement avec possibilité d'échantillonner simultanément sur jusqu'à 4 voies.

Utilise les cartouches de spéciation ChemComb

REMARQUE : associé aux cartouches ChemComb, le Partisol Speciation permet d'exposer simultanément un grand nombre de supports de collection différents : ces supports peuvent ainsi être optimisés selon le type d'analyse chimique envisagé ultérieurement pour quantifier chaque polluant.



CARTOUCHES DE SPÉCIATION MULTIPOLLUANTS **R & P CHEMCOMB**

- Cartouches multi-étages permettant l'échantillonnage de divers polluants particuliers ou gazeux sur des supports spécifiques :

- filter pack pour PM-10, PM-2,5, métaux lourds, sulfates, carbone élémentaire, etc.

- filter pack / dénudeurs pour nitrates, etc.

- cartouche PUF pour HAP, pesticides, dioxines, etc.

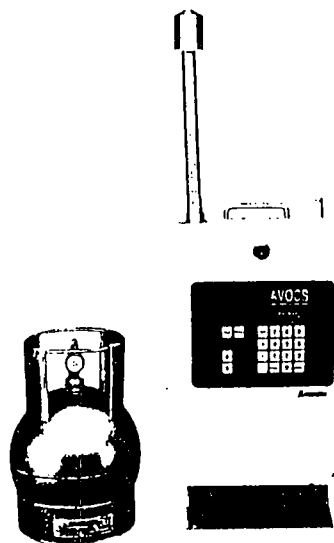
ÉCHANTILLONNEUR DE COV SUR "CANISTER" **ANDERSEN AVOCS**

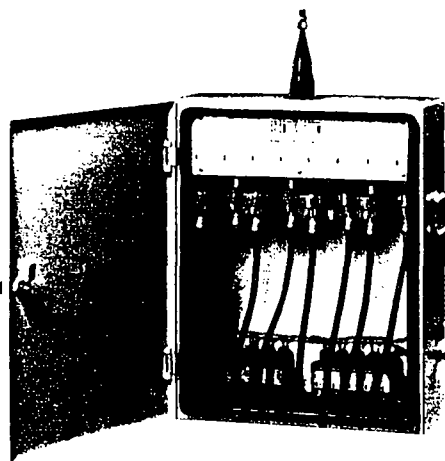
Collecte des échantillons d'air dans des cylindres métalliques spécialement traités, les "canisters", pour l'analyse ultérieure des COV

Connectable sur 1 à 16 canisters

Échantillonnage conditionnel selon la direction et la vitesse du vent

Alimentation sur secteur et sur batterie





Prélèvement / Échantillonnage des polluants atmosphériques

SÉQUENCEUR DE FILTRES / CARTOUCHES

R & P ACCU

S'installe sans modification sur un analyseur de poussières R & P TEOM 1400

Accepte une grande variété de supports : porte-filtre diamètre 47 mm, cartouche PUF pour HAP et pesticides, filter pack, etc.

Capacité : 8 porte-filtres / cartouches

Possibilité d'échantillonnage conditionnel



PRÉLEVEURS DE POUSSIÈRES

R & P MINI PARTISOL

Très petites dimensions (30 x 30 x 30 cm), léger

Utilisable aussi bien en extérieur qu'en intérieur

Régulation électronique de débit volumique entre 1 et 5 l/mn (jusqu'à 10 l/mn avec pompe extérieure)

Pompe interne silencieuse, acquisition de données

Autonomie 24 heures

Alimentation extérieure : 220 VAC

Accessoires : - préséparateurs PM-10 et PM-2,5

- porte-filtres, cartouches de spéciation ChemComb

APPLICATIONS : spécialement étudié pour les campagnes de comparaison entre air intérieur et extérieur.

Peut recevoir des substrats spécifiques pour l'analyse des métaux lourds, carbone, HAP, etc.



ÉCHANTILLONNEUR DE POLLUANTS ORGANIQUES SEMI-VOLATILS

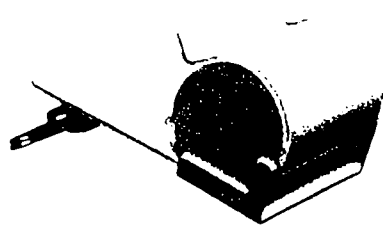
TISCH "PUF"

Adapté à l'échantillonnage de traces de HAP, pesticides, dioxines,...

Echantillonnage par filtration sur fibre de quartz suivi par piégeage sur mousse de polyuréthane

Débit d'échantillonnage élevé : 17 m³/h

REMARQUE : le PUF échantillonne rapidement un gros volume d'air et est adapté à la recherche de faibles traces.



