

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 2002

ACTES DU 18^{EME} CONGRES FRANÇAIS

SUR les AEROSOLS

PARIS, 11 - 12 DECEMBRE 2002

18^{EME} CONGRES FRANÇAIS SUR LES AEROSOLS C F A 2002

11 et 12 Décembre 2002

SOMMAIRE

	<i>Pages</i>
Éditorial par le Dr. D. BOULAUD, Président de l'ASFERA.	1
Un mot du Président d'Honneur de l'ASFERA	3
AEROSOLS ET ENVIRONNEMENT	
Inventaire des émissions de particules primaires – décembre 2001	5
S. SAMBA, B. OUDART, J.P. FONTELLE, S. BEGUIER, J.P. CHANG, L. DUVAL ; CITEPA, Paris	
Site urbain, site rural : étude saisonnière de la charge particulaire atmosphérique et influence réciproque.	11
F. LEDOUX, S. BOUHSINA, L. COUCOT, E. PUSKARIC, Laboratoire Interdisciplinaire en Sciences de l'environnement, Université du Littoral, Côte d'Opale.	
Influence d'une répartition granulométrique large sur l'envol de particules	17
I. DESCAMPS, J.L. HARION, B. BAUDOIN ; Ecole des Mines, Douai.	
Spéciation des métaux PB, ZN CD dans les poussières en suspension dans l'air ambiant par extractions chimiques et par ESEM-EDS automatisé	23
G. LECORNET(1), E. PERDRIX(1), P. DELALAIN(2) ; (1) école des mines, Douai ; (2) INERIS, Verneuil-en-Halatte.	
Concentration particulaire dans l'habitacle automobile	31
M. WEILL (1), F. GOURIOU (2) ; (1)UMRS 6614-CORIA Saint Etienne du Rouvray, (2)CERTAM, St Etienne du Rouvray.	
Origines et distribution granulométrique de l'aérosol d'une station souterraine du métro parisien	37
N. FISCHER(1,2), S. MAZOUÉ(1), E. GÉHIN(2), A. RENOUX(2) ; (1)RAPT, PARIS ; (2) LPATC, Université Paris XII.	

METROLOGIE - INSTRUMENTATION

Détermination expérimentale de facteurs de forme dynamique par comparaison des techniques Coulter et Impacteur en cascade	43
O. WITSCHGER(1), R. WROBEL(1), G. BASSO(2), S. FAUVEL(2), F. GENSDARMES(2) ; (1) INRS, Vandoeuvre ; (2) IRSN/DPEA/SERAC, Gif Sur Yvette.	
Etude en laboratoire et sur le terrain du système Caltool	49
S. FAUVEL(1), G. BASSO(1), O. WITSCHGER (2) ; (1) IRSN/DPEA/SERAC, Gif Sur Yvette ; (2) IRNS, Vandoeuvre.	

- Détermination de la distribution dimensionnelle du ²¹⁸Po Nanométrique en atmosphère contrôlée à partir de deux nouveaux systèmes** 57
 N. MICHELSEN(1), G. TYMEN(3), A. VARGAS(2), M. RIO(2), X. ORTEGA(2) ;
 (1) IRSN, DPEA/SERAC/LPMAC, Gif sur Yvette ;
 (2) Institut Techniques Energétiques, Barcelona, Spain ;
 (3) Laboratoire de Recherches Appliquées Atmosphère Hydrosphère, Université de Bretagne Occidentale, Brest.
- Propriétés des suies Diesel. Détermination de l'indice de réfraction.** 65
 P. VAN HULLE, M. TALBAUT, C. COPPALLE, M. WEILL ; UMR 6614-CORIA, Saint Etienne du Rouvray.

PHYSIQUE DES AEROSOLS

- Étude de la Production d'Iode gazeux par un aérosol d'iodure de Cesium Soumis à des températures élevées** 71
 F. Deschamps(1), J.C. SABROUX(2) ; (1) Hémisphères, Le Plessis-Robinson ; (2) Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire, Gif sur Yvette.
- Modélisation de la condensation de vapeur sur une goutte et étude de la technique Arc-en-ciel globale en vue de mesurer la température des gouttes** 77
 P. LEMAITRE(1), G. GREHAN(2), J. MALLET(1), E. PORCHERON(1), P. CORNET(1), J. VENDEL(1) ;
 (1) IRSN/DPEA/SERAC, Gif sur Yvette ; (2) UMR 6614-CORIA, Saint Etienne du ROUVRAY.
- Évaluation du facteur de mise en suspension de contaminants radiologiques en conditions de transport.** 85
 A. DOUCE, D. HAMEAU, C. LETOFFE, G. MOREL, F. SAINTAMON ;
- Modélisation de la dynamique des aérosols atmosphériques : couplage à la thermodynamique et insertion dans un modèle de Dispersion 3D** 91
 E. DEBRY, B. SPORTISSE ; ENPC, CEREVERE, Champs Sur Marne.
- Étude des résonances morphologiquement dépendantes** 97
 J. DUCASTEL, L. MEES, G. GREHAN, G. GOUESBET ; LESP, Saint Etienne du Rouvray.
- Filtration d'aérosol submicronique par coagulation bipolaire.** 103
 L. UNGER, P. EHOJARN, J.P. BORRA ; Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas, Gif Sur Yvette.

AEROSOLS ET SANTE

- Mesurage de bioaérosols au cours du traitement des eaux usées et du traitement des déchets urbains.** 109
 P. GÖRNER(1), J.F. FABRIES(1), O. WITSCHGER(1), G. GREFF-MIRGUET(1), L. MATHIEU (2) ; (1) INRS, Vandoeuvre ; (2) EPHE, Vandoeuvre les Nancy.
- Etude du développement des aérosols fongiques sur les produits de construction.**
 M. BOISSIER(1,2), E. ROBINE(1), E. GEHIN (2), A. RENOUX(2); (1) Centre Scientifique et Technique du bâtiment, Marne La Vallée ; (2) LPATC, Université Paris XII, Créteil.
- Mise au point et validation d'une méthode gravimétrique pour mesurer la masse inhalable des aérosols médicamenteux produits par nébulisation.** 125
 L. VECELLIO NONE(1), D. GRIMBERT(1), J. BORDENAVE(2), G. BENOIT(2), Y. FURET(3),
 B. FAUROUX(4), E. BOISSINOT(1), E. LEMARIE(1), P. DIOT(1) ; (1) INSERM EMI-U 00-10, Tours ; (2) Hôpital Armand Trousseau, PARIS ; (3) CHU Bretonneau, Tours ; (4) INSERM EMI-U 02-13, PARIS.
- Mise au point d'un modèle expérimental de charbon d'inhalation pour l'évacuation de protocoles prophylactiques et thérapeutiques.** 131
 J.C. PAUCOD(1), Y. GAUTHIER(1), F. RAMISSE(2), C. LOUVEAU(2), P. GOOSSENS(3), MA. LABARRE(2), M. LEVY(3), M. MOCK(3) et D. VIDAL(1) ;
 (1) Centre de recherche du Service de Santé des Armées « Emile PARDE », LA TRONCHE (38702) ; (2) Centre d'études du Bouchet, VERT LE PETIT (91710) ; (3) Institut Pasteur, PARIS

FILTRATION

- Performances des dépoussiéreurs à manches. Étude sur média plan et sur pilote.** 137
X. SIMON(1,2), S. CALLE(2), D. BEMER(1), D. THOMAS(2), R. REGNIER(1) ; (1) INRS, Vandoeuvre ;
(2) CNRS/LSGC, Nancy.
- Facteurs influençant le colmatage des filtres THE industriels par les aérosols formés en cas d'incendie.** 143
J.C. LABORDE, V.M. MOCHO ; Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, Gif sur Yvette.
- Filtration d'aérosols liquides : Influence de cycles de colmatage.** 151
T. FRISING(1), D. THOMAS(2), P. CONTAL(1), D. BEMER(2), D. LECLERC(1) ; (1) Laboratoire des Sciences du Génie
Chimique, Nancy ; (2) Institut National de Recherche et de Sécurité, Vandoeuvre Les Nancy.
- Étude du comportement de filtres industriels deshuileurs coalesceurs.** 157
L. BABUT(1), E. GONZE(1), A. BERNIS(1), R. CORRADINI(2) ; (1) ESIGEC, Le Bourget Du Lac ;
(2) Lautrette industries, Argenteuil.
- Étude théorique et expérimentale de la trajectoire des particules dans les électrofiltres à géométrie
fil-cylindre en tension positive continue et à faible temps de séjour.** 163
R. BOICHOT, E. GONZE, A. BERNIS ; ESIGEC, Le Bourget Du Lac.
- Influence des caractéristiques de l'aérosol d'entrée sur l'efficacité d'un filtre électrostatique.** 169
S. TOKAREK(1), S. ROSALIE(1), A. BERNIS(2) ; (1) RAPT, Paris ; (2) ESIGEC, Le Bourget Du Lac.
- Analyse des deux premiers essais du programme experimental PHEBUS P.** 175
M. KISSANE; DRS/IRSN, Saint-Paul-lez-Durance.

EXPOSANTS : ECOMESURE, ITS, ACIL

183

L'EUROPEAN AEROSOL CONFERENCE, EAC



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 18^{ème} Congrès Annuel (CFA 2002) s'est donc tenu à l'INA Paris les 11 et 12 décembre 2002. A cette occasion, nous avons pu réunir plus de 110 participants qui ont assisté à 33 communications dont deux conférences plénières présentées par Christian George du Laboratoire d'Application de la Chimie à l'Environnement de l'Université de Lyon et Monsieur Martin Kissane de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire de Cadarache. Ces conférences ont particulièrement intéressé l'assistance en abordant des sujets très différents mais touchant, toutes deux, à des thèmes toujours d'actualité : l'impact des aérosols sur la chimie de l'atmosphère d'une part et le transfert de contamination en phase aérosol lors d'un accident grave de réacteurs à eau pressurisée, d'autre part .

Le CFA 2002 est dans la tradition des CFA précédents, nous y retrouvons cinq grandes sessions :

- aérosols et environnements,
- métrologie des aérosols et instrumentation,
- physique des aérosols,
- aérosols et santé,
- filtration.

Du 8 au 13 septembre 2002 s'est tenue à Taipei, Taiwan, l'International Aerosol Conference 2002 qui a réuni plus de 700 participants. Au cours de cette conférence, Marjorie Boissier, a présenté brillamment ses travaux sur la colonisation des matériaux de construction par les aérosols fongiques qui lui ont valu le prix Jean Bricard 2002 décerné par notre association. Cette communication a été reprise au cours de notre CFA 2002 lors de la session « Aérosols et santé ». Ce prix a été remis solennellement à Marjorie Boissier par Jean François Fabries, vice Président de l'ASFERA, à la fin de la première journée de notre conférence. Je vous rappelle que ce prix récompense un(e) jeune chercheur(se) pour une contribution importante et originale dans le domaine de la Science des aérosols .

Par ailleurs, durant cette conférence de Taipei, Evelyne Géhin et moi-même avons représenté l'ASFERA au bureau directeur de l'European Aerosol Assembly (EAA). A cette occasion, nous avons décidé d'accepter la candidature de l'association Tchèque pour devenir membre de l'EAA, retenu la proposition faite par l'association Hollandaise de tenir l'EAC 2005 à Gand, et renouvelé le contrat qui lie le Journal of Aerosol Science avec l'EAA. A cet égard, je vous rappelle que ce contrat vous permet, si vous êtes membre de l'ASFERA, d'avoir un abonnement à un prix très avantageux qui est de 80 Euros en 2003.

A Taipei, toujours, Evelyne Géhin et moi-même avons représenté l'ASFERA au bureau directeur de l'International Aerosol Research Assembly. Les principales décisions prises ont été les suivantes : acceptation de la candidature de l'association Coréenne pour devenir membre de l'IARA, et déroulement du prochain IAC en 2006 à Saint Paul aux Etats Unis. Par ailleurs, je vous rappelle que sous les auspices de l'IARA un site web a été créé et développé "*Aerosolonline.com*" où l'on commence à trouver une vaste documentation scientifique et technique sur la physique et la métrologie des aérosols.

A cet égard, l'ASFERA, aussi, s'est dotée de son site www.asfera.org qui est opérationnel depuis plus d'un an. Ainsi, pour les prochains CFA comme pour cette année, 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, cette année, avec une grande satisfaction, la présence de quatre exposants lors de notre conférence (*ECOMESURE, GRIMM, ITS et TOPAS*).

Une fois encore, je remercie le bureau de l'ASFERA qui a construit ce programme du CFA 2002, avec une mention toute particulière pour notre secrétaire générale et trésorière 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, Mesdames Stéphanie Judée, Doris Ozier-Lafontaine et Isabelle Porcon secrétaires du LPATC et du CERTES de l'université Paris 12 qui ont assuré la préparation et l'édition des résumés et des actes.

Comme les autres années, je vous incite à participer activement à l'EAC 2003 qui se tiendra à Madrid, du 31 août au 5 septembre 2003 (<http://aphys.uned.es/EAC2003>) montrant ainsi le dynamisme de notre recherche en Science des Aérosols, et je vous donne rendez-vous pour le CFA 2003, qui se tiendra à l'INA Paris les 10 et 11 décembre 2003.

Enfin, ce CFA 2002 a été pour moi l'occasion de rendre hommage à l'action du Professeur André Renoux qui vient de partir en retraite en cette fin d'année 2002. En effet, l'ASFERA lui doit beaucoup car c'est à son initiative et par deux fois qu'il a su créer et développer cette association et lui permettre d'atteindre le niveau de reconnaissance qu'elle a, tant sur le plan national qu'international. Qu'il reçoive cet hommage comme le témoignage de mon estime et de mon amitié.

Denis BOULAUD
Président de l'ASFERA

UN MOT DU PRESIDENT D'HONNEUR DE L'ASFERA.

Dans la soirée du mercredi 12 Septembre 2002, dans la splendide salle de réception du TAIPEH INTERNATIONAL CONVENTION CENTER (TAIWAN) et devant plus de 800 personnes venues d'une trentaine de pays différents, notre président Denis BOULAUD a reçu la plus haute récompense mondiale en Science des Aérosols : le IARA FELLOW AWARD (IARA pour International Aerosol Research Assembly). Ce prix prestigieux est décerné tous les deux ans par un Jury international de 6 Membres. Denis BOULAUD a reçu son prix des mains du Président du Jury le Professeur SHAPIRO (ISRAEL), en présence du Professeur CLARK, Président de l' IARA .

Docteur ès Sciences de l' Université de PARIS, Chef de Service à l' IRSN, Directeur de Recherche au CEA, Professeur à l' INSTN, nous savons tous que LE Dr. Denis BOULAUD allie des qualités scientifiques exceptionnelles à des qualités humaines de même niveau. Pour ma part, je n'oublie pas tout le soutien qu'il m'a apporté dans mes activités de recherche et d'enseignement de 3^{ème} cycle à l'Université PARIS 12, puisqu'il m'a fait l'honneur et l'amitié d'être le Directeur Adjoint de mon DESS Science des Aérosols Génie de l'Aérocontamination. Et je sais qu'il apportera le même concours à notre Secrétaire Générale Evelyne GEHIN qui depuis le 1^{er} octobre 2002 me succède dans TOUTES MES ACTIVITES à PARIS 12.

Obtenu devant deux candidats prestigieux, le Professeur HORVATH (Académie des Sciences d'Autriche) et le Dr. Suzanne HERING (U.S.A.), cet honneur conféré à notre Président et Ami Denis BOULAUD, rejaillit, bien entendu sur toute la Recherche française en Science des Aérosols.

André RENOUX

Président d'honneur de l'ASFERA

SOUVENIRS DU BOUT DU MONDE

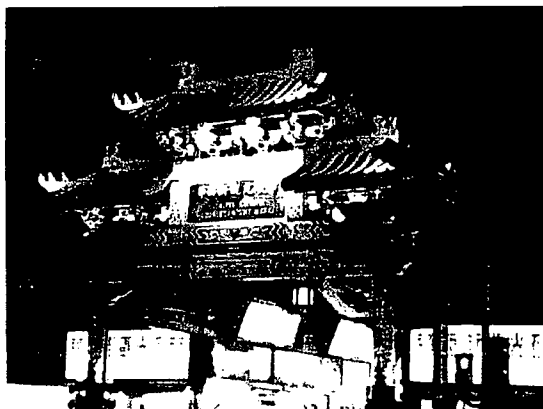
En septembre 2002, j'ai eu le plaisir de participer à la 6^{ème} Conférence Internationale sur les Aérosols qui s'est tenue bien loin de chez nous, dans la capitale de Taiwan.

Le dépaysement fut total. Après 14 heures de vol, atterrissage à Taipei, la mine un peu chiffonnée mais définitivement heureuse de retrouver le plancher des vaches. A la descente d'avion la chaleur et l'humidité ajoutés au décalage horaire (6 heures tout de même) finissent de vous assommer. Mais après quelques heures de sommeil dans un hôtel où le nombre d'étoiles n'a visiblement pas la même signification qu'en France (les services proposés y sont largement supérieurs), vous êtes prêts à partir à la découverte d'une ville sans cesse en activité (les magasins y sont ouverts tous les jours de 10h à plus de 22h) et où les scooters sont aussi nombreux que les habitants.

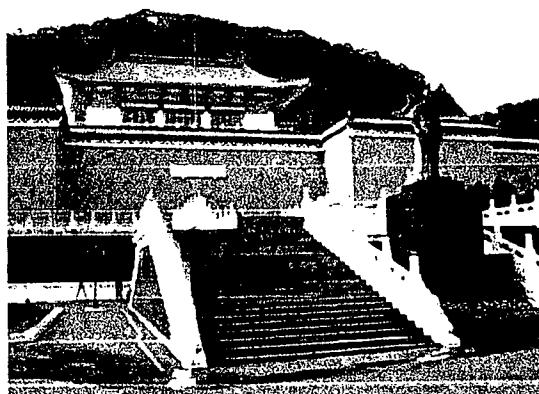
Concernant la conférence, une session spéciale était dédiée aux problèmes rencontrés essentiellement en Asie, avec notamment une étude portant sur les poussières émises par la combustion de l'encens.