ÉCHANTILLONNEURS PASSIFS

OGAWA

Existents en version NO, NO₂, NO_x, SO₂ et ozone

Version personnelle ou à poste fixe

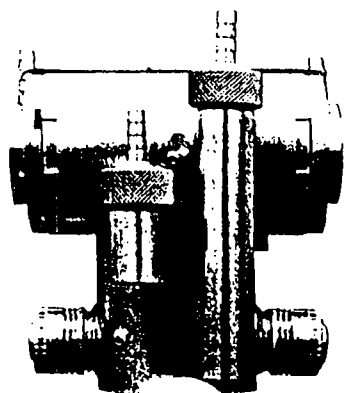
Excellente corrélation avec les mesures effectuées par analyseurs de gaz classiques

Durée d'exposition de 8 heures à 30 jours

REMARQUE : les échantillonneurs OGAWA ont été utilisés internationalement dans des campagnes concernant les oxydes d'azote et l'ozone.

Les coefficients de corrélation échantillonneurs passifs / actifs ont été exceptionnellement élevés (0,90 < R² < 0,97).

Air intérieur/hygiène industrielle



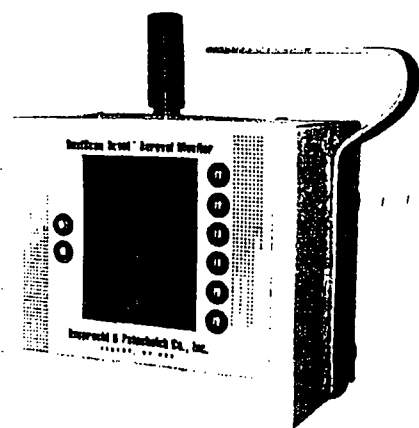
ÉCHANTILLONNEUR PERSONNEL MULTIPOLLUANTS R & P CHEMPASS

Regroupe jusqu'à 4 échantillonneurs actifs en un seul bloc de très faibles dimensions

Polluants : PM-10, PM-2,5, carbone organique, carbone élémentaire, sulfate et nitrate particulaire, NO₂, O₃

Pompe personnelle et harnais en option

APPLICATIONS : échantillonneur modulaire s'adaptant à l'analyse de tout ou partie des polluants cités ci-dessus.



ANALYSEUR DE POUSSIÈRES PORTATIF R & P DUSTSCAN SCOOT

Analyseur portatif utilisant le principe de la diffusion de la lumière

Optiques protégées par air filtré, autozéro

Gamme : de 0 - 500 µg/m³ à 0 - 100 mg/m³

Résolution : +/- 1 µg/m³

Débit J'aspiration : 2 l/mn

Accessoires : sélecteurs d'entrée pour la fraction thoracique et alvéolaire

Acquisition de données interne avec possibilité de visualisation à l'écran et déchargement par RS 232

Autonomie sur batterie : 6 heures

APPLICATIONS : mesure instantanée ou en continu de la concentration en poussières sur le lieu de travail. Possibilité de mesurer les fractions thoracique et alvéolaire.

Accessoires

ÉTALONS DE DÉBIT D'AIR BIOS

Étalon portatif à piston sans frottement

Alimentation sur batteries / secteur

Gamme : 1 ml/mn à 50 l/mn

Sortie imprimante

APPLICATIONS : étalon de transfert de très haute précision alimenté par batteries rechargeables. Existe en version " massive ". Idéal pour l'étalonnage de débitmètres et analyseurs. Ne contient aucun liquide susceptible de contaminer l'appareil à étalonner.

DÉBITMÈTRE ÉTALON

STREAMLINE Principe : mesure de perte de charge sur orifice calibré

Étudié pour l'utilisation sur site dans les conditions climatiques les plus rigoureuses