Outre de me permettre de découvrir un pays et une culture différents, cette conférence fut, pour moi, l'occasion de présenter mes travaux en anglais, pour la première fois.

Cette chance m'a été offerte par les membres du bureau de l'ASFERA qui m'ont attribué le Prix Jean-Bricard pour mon travail de thèse réalisé au Centre Scientifique et Technique du Bâtiment. Qu'ils trouvent ici toute l'expression de ma gratitude.



Marché de nuit



National Palace Museum

Marjorie BOISSIER

INVENTAIRE DES EMISSIONS DE PARTICULES PRIMAIRES – DECEMBRE 2001

S. Sambat* (1), B. Oudart, J.P. Fontelle, S. Béguier, J.P. Chang, L. Duval

CITEPA (Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique), 75010 Paris.

(1) sonia.sambat@citepa.org

TITLE

Emission inventory of primary particles – December 2001

ABSTRACT

CITEPA carried out a particulate emission inventory for a great number of sectors on the national level. The total amount of TSP (Total Suspended Particles) emissions estimated rised with 1800 kilotons in 1990 and 1600 kilotons in 2000, those of particles with diameter less than 10 micrometers represent 36% of total TSP emissions. This part is about 20% for PM2.5 and 13% for PM1.0. The significant increase of the emissions from road transport (+11.9%), during the 1990-2000 period is essentially due to the increase in fugitive emissions (road, brakes and tires abrasion). The number of open burning of agricultural wastes rised from 1990 to 2000 what involves also a significant growth in the emissions. The important reductions for the extraction and distribution of fossil fuels (-73.1%) and also for the emissions of forest fires (- 70.9%), are linked to a strong decrease of the activity in these sectors. Great uncertainties still exist especially on the main sources (wood combustion, tilling and construction) which are badly known but also on the whole inventory. The uncertainties are estimated, according to a first estimation, to be in the range of 30 to 50% depending on the size of particles.

RESUME

Le CITEPA a réalisé un inventaire des émissions de particules pour un grand nombre de secteurs au niveau national. Les émissions globales de TSP (Total Suspended Particles) estimées s'élèvent à 1800 kilotonnes en 1990 et 1600 kilotonnes en 2000, celles des particules de diamètre inférieur à 10 micromètres (PM10) représentent 36% des émissions totales TSP en 2000. Cette part est d'environ 20% pour les PM2.5 et 13% pour les PM1.0. L'augmentation significative des émissions du transport routier (+11.9%), sur la période 1990-2000 provient essentiellement d'une augmentation des émissions diffuses que sont l'usure des routes, des pneus et des freins. Le nombre de feux ouverts de déchets agricoles augmente de 1990 à 2000 ce qui induit également une croissance significative des émissions du secteur "traitement et élimination des déchets" sur la même période. Les diminutions importantes pour l'extraction et la distribution de combustibles fossiles (-73.1%) ainsi que pour les émissions des feux de forêts (- 70.9%) sont liées à une forte baisse de l'activité dans ces secteurs. Trois sources représentent plus de la moitié des émissions totales de particules : la combustion du bois, le labourage et les chantiers de BTP. Cependant de grandes incertitudes demeurent concernant notamment ces sources qui sont encore mal connues mais aussi sur l'inventaire dans sa globalité. Elles sont estimées, dans une première approche, pouvant aller de 30 à 50% selon la taille des particules.

INTRODUCTION

L'impact probable des émissions de particules sur la santé en fait un centre d'intérêt. En effet, dans le cadre de la Convention LRTAP (Long Range Transboundary Air Pollution) de la CEE-NU (Commission Economique pour l'Europe des Nations-Unies), il est prévu d'introduire les particules dans le protocole de Göteborg lors de sa révision prévue en 2004. D'autre part, le programme CAFE (Clean Air For Europe) de la Commission Européenne a fait des particules et de l'ozone ses priorités. La CEE-NU a demandé aux Parties à la Convention de lui fournir en janvier 2002 leurs inventaires d'émissions de particules nécessaires aux travaux de modélisation.

1. Secteurs considérés

L'inventaire de particules pour la France métropolitaine (hors DOM-TOM) [6] ne recense que les émissions des sources primaires des TSP (particules totales en suspension), des PM₁₀ (particules dont le diamètre aérodynamique est <10 µm), des PM_{2,5} (particules dont le diamètre aérodynamique est < 2.5 µm), et des PM_{1,0} (particules dont le diamètre aérodynamique est < 1 µm). Ces émissions ont été déterminées pour les années 1990 à 2000 et pour 200 types de sources qui sont définies dans la nomenclature de référence SNAP 1997 [7] à laquelle on doit ajouter des sources supplémentaires principalement émettrices de particules (Usure des routes, chantiers de BTP, exploitation des carrières, travail du bois, fabrication du charbon de bois, utilisation de feux d'artifice, tabagisme, usure des chaussures, production de savons et détergents, production de sucre, production de farine, fumage de viande, manutention de céréales, fabrication de produits explosifs)

Les secteurs considérés dans l'inventaire particules sont les suivant :

- Les procédés de production (industrie pétrolière, sidérurgie, métaux non ferreux, chimie organique et inorganique, industries du bois, de la pâte à papier et de l'agroalimentaire),
- L'agriculture (élevage de bétail, labourage, moissonnage, séchage de céréales),
- Le transport routier, de la voiture particulière au transport de marchandise (échappement, usure des freins, de l'embrayage, des pneumatiques, des routes),
- Les sources fixes de combustion (combustion dans les industrie de l'énergie et de la transformation de l'énergie, combustion hors industrie (secteurs résidentiel, commercial et institutionnel, agriculture et sylviculture), combustion dans l'industrie manufacturière),
- Les sources mobiles autres que le transport routier (trafic aérien, ferroviaire, fluvial, maritime, machinerie et équipements de loisirs),
- Les feux de forêts,
- L'incinération des déchets,
- L'extraction et 1^{er} traitement des combustibles minéraux solides (essentiellement charbon),
- Les solvants et autres produits (utilisation de feux d'artifice, tabagisme, usure des chaussures).

2. Méthodologie de réalisation d'inventaires

Les émissions de particules sont obtenues à partir des données d'activité de la source considérée (dans le cas des sources de combustion, il s'agit de la consommation de combustibles tandis que dans le cas du transport routier par exemple, il s'agit des kilomètres parcourus par les véhicules) et du facteur d'émission lié à cette source qui correspond à la quantité de particules émises (en g) par l'unité de mesure définissant l'activité de la source (g/GJ pour les sources fixes de combustion, g/t de produit fabriqué pour les procédés de production, etc). On utilise donc l'équation suivante :

$$E \text{ (émissions)} = A \text{ (activité)} \times FE \text{ (facteur d'émission)}$$

La première difficulté vient alors de la disponibilité de l'activité d'une source donnée sur le territoire national et plus particulièrement de la connaissance du facteur d'émission de cette source. Puis, vient s'y ajouter le problème de l'adéquation de ce coefficient avec la structure des procédés impliqués dans l'activité.

Les données d'activité sont pour la plupart recensées dans les données statistiques nationales tandis que les facteurs d'émission proviennent de sources bibliographiques diverses ([1] à [5] et [8], [9]) selon leur disponibilité.

3. Résultats généraux

Les émissions totales de particules obtenues, pour les années 1990 et 2000, sont les suivantes par classe granulométrique :

Taille des particules	Emissions (en kt)		Ecart (%)
	1990	2000	
TSP	1797	1635	- 9
PM ₁₀	707	587	-17
PM _{2,5}	432	324	- 25
PM _{1,0}	266	206	- 23

Tableau 1 : émissions de particules en 1990 et 2000

Les réductions observées entre 1990 et 2000 sur les émissions totales de particules sont dues aux secteurs suivants pour les TSP, PM₁₀ et PM_{2,5} :

- L'extraction et la distribution des combustibles fossiles
- L'exploitation des mines découvertes
- Les feux de forêts

Pour les PM₁₀, la réduction des émissions entre 1990 et 2000 est due principalement à une diminution de la quantité de déchets incinérés dans les domaines du traitement et de l'élimination des déchets et à la combustion dans l'industrie manufacturière.