Gamme de débit total : de 1 à 20 l/mn

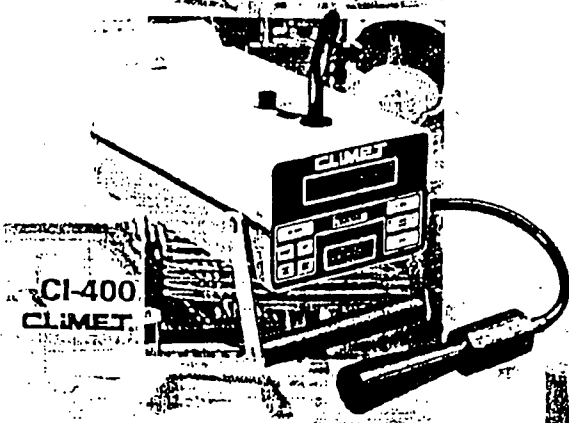
ECOMESURE

B.P. 13 - F-91640 Janvry

Tél : (+33) 01 64 90 55 55 - Fax : (+33) 01 64 90 55 66

E-mail : contact@ecomasure.com - www.ecomasure.com

Compteurs de particules



CI-400
CLIMET

SALLES BLANCHES
HÔTTES À FLUX LAMINAIRES
CONTRÔLE DES FILTRES HEPA
CONTRÔLE DE LA PURETÉ DES GAZ

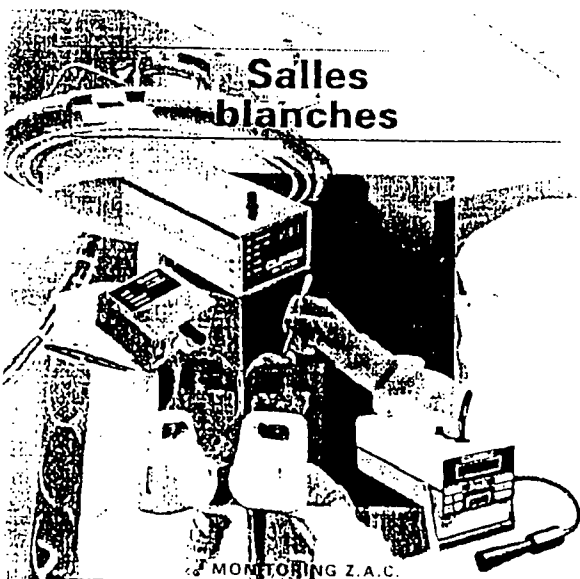
Collecteur de germes



Air Test
Omega

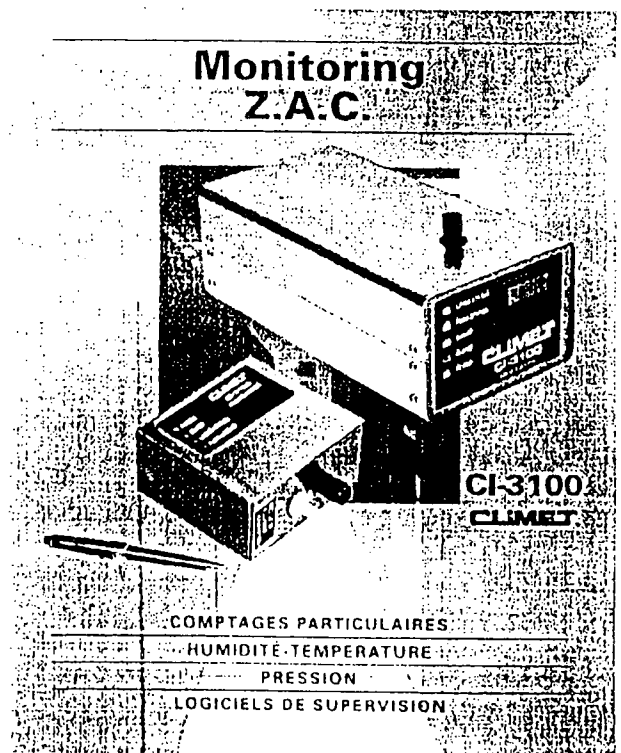
CONTRÔLE BACTÉRIOLOGIQUE DE L'AIR
BIOPLORE TOTALE / LEVURES / MOISSISURES
HYGIÈNE HOSPITALIÈRE
INDOOR AIR QUALITY

Salles blanches



MONITORING Z.A.C.
COMPTEURS DE PARTICULES
TEST SPOON MERY
COLLECTEURS DE GERMES
HÔTTES DE MESURE DE L'AIR
TEMPERATURE/HUMIDITÉ
PRESSION/VITESSE D'AIR

Monitoring Z.A.C.



CI-3100
CLIMET

COMPTAGES PARTICULAIRES
HUMIDITÉ-TEMPERATURE
PRESSION
LOGICIELS DE SUPERVISION

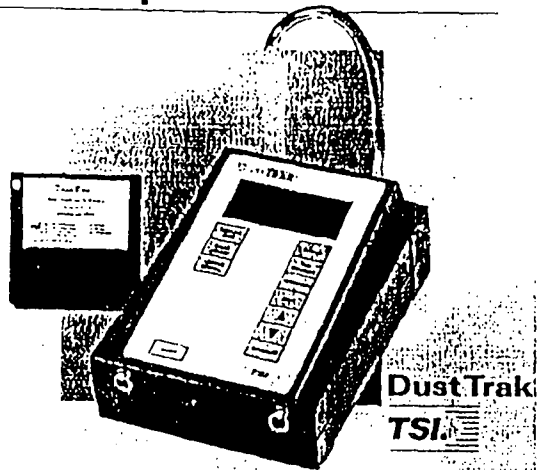


Intertek Testing Services
I.C.S.

B.P.1 - 91, rue du Général de Gaulle
27109 LE VAUDREUIL - France
Tél : 02 32 09 36 26 - Fax : 02 32 09 36 28

Contact : Mr BERTIN Pascal

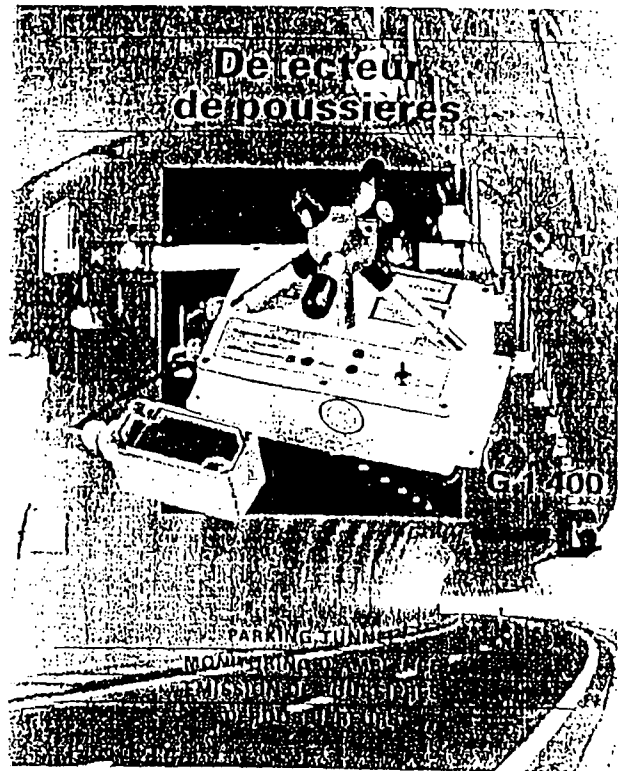
Compteur de poussières



Dust Trak
TSI

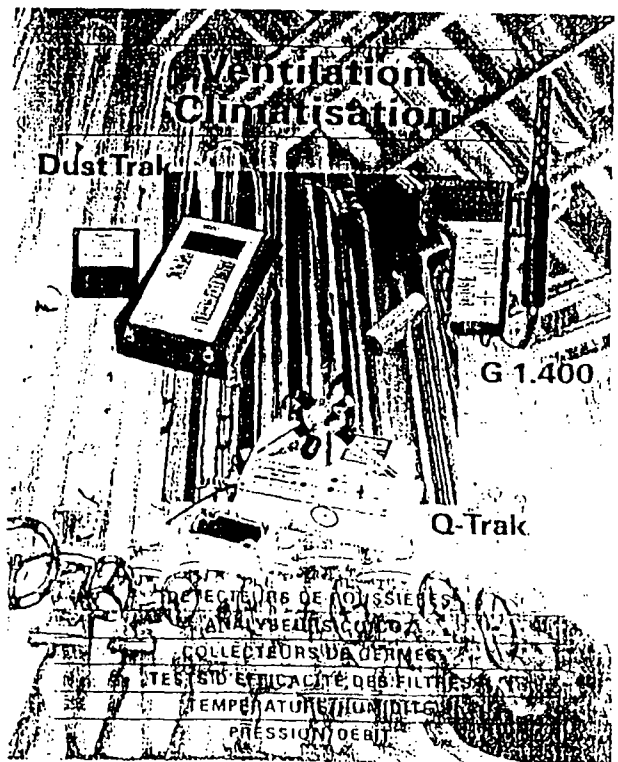
ETUDE GRANULOMÉTRIQUE
CARTOGRAPHIE
ETUDE DES POSTES DE TRAVAIL
EFFICACITÉ DES FILTRES

Decteur depoussieres



G 1.400

Ventilation Climatisation



Dust Trak

G 1.400

Q-Trak

Hygiène industrielle



Q-Trak

G 1.105

COMPTEURS DE POUSSIÈRES
ANALYSEURS DE O₂
COLLECTEURS DE GERMES
ANALYSEURS DE RADON
PRÉLEVEURS INDIVIDUELS DE POUSSIÈRES
TESTS D'EFFICACITÉ DES MASQUES RESPIRATOIRES

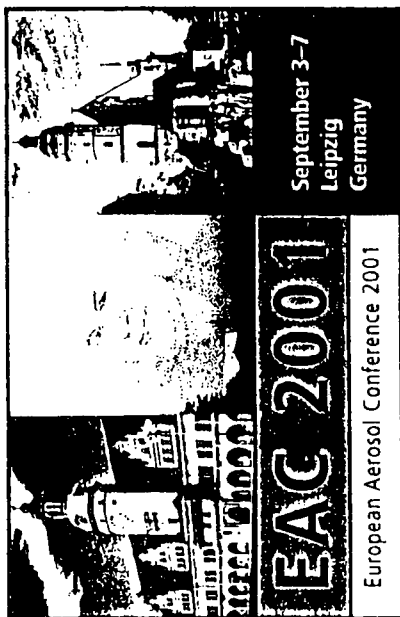
DÉTECTEURS DE POUSSIÈRES
ANALYSEURS CO₂
COLLECTEURS DE GERMES
TESTS D'EFFICACITÉ DES FILTRES
TEMPÉRATURE HUMIDITÉ
PRESSION OERBT



Intertek Testing Services
I.C.S.