Les émissions provenant de tous les secteurs pris en compte dans l'inventaire, sont réparties de la façon suivante selon la taille des particules :

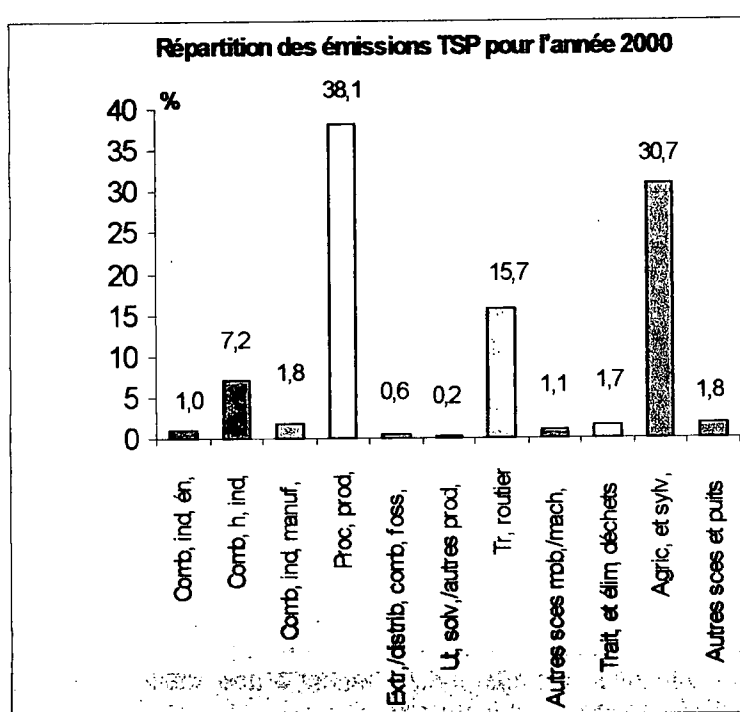


Figure 1 : Répartition des émissions TSP pour tous les secteurs pris en compte dans l'inventaire

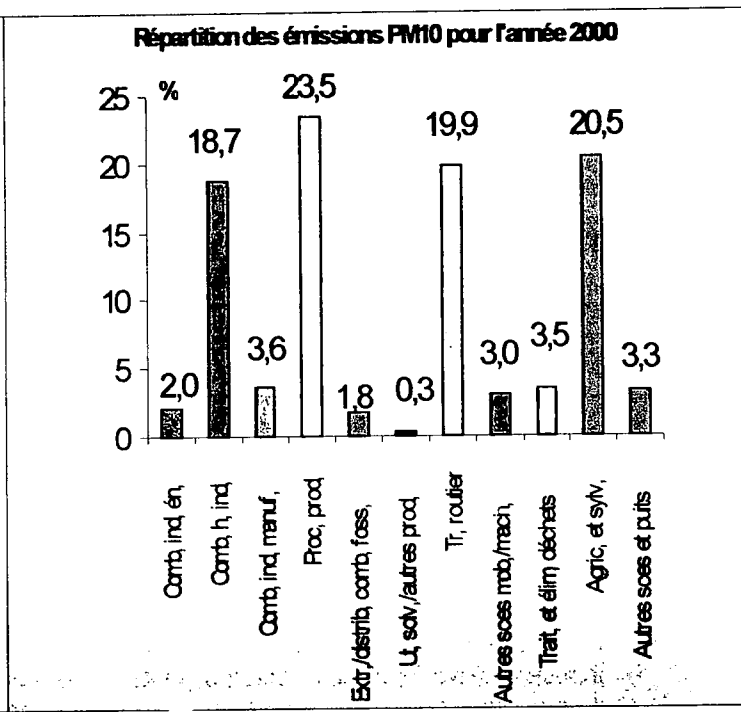


Figure 2 : Répartition des émissions PM10 pour tous les secteurs pris en compte dans l'inventaire

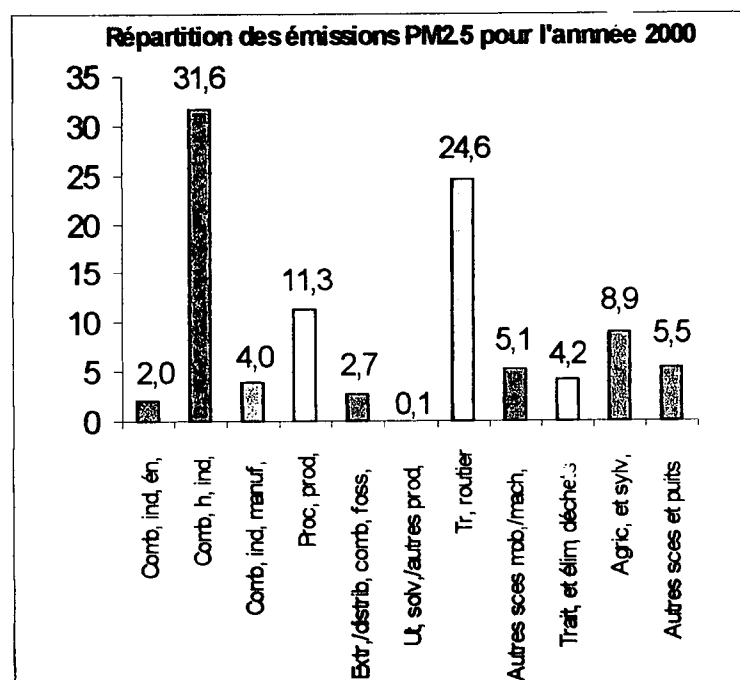


Figure 3 : Répartition des émissions PM2.5 pour tous les secteurs pris en compte dans l'inventaire

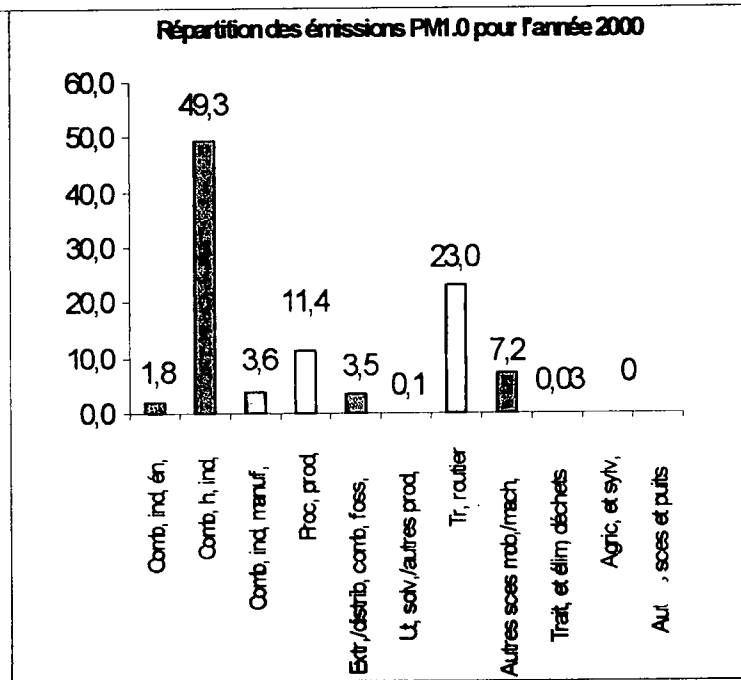


Figure 4 : Répartition des émissions PM1.0 pour tous les secteurs pris en compte dans l'inventaire

Légende

Combustion dans les industries de l'énergie et de la transformation de l'énergie
Combustion hors industrie
Combustion dans l'industrie manufacturière
Procédés de production
Extraction et distribution de combustibles fossiles
Utilisation de solvants et autres produits
Transport routier
Autres sources mobiles et machines
Traitement et élimination des déchets
Agriculture et sylviculture
Autres sources et puits

Ces estimations révèlent que les deux sources d'émission principales de TSP sont le labourage (440 kt) et les chantiers de BTP (440 kt) (appartenant respectivement aux secteurs agriculture/sylviculture et procédés de production), sources pour lesquelles les estimations sont très incertaines en raison du manque de connaissance sur ces sources et qui pourtant représentent à elles deux environ 54% des émissions totales prises en compte dans cet inventaire. Deux autres secteurs sont dominants : le transport routier, de la voiture particulière au transport de marchandise (émissions à l'échappement, usure des freins, des pneus et des routes) avec une contribution au total des émissions TSP de 15,7% et la combustion hors industrie avec une contribution au total des émissions TSP de 7,2%. Les émissions de PM₁₀ se répartissent également et principalement entre les mêmes 4 secteurs que les TSP mais de façon différente : procédés de production (23,5%), agriculture et sylviculture (20,5%), transport routier (19,9%) et combustion hors industrie (18,7%). Les émissions de PM_{2.5} se répartissent encore essentiellement entre ces 4 secteurs mais plus particulièrement entre la combustion hors industrie (31,6%) et le transport routier (24,6%). Les deux autres secteurs dominants sont les procédés de production (11,3%) et l'agriculture et sylviculture (8,9%). Les émissions de PM_{1.0} sont issues majoritairement de la combustion hors industrie (49,3%) et du transport routier (23%). Il faut toutefois noter que les données concernant les PM_{1.0} sont moins complètes que pour les autres tailles de particules et donc que ces contributions sont à prendre avec précaution.

4. Principaux secteurs émetteurs de particules

Les 4 principaux secteurs qui ressortent en terme de contribution au total national quelle que soit la taille des particules considérée sont donc, dans l'ordre d'importance de leurs émissions de particules, les procédés de production, l'agriculture-sylviculture, le transport routier et la combustion hors industrie. Pour tous ces secteurs, cette importante contribution est liée principalement à une seule source qui est prise en compte dans le secteur considéré comme décrit ci-dessous :

➤ *Procédés de production :*

Ce secteur est responsable de 38% des émissions de TSP, 23% des PM₁₀, 11% des PM_{2.5} et 11% des PM_{1.0} en 2000. Ces contributions importantes sont principalement induites par les émissions dues aux chantiers de BTP, à l'exploitation des carrières et, dans une moindre mesure, au travail du bois. En effet, ces sources représentent la part suivante des émissions dues aux procédés industriels (par taille de particules) :

	Part dans les procédés industriels (% d'émissions)			
	TSP	PM10	PM2.5	PM1.0
Chantiers de BTP	71%	49%	63%	59%
Exploitation des carrières	15%	26%	non estimé	non estimé
Travail du bois	7%	11%	non estimé	non estimé
TOTAL	93%	86%	63%	59%

Tableau 2 : Répartitions des émissions provenant des principaux secteurs des procédés industriels.

Les chantiers de BTP sont donc la principale source émettrice de ce secteur.

➤ *Agriculture et sylviculture :*

La contribution de ce secteur au total national en 2000 est de 30% pour les TSP, 20% pour les PM₁₀ et 9% pour les PM_{2.5} (les PM_{1.0} n'ont pu être estimées faute d'informations). La majeure partie des émissions de ce secteur est liée au labourage et, dans une moindre mesure, à l'élevage d'animaux (bétail et volaille). En effet, ces sources représentent la part suivante des émissions dues à l'agriculture et la sylviculture (par taille de particules) :

	Part dans l'agriculture, sylviculture (% d'émissions)		
	TSP	PM10	PM2.5
Labourage	88%	78%	64%
Elevage d'animaux	8%	14%	14%
TOTAL	96%	92%	78%

Tableau 3 : Répartitions des émissions provenant des principaux secteurs de l'agriculture-sylviculture.

➤ *Transport routier :*

Les émissions de particules du secteur des transports proviennent essentiellement du transport routier (de la voiture particulière au transport de marchandise) qui représente 16% des TSP totales en 2000, 20% des PM₁₀, 25% des PM_{2,5} et 23% des PM_{1,0}. Il inclut à la fois, les émissions de particules à l'échappement, celles liées à l'usure de certains organes des véhicules (pneus, plaquettes de freins, embrayages) et à l'usure des routes. La plus importante part des émissions étant due aux émissions non liées à l'échappement pour les TSP. En effet, ces sources représentent la part suivante des émissions dues au transport routier (par taille de particules) :

	Part dans le transport routier (% d'émissions)		
	TSP	PM10	PM2.5
Echappement	21%	48%	64%
Usure des pneus, freins, embrayages	40%	9%	3%
Usure des routes	39%	43%	33%
TOTAL	100%	100%	100%

Tableau 4 : Répartitions des émissions provenant des différents secteurs du transport routier.

➤ *Combustion hors industrie :*

Ce secteur est responsable de l'émission de 7% des TSP, 19% des PM₁₀, 32% des PM_{2,5} et 49% des PM_{1,0} en 2000. Ces différentes contributions sont liées aux émissions du secteur résidentiel et notamment à la combustion du bois dans ce secteur. En effet, cette source représente la part suivante des émissions dues à la combustion hors industrie (par taille de particules) :

	Part dans la combustion hors industrie (% d'émissions)			
	TSP	PM10	PM2.5	PM1.0
Secteur résidentiel	96%	97%	99%	98%
TOTAL	96%	97%	99%	98%

Tableau 5 : Répartitions des émissions provenant des principaux secteurs de la combustion hors industrie.

Il est important de noter que ces sources, qui apparaissent comme étant les plus émeurices, sont également celles pour lesquelles les incertitudes sont les plus importantes car il s'agit de sources diffuses qui, pour la plus part sont les plus difficiles à quantifier.

5. Incertitudes

Les incertitudes existant dans l'inventaire national de particules de décembre 2001 sont de deux ordres : les incertitudes sur le total, liées aux émissions qui n'ont pas pu être estimées (par manque d'informations) pour certaines sources et pour certaines tailles de particules, et les incertitudes existant sur les émissions estimées dans cet inventaire.

Si on considère les sources dont les émissions ne sont pas disponibles, dans l'inventaire particules 2001, au dessous d'une certaine taille de particules, et qu'on estime ces émissions à leur maximum possible (soit égal, par défaut, aux émissions comptabilisées dans la plus petite taille granulométrique disponible), on obtient les émissions supplémentaires pour les PM₁₀, PM_{2,5} et PM_{1,0} qui peuvent être au maximum de :

- 16 kt pour les PM₁₀ soit 3% d'émissions en plus par rapport à ce qui est déjà estimé.
- 73 kt pour les PM_{2,5} soit 22% d'émissions en plus.
- 168 kt pour les PM_{1,0} soit 82% d'émissions en plus.

Ceci montre que plus les particules sont fines, plus la disponibilité des données est rare voire inexistante donc plus les incertitudes sont grandes sur l'estimation totale des émissions de particules de cette taille.

Sur les estimations faites dans le cadre de l'inventaire national, il existe des incertitudes que l'on peut quantifier par une première approche en considérant les incertitudes à la fois sur les données d'activité et sur les données de facteurs d'émission. Ces premières estimations donnent une incertitude globale sur les TSP, PM₁₀, PM_{2,5} et PM_{1,0} pour l'année 2000 qui est reportée dans les tableaux suivants :

Taille des particules	Incertainces*
TSP	40 à 50%
PM ₁₀	30 à 40 %
PM _{2,5}	30 à 40%
PM _{1,0}	40 à 50%

* sans considérer la part non estimée des émissions mentionnée au paragraphe précédent.

Tableau 6 : Incertitudes sur les émissions de particules en fonction de leur taille.

Ces incertitudes sont liées principalement soit à un manque d'informations suffisantes pour estimer les émissions réelles de certains secteurs soit aux facteurs d'émission pris par défaut dans la littérature et qui ne sont pas toujours représentatif du cas français.

6. Conclusion

Malgré les incertitudes inhérentes à ce type d'inventaire, les évolutions récentes permettent d'affirmer que dans l'ensemble, pour les sources canalisées, plus facilement quantifiables, des efforts de réduction, plus ou moins importants selon la granulométrie considérée (de - 9 à - 25%), ont été effectués depuis 1990, suite à des actions engagées à la demande des pouvoirs publics pour un contrôle plus rigoureux des émissions de particules. D'importantes investigations restent cependant à mettre en oeuvre pour réduire les incertitudes existantes mais aussi pour quantifier les émissions de sources diffuses souvent mal connues et pouvant être pourtant fortement émettrices de particules. Les estimations actuelles révèlent que 40 à 55% des émissions totales (suivant la granulométrie considérée) de particules sont imputables à trois sources uniquement : la combustion du bois dans le résidentiel, le labourage et les chantiers de BTP.

L'utilisation d'un format unique pour les inventaires particules pour toutes les Parties à la Convention de Genève à compter de janvier 2003 devrait permettre d'améliorer les inventaires.

REFERENCES :

- [1] CEPMEIP (2001), Preliminary results of the CEPMEIP Programme, TNO Delft, Netherlands. Base de données disponible sur le site <http://www.mep.tno.nl/emissions>
- [2] EMEP/CORINAIR (Février 1996) Atmospheric Emission Inventory Guidebook.
- [3] EPA (jan 95), Compilation of air pollutant emission factors, AP-42, fifth edition.
- [4] IIASA (2001), A framework to estimate the potential and costs for the control of fine particulate emissions in Europe, Interim Report IR-01-023.
- [5] OFEFP (jan 2001), Mesures pour la réduction des émissions de PM₁₀, rapport EWE, documents environnement n°136.
- [6] Sambat S, Oudart B, Fontelle JP, Béguier S, Chang JP, Duval L. (2001) Inventaire des émissions de particules primaires. Paris : CITEPA.
- [7] SNAP 97, Selected Nomenclature for Air Pollution, nomenclature CORINAIR/SNAP 97 version 1.0 adaptée.
- [8] TNO (fev 97) , Particulate matter emissions (PM₁₀-PM_{2.5}-PM_{0.1}) in Europe in 90 and 93. TNO-MEP-R 96/472.
- [9] UBA (fev 99), Studie zur Korngrößenverteilung (< PM₁₀ , < PM 2.5) von Staubemissionen (Etude sur la répartition granulométrique (< PM₁₀ , < PM 2.5) des émissions de poussières), rapport 297 44853.

SITE URBAIN, SITE RURAL : ETUDE SAISONNIERE DE LA CHARGE PARTICULAIRE ATMOSPHERIQUE ET INFLUENCE RECIPROQUE

F. Ledoux, S. Bouhsina, L. Courcot et E. Puskaric

Laboratoire Interdisciplinaire en Sciences de l'Environnement, ELICO UMR 8013
Université du Littoral Côte d'Opale, 32 avenue Foch, 62930 Wimereux
frederic.ledoux@mren2.univ-littoral.fr

TITLE

Seasonal study of atmospheric particulate matter in an urban and a rural site and their reciprocal influence.

ABSTRACT

An aerosol source apportionment study has been monitored during two sampling campaigns (June-July 2000 and January-February 2001) in an industrialised and urban site (Dunkerque) and in a rural site about 12 kilometres east of Dunkerque. The concentrations of the following elements (Al, Ba, Ca, Cu, Fe, K, Mg, Mn, Na, Pb, Sr, Ti, Zn, Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺) collected by global filtration and cascade impactor, were determined by ICP-AES, ionic chromatography and SEM-EDX was also used to obtain the exact composition of individual particles. These results show that mean concentrations are higher during winter than during summer in the industrial studied area whereas no significant difference is observed at the rural site. The study of wind sectors of 45° (local winds directions) and air mass back-trajectories, shows the importance of predominating winds and so allows to identify the polluting sources, and PCA confirms associations between elements and their sources.