B.P.1 - 91, rue du Général de Gaulle
27109 LE VAUDREUIL - France
Tél : 02 32 09 36 26 - Fax : 02 32 09 36 28

Contact : Mr BERTIN Pascal



1

Organisers

European Aerosol Assembly (EAA)
Gesellschaft für Aerosolforschung (GaeF)
Institute for Tropospheric Research (IFT)

2

Scientific Program Committee

Local Members
Albert Ansmann
Jost Heintzenberg
Olf Herbarth
Hartmut Herrmann
Eberhard Renner
Frank Stratmann
Alfred Wiedensohler (chair)

3

Organising Committee

Hartmut Haudek (multi-media)
Andrea Mehliose (administrator)
Gunthard Metzig (registration)
Alfred Wiedensohler (chair)

4

Conference Topics and Special Sessions

Aerosol chemistry
Aerosol instrumentation
Aerosol modelling
Aerosol standards
Atmospheric aerosols
Bioaerosols
Combustion aerosols
Fundamental aerosol physics
Health aspects of aerosols
Indoor aerosols
Industrial aerosols
Radioactive aerosols

Special sessions with only solicited talks
Please, ask the scientific program chair for further information

5

Invited Speaker

Plenary lectures will be given by:
Peter Brimblecombe (organics and metals in urban aerosols)
Bob Charlson (aerosol forcing of climate)
Adolf Ebel (mesoscale pollution models)
Pete McMurry (measurements of the composition of ultrafine aerosols)
Sotiris Pratsinis (aerosols in material manufacture)

6

Exhibition

Companies involved in the development of aerosol instrumentation and applications will have opportunities to present their products in an exhibition.
Companies interested in participating should contact:
Dr. Gunthard Metzig
Forschungszentrum Karlsruhe FTU
Postfach 3640
76021 Karlsruhe, GERMANY
Tel.: + 49 - 7247 - 82 - 2262
Fax.: + 49 - 7247 - 82 - 4857
E-mail: metzig@ftu.fzk.de

7 Call for Papers

Potential authors are invited to submit a 2-page abstract related to one of the topics listed above. The abstracts will be reviewed according to scientific content, suitability for the conference proceedings and form. Please submit your abstract in camera-ready form according to the guidelines for publication in the Journal of Aerosol Science. Sample abstract file formats for different word-processing programs and the abstract questionnaire form can be downloaded from the conference homepage: <http://www.tropos.de/EAC2001>

Submit your abstract by email attachment or by regular mail to the Conference Secretary address provided below.

8 Dates and Deadlines

2-page abstract final form February 15, 2001
Notification of authors May 31, 2001
Early registration ends June 30, 2001
Conference September 3-7, 2001

Abstracts for late posters may be submitted up to one week before the conference. Please, contact the Conference Secretary for further instructions.

9 Conference Language

The conference language will be English.

10 Registration Fee

Fee before July 1, 2001
EAA members 350 DM
non-members 500 DM
students 200 DM
Fee after July 1, 2001
EAA members 500 DM
non-members 650 DM
students 250 DM

11 Conference dinner

60 DM per person
20 DM for students

12 Payment

Payment can be made by creditcard, check or by remittance in DM to the following account:

Name of the bank: Bspa Graben-Neudorf
Address of the bank: Postfach 1160
76670 Graben-Neudorf, GERMANY

Name of the account: GAeF (Dr. Metzsig)