RESUME

Deux campagnes de prélèvements d'aérosols atmosphériques (juin-juillet 2000 et janvier-février 2001) ont été menées simultanément en un site urbain très industrialisé (Dunkerque) et en un site rural distant d'une douzaine de kilomètres, à l'est. Les particules, collectées par filtration globale et par impaction en cascade, ont été caractérisées par ICP-AES, chromatographie ionique ainsi que par MEB-EDX. L'étude des teneurs moyennes en éléments (Al, Ba, Ca, Cu, Fe, K, Mg, Mn, Na, Pb, Sr, Ti, Zn, Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺) permet d'observer des valeurs plus élevées l'hiver que l'été sur le site urbain alors qu'elles restent pratiquement constantes, quelle que soit la saison, sur le site rural. L'étude des teneurs par secteurs de vents de 45 degrés permet de cerner l'origine des sources d'émission des éléments et présente des différences sensibles selon la saison, même si pour quelques éléments tels Fe, Pb et Zn, l'influence de la zone industrielle de Dunkerque est toujours perceptible. L'Analyse en Composantes Principales des données montre une corrélation positive entre tous les éléments à l'exception des éléments d'origine marine (Na, Mg, Cl) et dans une moindre mesure Sr. L'analyse individuelle des particules réalisée par MEB-EDX permet d'accéder à la composition individuelle de chacune d'elles et, après traitement statistique, d'en identifier plusieurs classes dépendant de leur origine (directions des vents, trajectoires des masses d'air).

Introduction

La région Nord-Pas-de-Calais est le siège d'importants rejets de poussières issues du secteur industriel. En effet la DRIRE estimait, pour l'année 1999, à environ 28 000 T la quantité de poussières émises par l'industrie dont 11 500 tonnes identifiées et provenant des cheminées d'usine ; ceci correspond à l'échelon national à plus de 10 % des rejets. Dans cette région, parmi les grands rejets industriels, le Dunkerquois est responsable de 60 % des émissions régionales, notamment par la présence de ses industries sidérurgique, métallurgique et chimique très développées. Notre étude s'inscrit dans ce cadre et son but est multiple : il s'agit dans un premier temps de déterminer les teneurs de certains éléments métalliques et majeurs associés aux aérosols atmosphériques présents sur le site urbain de Dunkerque, ensuite d'estimer l'influence des nombreuses sources industrielles présentes dans l'agglomération dunkerquoise sur son environnement immédiat, et enfin d'étudier l'influence saisonnière sur les concentrations des mêmes éléments.

I - Matériels et Méthodes

I.1. Echantillonnage

Les prélèvements d'aérosols atmosphériques ont été réalisés à Dunkerque (210 000 habitants), sur le toit d'un bâtiment à une hauteur d'environ 10 m, à proximité du centre ville. Notre point de prélèvements est situé de telle sorte que la majorité des sources industrielles d'émissions est localisée dans le secteur W-NW. Parallèlement, afin d'étudier l'influence du large complexe urbain industriel de Dunkerque, des prélèvements ont également été effectués en un site rural proche, Les Moères (600 habitants), situé à 12 km à l'E-SE de Dunkerque. Deux campagnes saisonnières d'échantillonnage ont été réalisées : la première, dénommée "campagne Eté", s'est déroulée du 15 juin au 22 juillet 2000, et la seconde dénommée "campagne Hiver" du 15 janvier au 22 février 2001. Les prélèvements ont été réalisés en continu, par filtration globale sur filtres cellulose whatman 41 et membranes polycarbonates avec changement de filtre au lever du jour et à la tombée de la nuit afin d'étudier les différences jour-nuit. Ponctuellement des prélèvements par impaction en cascade ont été réalisés, afin d'accéder à la répartition granulométrie des particules supportant un élément particulier. Une station météorologique automatique implantée en chacun des deux sites nous a permis de relever l'ensemble des données climatiques locales (direction et vitesse de vent, hauteur de pluie, humidité, pression atmosphérique, ...). Nous avons également utilisé les rétrotrajectoires de masses d'air fournies par Météo France afin d'estimer les transports longues distances.

I.2. Analyses

La caractérisation des échantillons a été effectuée par ICP-AES, absorption atomique mode four (GFAAS), chromatographie ionique, colorimétrie et microscopie électronique à balayage couplée à une analyse X (MEB-EDX). Les analyses par ICP-AES (modèle Varian) et GFAAS (modèle Perkin Elmer Analyst 600) nous ont permis de déterminer les teneurs en Al, Ba, Ca, Cu (GFAAS), Fe, K, Mg, Mn, Na, Pb (GFAAS), Sr, Ti, Zn. Par chromatographie ionique nous avons quantifié les ions Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-} . Les ions NH_4^+ ont été dosés à l'aide d'une méthode colorimétrique. La validité des résultats obtenus par ces quatre techniques a été confirmée par l'analyse d'un échantillon certifié de particules SRM 1648.

Nous avons également soumis nos échantillons à une analyse par microscopie électronique à balayage (LEO microscopy) associée à une analyse de rayons X, en mode automatique. Cette technique offre le grand avantage d'accéder à la composition exacte de chaque particule. Pour chaque échantillon, 500 particules ont été analysées et l'ensemble des résultats, après analyse statistique, permet d'accéder aux classes de particules composant l'échantillon.

II. Résultats et discussion

II.1. Etude des teneurs moyennes globales

Les teneurs moyennes (moyennes géométriques) rencontrées durant les différentes campagnes sont regroupées dans le tableau 1.

Tableau 1 : teneurs moyennes (moyennes géométriques) en éléments calculées pour les différentes campagnes (en ng/m³).

	Dunkerque Eté	Dunkerque Hiver	Les Moères Eté	Les Moères Hiver
Al	115	159	95	88
Ba	2,92	5,8	1,9	2,6
Ca	578	592	372	248
Cu	3,4	8,9	2,5	3,2
Fe	298	475	187	143
K	158	252	187	161
Mg	165	171	155	113
Mn	20,6	27,4	16,3	8,1
Na	826	916	608	642
Pb	12,7	25,7	8,2	15,0
Sr	2	2,4	1,5	1,3
Ti	17,7	19,8	7,6	11,6
Zn	18,7	60,9	20,0	33,6
Cl	1587	2343	1205	1577
NO ₃ ⁻	3073	4027	2827	3468
SO ₄ ²⁻	2725	3051	2149	2292
NH ₄ ⁺	1565	2532	1241	2177

II.1.a. Comparaison avec quelques sites européens

La comparaison des teneurs moyennes en métaux avec quelques sites européens nous permet de mieux juger le degré de pollution de Dunkerque et de son environnement. A ce titre, nous faisons apparaître sur la figure 1 les concentrations relevées lors de nos campagnes de prélèvements représentées par les 4 dernières barres et celles de Milan (1 300 000 habitants) (Gallorini et al., 1998) et Cadrezzate (Rizzio et al., 1999), sites urbain et rural d'Italie, de Salamanque (170 000 habitants) en Espagne (Fidalgo et al., 1988), Anvers (460 000 habitants) (Van Borm et al., 1989) et Gand (Maenhaut et Cafmeyer, 1987) (230 000 habitants) en Belgique, Budapest (1 800 000 habitants) en Hongrie (Borbely-Kiss et al., 1994), ainsi que celles moyennes relevées sur la Mer du Nord (Chester et al., 1994).

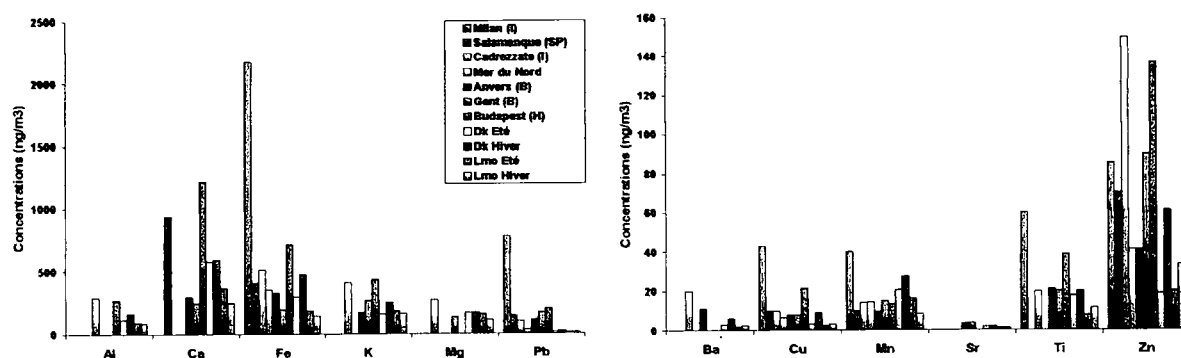


Fig. 1 : Concentrations moyennes rencontrées en quelques sites européens et en Mer du Nord – Comparaison avec les moyennes relevées dans cette étude.

Nous pouvons ainsi constater que les teneurs moyennes calculées pour le site de Dunkerque sont sensiblement du même ordre de grandeur que celles des autres sites et même bien souvent inférieures, et ce en dépit de la très grande densité industrielle présente. Ainsi, les teneurs en Al, Ba, Cu, Sr, Ti, surtout Pb sont toutes inférieures à l'ensemble des "témoins" européens et également inférieures à la moyenne Mer du Nord. Les teneurs en Zn à Dunkerque sont plus difficilement positionnables en raison de la variabilité saisonnière : celles rencontrées durant la campagne d'hiver sont supérieures à celles moyennes de la Mer du Nord, tandis que celles relevées durant la campagne d'été sont inférieures. Les teneurs en Ti, Fe, K, et Mg sont sensiblement

équivalentes, en dépit de l'importante activité sidérurgique basée sur le Dunkerquois. Seules les teneurs en Mn et Ca apparaissent supérieures.

II.1.b Etude inter-site des teneurs.

Comme nous pouvions le supposer, les teneurs enregistrées à Dunkerque sont toujours supérieures à celles relevées aux Moères.

Durant la campagne d'été, la différence est de l'ordre de 35% en moyenne alors que la campagne d'hiver fait apparaître une différence moyenne de 90% en faveur de Dunkerque. L'écart plus grand constaté durant la campagne d'hiver pourrait être la conséquence des vents de NW et notamment d'une origine de pluies sensiblement différente. En effet, durant la campagne estivale, le maximum de pluie a été amené par le secteur NW, alors que durant la campagne d'hiver, celui-ci a été calculé pour le secteur SW. Le secteur NW renferme la zone la plus industrialisée de Dunkerque et susceptible d'émettre le plus de particules. La pluie étant un facteur très favorable à l'élimination des particules dans l'air, nous pouvons ici supposer que les vents issus du secteur industriel durant la campagne d'été étaient moins chargés en particules que ceux de la campagne Hiver.

Ceci constitue un premier élément de réponse, mais il faut également souligner que la campagne d'hiver a été marquée par un épisode sec très long dénommé par les réseaux de mesures de la qualité de l'air "épisode particules". Durant cette période étaient réunies toutes les conditions favorables à l'accumulation des particules dans l'air et des polluants en général : grand soleil, vitesse de vent très faible voire nulle (secteur Est), temps sec, Ces conditions météorologiques particulières ont engendré une augmentation des concentrations beaucoup plus importante à Dunkerque qu'aux Moères, raison supplémentaire de l'écart observé.

II.1.c Etude inter-saisonnière et comparaison Jour-Nuit

Pour Dunkerque, nous pouvons noter que les teneurs moyennes relevées durant la campagne d'hiver sont toutes supérieures à celles de la campagne d'été (Tableau1); les raisons de cela ont été évoquées précédemment : "épisode particules" et origine des pluies différentes

Pour les Moères, seuls certains éléments gardent des teneurs moyennes supérieures l'été à celles de l'hiver. Il s'agit de Al, Ca, Fe, K, Mg, Mn, Sr. L'étude par secteur de vents apportera des précisions supplémentaires quant à l'origine de ces éléments.

Aucune différence significative n'a été observée entre les concentrations relevées le jour et la nuit.

II.2 Etude par secteur de vent.

L'étude des concentrations par secteurs de vents a permis de mieux cerner les masses d'air susceptibles de transporter le plus d'éléments, et met en évidence plusieurs choses :

- Pour un même site, les masses d'air les plus chargées en éléments ne proviennent pas de secteurs identiques pour les deux saisons étudiées.

- Sur le site de Dunkerque :

* Pendant la campagne d'hiver, les vents issus de secteur E-SE ont fait afficher des concentrations bien supérieures à celles rencontrées pour des vents issus du secteur industriel W-NW, à l'exception des deux éléments Fe et Mn. Pendant la campagne d'été, les masses d'air les plus chargées en métaux sont toutes imputables au secteur industriel W-NW, à l'exception du Zn, mais les teneurs sont bien en deçà de celles relevées pour la campagne hiver (facteur 2 à 3). Il semblerait que la source principale de Zn soit l'agglomération de Dunkerque elle-même et en particulier le secteur E-SE de la ville qui fait afficher des teneurs supérieures à 500 ng.m^{-3} durant la campagne d'Hiver. Aucune influence du secteur industriel n'est visible sur les teneurs en cet élément.

- Sur le site des Moères :

* Pendant la campagne d'été, les teneurs moyennes maximales en métaux n'ont pas été rencontrées pour des masses d'air provenant de l'agglomération industrielle de Dunkerque mais pour des masses d'air issues du secteur S-SE. Pendant la campagne d'hiver, si l'influence Dunkerquoise est notable pour la plupart des éléments et surtout le Mn et le Zn, celle-ci reste toutefois inférieure aux teneurs issues de vents de secteur E-SE.

Cette étude par secteur de vents souligne surtout l'importance des conditions météorologiques quant à l'influence du Dunkerquois et plus particulièrement de ses émissions industrielles sur son environnement. Sur la côte Nord-Pas-de-Calais, les vents de secteur SW à NW sont généralement associés à des conditions météorologiques dépressionnaires, souvent accompagnés de pluie et de vents forts, favorables à la dispersion des polluants. La zone la plus industrialisée du Dunkerque se situe à l'W-NW de la ville et dans ces conditions, son influence est grandement réduite. A l'opposé, les vents de secteur NE à SE, qui véhiculent essentiellement les

rejets de l'activité urbaine, sont généralement associés à des conditions météorologiques anticycloniques qui ont pour effet un accroissement des teneurs.

II.3. Analyse en Composantes Principales des données et rétrotrajectoires de masse d'air

L'ensemble des données a été soumis à une Analyse en Composantes Principales. Nous avons pris en variables les concentrations en éléments Al, Ba, Ca, Cu, Fe, K, Mg, Mn, Na, Pb, Sr, Ti, Zn, Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, NH₄⁺, et nous nous sommes servis des conditions météorologiques et notamment des rétrotrajectoires de masses d'air pour expliquer nos observations.

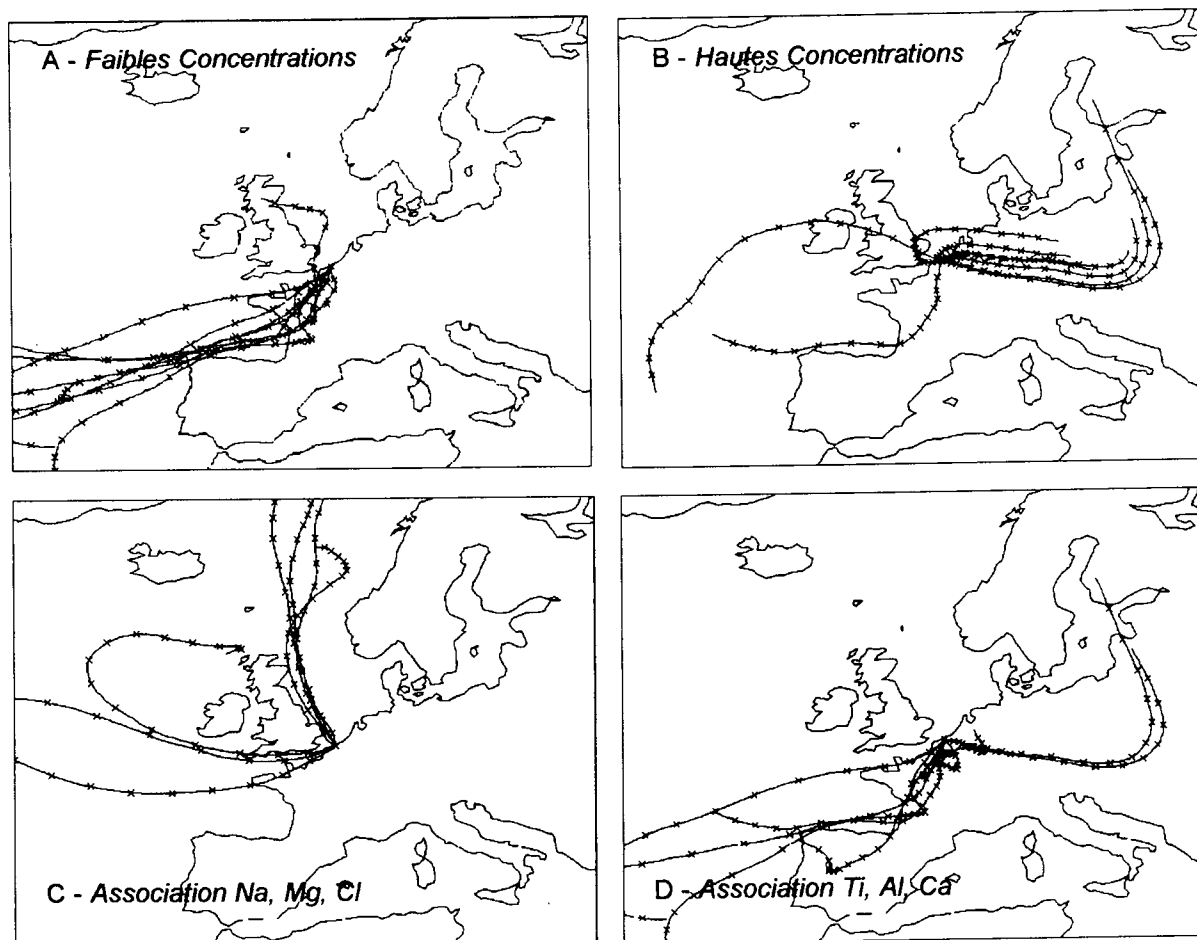


Fig. 2 : Rétrotrajectoires de masses d'air caractérisant les associations entre éléments ainsi que les concentrations en éléments