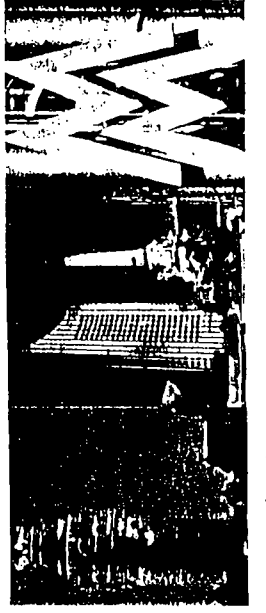
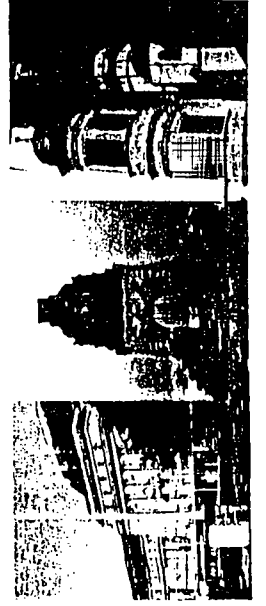
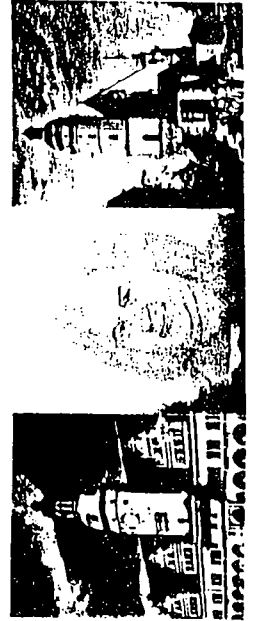
German bank code: 660 513 26

Account: 040 00840

International bank account number: DE17 6605 1326 0004 0008 40

13 Accomodations

Accommodations will be organised by the Saxonia Touristik International GmbH, Leipzig. The accommodation reservation form can be downloaded from the conference homepage.



14

Conference Venue

The conference will take place in the Seminar-Room Building at the University of Leipzig located in the city of Leipzig.

15

Social Program

Sunday evening, all participants are invited to the ice-breaking party to be held at the Moritzbastei located near the Seminar-Room Building.

All participants are invited to a Bach organ-recital at the Thomas Church for Tuesday evening.

The Conference Dinner will take place in the famous Auerbachskeller Wednesday evening.

On Thursday afternoon, all participants are cordially invited to an informal reception and laboratory tour hosted by the Institute for Tropospheric Research.

16

Conference Secretary Address

Secretary EAC 2001

c/o Andrea Mehlhose

Institute for Tropospheric Research

Permoserstr. 15

04318 Leipzig

GERMANY

Tel.: + 49 - 341 - 235 - 2274

Fax: + 49 - 341 - 235 - 2361

email: EAC2001@tropos.de

LISTE ALPHABETIQUE DES AUTEURS

AITKEN R.J.
ALFARO S.
ALLOUL-MARMOR L.
AMEON R.
ANTOINE H.
APPERT-COLLIN J.C.
ASSAF B.

BALKANSKI Y.
BASSO G.
BEAUMONT G.
BEMER D.
BENOIT G.
BOISSIER M.
BORDENAVE J.
BORRA J.P.
BOULNOIS G.

CACHIER H.
CALLE S.
CHANTREL G.
CHAZETTE P.
CONTAL P.

DEBRY E.
DIOT P.
DUPUY R.

FABRIÈS J.F.
FAUVEL S.
FISCHER N.
FLAMANT C.

GAFFET B.
GARIVAIT S.
GAUDICHET A.
GEHIN E.

GENSDARMES F.
GÖRNER P.
GÖRNER P.
GOUALIN N.
GOUESBET G.
GREHAN G.
GRIMBERT D.
GRINSHPUN S.
GUITARD N.

HAN Y.

KENNY L.C.
KOCH W.
KOMHOUT H.

LABORDE J.C.
LACAZE I
LAJ P.
LARZILLERE D.
LIDÉN G.
LIU W.

MAILFERT E.
MARK D.
MAZOUÉ S.
MEES L.
MEUNIER-GUTTIN-CLUZEL S.
MICHIENSEN N.
MOEHLMANN C.
MONNATTE J.
MOREAU R.
MOULARAT S.
PAUGAN L.
PREVOST C.

QUISEFIT J.P.

RANDRIAMIARISOA H.
REN K.F.
RENOUX A.
RIGO M.O.
ROBINE E.

SANAK J.
SCHULZ M.
SELLEGRI K.
SICARD M.
SPORTISSE B.
STEINER E.

TANGUIER J.L.
TESSAURO V.
THOMAS D.
TYMEN G.

UNGER L.

VECELLIO NONE L.
VOISIN V.

WITSCHGER O.
WROBEL R.
WU S.Z.

ZOULALIAN A.

LISTE DES PARTICIPANTS DU CONGRES CFA 2001

ALLOUL-MARMOR L.

IPSN/DPEA/SERAC

CEA/SACLAY

91191 Gif-sur-Yvette Cédex

tél : 01.69.08.60.00

ANTOINE H.

CSTB

4. rue du Recteur Poincaré

785782 Paris Cédex 16

ASSAF B.

Université Henri Poincaré NANCY 1

B.P. 239

54506 Vandoeuvre-Les-Nancy Cédex

ATTOUI M.

LPATC - Université Paris XII

Av. du Général de Gaulle

94010 Créteil Cédex

tél : 01.45.17.13.56

fax : 01.45.17.13.61

BENESSE M.

Ecole des mines de Nantes

BOISSIER M.

CSTB

Centre Scientifique

et Technique du bâtiment

4 avenue du Recteur Poincaré

75782 Paris Cédex 16

BOULAUD D.

IPSN/DPEA/SERAC

CEA/SACLAY

91191 Gif-sur-Yvette Cédex

tél : 01.69.08.26.74

fax : 01.60.19.30.61

BOULNOIS M.O

CNRS

BOUSCAREN R.

CITEPA

CHAMBRE

ECOMESURE

3, rue du Grand Cèdre

91640 Janvry

tél : 01.64.90.55.55

fax : 01.64.90.55.66

CHOUARD J. C.

IPSN/DPEA/SERAC

CEA/SACLAY

91191 Gif-sur-Yvette Cédex

CREPAT G.

ISBE

DEBRY E.

**Ecole Nationale des Ponts et
chaussée - CEREVER**

6-8 Av. Blaise Pascal-Cité Descartes

Champs sur Marne

77455 Marne la Vallée

DECORNE R.

DESS - SAGA

Université Paris XII

Av. du Général de Gaulle

94010 Créteil Cedex

DERBEZ M.

**APPA et Revue « Pollution
Atmosphérique »**

10, rue Pierre Brossolette

94270 Le Kremlin-Bicetre

tél : 01.42.11.15.01

fax : 01.42.11.15.14

DOUCE A.

EDF - Recherche & Développement

6 quai Watier - B.P. 49

78401 Chatou Cédex

FABRIES J. F.

**Institut de Protection et de Sûreté
Nucléaire**

B.P. 6

92265 Fontenay-aux-Roses Cédex

FAUVEL S.
IPSN/DPEA/SERAC
CEA/SACLAY
91191 Gif-sur-Yvette Cédex

FAZILEABASSE J.
EDF-DRD
6. Quai Watier BP-49
78401 Chatou Cédex

FISCHER N.
RATP
CGF-Comptabilité Fournisseurs
Lac C52
54, quai de la Rapée
75599 Paris Cédex 12

FRISING T.
CNRS
1, rue Grandville
B.P.451
54001 Nancy Cédex

FRITSCH R.
ISBE

GARBAY C.
DESS - SAGA
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 Créteil Cédex

GEHIN E.
LPATC - Université Paris XII
Av. Général de Gaulle
94010 Créteil Cédex
tél : 01.45.17.13.55
fax : 01.45.17.13.61

GENTRY J.
GSF-IHB
NEUHERBERG GERMANY

GORNER P.
Institut de Protection et de Sûreté
Nucléaire
B.P. 6
92265 Fontenay-aux-Roses Cédex

GOUESBET G.
LESP INSA de Rouen URA
CNRS 230, CORIA BP 08
76131 Mont St Aignan
tél : 02.35.52.83.92

GREHAN G.
LESP INSA de Rouen URA
CNRS 230, CORIA BP 08
76131 Mont St Aignan
tél : 02.35.52.83.87

HA T.L.
CSTB
4 Avenue du Recteur Poincaré
75782 Paris Cédex 16

HAN
CNRS

HERLEM Sully
DESS - SAGA
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 Créteil Cédex

HERVE P.
LEEE de l'université Paris X
1, chemin Dévallières
92410 Ville d'Avray
tél : 01.47.09.70.13
fax : 01.47.09.16.45

HOU F.
L.E.E.E. de l'université Paris X
1, chemin Dévallières
92410 Ville d'Avray

HUE J.
CEA
17, avenue des martyrs
38054 Grenoble Cédex 09

LABORDE J.C.
IPSN/DPEA/SERAC
CEA/SACLAY
91191 Gif-sur-Yvette Cédex
tél : 01.69.08.60.00

LACAN J.
IPSN/DPEA/SERAC
CEA/SACLAY
91191 Gif-sur-Yvette Cédex
tél : 01.69.08.60.00

LAPUENTE-TREFOIS A.

IPSN/DES

92265 Fontenay-aux-Roses

LEBIHAN O.

INERIS

B.P. N°7

60550 Verneuil-en-Halatte

LECLAIR DE BELLEVUE J.

DESS - SAGA

Université Paris XII

Av. du Général de Gaulle

94010 Créteil Cédex

LE DUR D.

ECOMESURE

3, rue du GRAND Cèdre

91640 JANVRY

LETOFFE C.

EDF - Recherche &

Développement

6, quai Watier

78401 CHATOU

MACE T.

Laboratoire National d'Essais

Direction Finances et Comptabilité

1, rue Gaston Boissier

75724 Paris Cédex 15

MALET J.

IPSN/DPEA/SERAC

CEA/SACLAY

91191 Gif-sur-Yvette Cédex

MATHIEU P.

DESS - SAGA

Université Paris XII

Av. du Général de Gaulle

94010 Créteil Cédex

MATTOUT R.

BERTIN TECHNOLOGIES

Parc d'activité du Pas du Lac

10, av. Ampère - B.P. 284

78053 St Quentin-en-Yvelines Cédex

MAZOUÉ S.

RATP

CGF-Comptabilité Fournisseurs

Lac C52

54, quai de la Rapée

75599 Paris Cédex 12

MEES M.

CNRS

Université de Rouen

76130 Mont Saint Aignan

MICHIELSEN N.

IPSN/DPEA/SERAC

CEA/SACLAY

91191 Gif-sur-Yvette Cédex

MOCHO V.

IPSN/DPEA/SERAC

CEA/SACLAY

91191 Gif-sur-Yvette Cédex

tél : 01.69.08.60.00

MOREL G.

EDF - Recherche &

Développement

6, quai Watier

78401 Chatou

MOULARAT S.

CSTB

4 Avenue du Recteur Poincaré

75782 Paris Cédex 16

PERRIN M. L.

**Institut de Protection et de Sûreté
Nucléaire**

B.P. 6

92265 Fontenay-aux-Roses Cédex

tél : 01.46.54.86.13

fax : 01.46.54.88.29

PERROT C.

Laboratoire National d'Essais

Direction Finances et Comptabilité

1, rue Gaston Boissier

75724 Paris Cédex 15

PILOT G.

IPSN/DPEA/SERAC

CEA/SACLAY

91191 Gif-sur-Yvette Cédex

tél : 01.69.08.60.00

PREVOST C.
IPSN/DPEA/SERAC
CEA/SACLAY
91191 Gif-sur-Yvette Cédex

QUISEFIT J. P.
LISA - UNIVERSITE PARIS 7

RENOUX A.
LPATC- Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 Créteil Cédex
tél : 01.45.17.13.62
fax : 01.45.17.13.61

ROBINE E.
CSTB
Centre Scientifique et Technique du
batiment
4 avenue du Recteur Poincaré
75782 Paris Cédex 16

SCHWELL M.
LISA - UNIVERSITE PARIS 7

SIMON E.
DESS - SAGA
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 Créteil Cédex

SLOIM M.
Préfecture de Police
Laboratoire Central
39 bis rue de Dantzig
75015 Paris
tél : 01.55.76.20.00
fax : 01.55.76.27.05

TEVANE-MARIAYE P.
DESS - SAGA
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 Créteil Cédex

THOMAS D.
CNRS
1, rue Grandville
B.P.451
54001 Nancy Cédex
tél : 03.83.17.51.97
fax : 03.83.32.29.75

TIRET R.
DESS - SAGA
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 Créteil Cédex

TYMEN G.
LARAAH/ URF Sciences
6, av. V. Le Gorgeu B.P. 809
29286 Brest Cédex
tél : 02.98.01.62.44
fax : 02.98.01.67.23

UNGER L.
LPGP / EDEE UMR 8578 du
CNRS
Ecole Sup.d'électricité
Plateau de Moulon
91192 Gif sur Yvette
tél : 01.69.85.17.76
fax : 01.69.41.03.34

VANDRIESSCHE S.
ASPEC
10, bd Diderot
75012 Paris
tél : 01.44.74.67.00
fax : 01.44.74.67.10

VECELLIO NONE L.
INSERM (service de pneumologie)
CHU Bretonneau
37044 Tours Cédex 1
tél : 02.47.36.61.95/93
fax : 02.47.36.61.96

VERDIER A.
BERTIN TECHNOLOGIES
Parc d'activité du Pas du Lac
10, av. Ampère - B.P. 284
78053 St Quentin-en-Yvelines Cédex

VERNIER D.
DESS - SAGA
Université Paris XII
Av. du Général de Gaulle
94010 Créteil Cédex

VICARD J. F.
STRATENE
129 rue Servient
69326 Lyon Cédex 03
tél : 04.78.38.44.35
fax : 04.78.38.44.36

VOISIN V.

IPSN/DPEA/SERAC

CEA/SACLAY

91191 Gif-sur-Yvette Cédex

WITSCHGER O.

IPSN/DPEA/SERAC

CEA/SACLAY

91191 Gif-sur-Yvette Cédex

tél : 01.69.08.50.61

fax : 01.60.19.30.61

ZOULALIAN A.

Université Henri Poincaré NANCY 1

B.P. 239

54506 Vandoeuvre-Les-Nancy Cédex