- A : Echantillons de faibles teneurs (conditions atmosphériques dépressionnaires)**
- B : Echantillons de teneurs élevées (conditions atmosphériques dépressionnaires).**
- C : Associations entre Na, Mg, Cl (trajectoires issues de la Manche et de la Mer du Nord)**
- D : Association entre Al, Ti et Ca (trajectoires continentales)**

Cette étude montre que le premier axe, qui explique jusqu'à 70 % de la variabilité des concentrations, montre un "effet taille", c'est à dire, plus un élément a tendance à avoir une teneur élevée plus tous les autres éléments ont tendance à avoir des teneurs élevées également. D'un côté nous retrouvons les échantillons avec les teneurs les moins élevées. Ces derniers ont été prélevés dans des conditions météorologiques essentiellement dépressionnaires (trajectoires de masses d'air SW) comme le montrent les masses d'air associées sur la Fig. 2.A. De l'autre, nous retrouvons les échantillons les plus chargés qui sont surtout associés à des trajectoires issues de l'Europe de l'Est (Fig. 2.B) correspondant à des conditions météorologiques anticycloniques, mais aussi à des trajectoires continentales (Sud) ou issues du secteur agglomération industrielle (NW). L'ACP met également en évidence une association entre les éléments Na, Mg, Cl et les échantillons contribuant le plus à la formation de cet axe montrent des trajectoires marines issues de la Mer du Nord et de la Manche (Fig. 2.C), ainsi qu'une très forte corrélation entre les éléments NH₄⁺, NO₃⁻ et

SO₄²⁻, laissant supposer la présence de ces éléments sous les formes de nitrates et de sulfates d'ammonium.

Une association entre les éléments Al, Ti, Ca est également mise en évidence et l'examen des rétrotrajectoires montrent que celle-ci résulte de trajectoires de masses d'air continentales (Fig. 2.D). L'origine Dunkerquoise des aérosols semble être caractérisée dans cette étude par les éléments Fe, Mn, Pb, Zn puisque ces quatre éléments sont associés et les échantillons correspondant ont été collectés durant des vents de directions WNW.

II.4 Etude par MEB-EDX.

L'étude par MEB-EDX a mis en évidence différents types de particules : sels marins plus ou moins âgés Na-Cl, Na-S-Cl, Na-S, Na rich (NaNO₃) ; CaSO₄ ; Oxydes de Fe, Al ou Ti ; particules riches en Pb, Zn, Cr, Mn ; particules riches en S, en Cl, en P ; Alumino-silicates. Ces types de particules sont plus ou moins prédominants selon le secteur de vents. Ainsi les classes de particules riches en métaux prédominent pour des vents issus du secteur industriel de Dunkerque, les particules sur lesquels sont associés les éléments Na, S, Cl dénotent des sels plus ou moins âgés associés aux vents marins. Les autres types de particules ne semblent pas avoir d'origine privilégiée. Tout ceci confirme les résultats obtenus par ACP.

Conclusion

Cette étude menée sur la région de Dunkerque a permis de montrer qu'en dépit d'une activité industrielle très importante, les teneurs en éléments ne sont globalement pas plus élevées que celles relevées en d'autres sites européens et en moyenne sur la Mer du Nord. Il faut souligner que ceci est la conséquence de conditions météorologiques extrêmement favorables, les masses d'air issues de la zone la plus industrialisée du Dunkerquois sont généralement associées à des conditions météorologiques dépressionnaires favorables à la dispersion des polluants. Cependant, cette étude met également en évidence que l'activité de l'agglomération dunkerquoise joue un rôle prépondérant pour quelques éléments sur les teneurs rencontrées en un site rural distant de 12 km; il s'agit des éléments Fe et Mn qui peuvent être attribués à l'activité sidérurgique de la ville, mais aussi du Zn pouvant être imputé sans aucun doute à l'activité urbaine. L'ACP de l'ensemble des données a permis de mettre en évidence certaines relations confirmées par les rétrotrajectoires de masse d'air ainsi que par l'étude par SEM-EDX.

Remerciements :

Cette étude a été financée par les fonds FEDER du programme Interreg II Nord-Pas-de-Calais -Flandres Occidentale (Convention n° 2.2.1.a) et du Contrat Plan Etat Région (Convention n° OBJ 2 - 2001/5 - 4.1 - N° 37/777).

Références :

- Borbély-Kiss I., Kolkay E., Szabo G., Mészáros E., Molnár A. and Bozó L. (1994) : Particle characterization at rural, suburban and urban aerosol sampling sites in Hungary. *Int. J. PIXE*, **4**, 243-257.
- Chester R., Bradshaw G.F. and Corcoran P.A. (1994) : Trace metal Chemistry of the North Sea particulate aerosol : concentrations, sources and sea water fates. *Atm. Environ.*, **28**, 2873-2883.
- Fidalgo M.R., Mateos J. and Garmendia J. (1988) : The origin of some of the elements contained in the aerosols of Salamanca (Spain). *Atm. Environ.*, **22**, 1495-1498.
- Gallorini M., Borroni P.A., Bonardi M. and Rolla A. (1999) : Trace elements in the atmospheric particulate matter of Milan and suburban areas : A study carried out by INAA. *J. Radioanalytical and Nucl. Chem.*, **235**, 241-247.
- Maenhaut W. and Cafmeyer J. (1987) : Particle induced X-Ray emission analysis and multivariate techniques: an application to the study of the sources of respirable atmospheric particles in Gent, Belgium. *J. Trace and Microprobe Techn.*, **5**, 135-158.
- Rizzio E., Giaveri G., Arginelle D., GINI L., Profumo A. and M. Gallorini (1999) Trace elements total content and particle sizes distribution in the air particulate matter of a rural-residential area in north Italy investigated by instrumental neutron activation analysis. *Sci. Tot. Env.*, **226**, 47-56
- Van Borm W.A., Adams F.C. and Maenhaut W. (1989) : Characterisation of individual particles in the Antwerp aerosol. *Atm. Environ.*, **23**, 1139-1151.

Influence d'une répartition granulométrique large sur l'envol de particules

Isabelle Descamps, Jean-Luc Harion, Bernard Baudoin

École des Mines, Département Énergétique Industrielle,
941, rue Charles Bourseul, B.P. 838, 59508 DOUAI Cedex

1 Introduction et contexte de l'étude

Le thème sur lequel porte nos recherches est celui des émissions atmosphériques diffuses de particules. Sur un site industriel, par exemple sidérurgique, les sources d'émissions diffuses de poussières peuvent être liées principalement aux transports de matériaux sur le site, à la manutention de matériaux granulaires et à l'érosion éolienne de tas de stockage. Dans le cas d'un site sidérurgique, cette dernière catégorie de source diffuse de particules est largement prédominante. Pour réduire ces émissions, différents systèmes sont mis en place : l'arrosage régulier des tas, les traitements dans la masse, les traitements de surface. Les études menées au Département Énergétique Industrielle ont pour finalité, d'une part, la quantification la plus précise possible des sources diffuses de pollution particulaire émises par un site industriel et, d'autre part, l'évaluation de l'efficacité des traitements appliqués aux matériaux. Le travail présenté ici concerne plus particulièrement les émissions fugitives de particules provoquées par l'érosion éolienne des tas de stockages de matières premières. Sur les sites industriels, les matériaux responsables de cette pollution particulaire diffuse présentent une répartition granulométrique large. Les plus fines particules peuvent avoir une taille de l'ordre d'une dizaine de microns et les plus grosses de l'ordre du centimètre. La largeur de la répartition granulométrique engendre, comme Meunier [1] l'a observé en soufflerie, même pour des temps relativement courts, une diminution temporelle du flux massique par un effet de **pavage**. Les fines particules de la surface du lit s'envolent rapidement, tandis que celles se trouvant en profondeur seront plus difficilement délogées par le vent du fait de la couverture formée par les particules **non érodibles**. L'effet de la présence de ces particules non érodibles sur l'érosion éolienne a déjà fait l'objet de travaux expérimentaux [2], mais uniquement, à notre connaissance, sur des mélanges binaires de deux diamètres de particules très différents. L'objet de ce travail est d'établir un modèle capable de prédire, à partir d'une répartition granulométrique quelconque et de la vitesse de vent, la rapidité de décroissance du flux massique envolé. Ceci permettra d'accroître sensiblement la précision de l'évaluation des quantités émises sur les sites industriels.

2 Modèle d'érosion éolienne d'un lit de particules

2.1 Entraînement aérodynamique

L'idée de base du modèle repose sur le lien qui existe entre l'envol de particules et la présence de structures cohérentes à la surface du lit. Les structures cohérentes sont des structures tourbillonnaires organisées, qui se forment à la surface du lit avec des périodicités statistiques spatiales et temporelle dont les valeurs dépendent des propriétés physiques du fluide et de la vitesse de l'écoulement, de la présence ou non de particules dans l'écoulement et, en présence de particules, des caractéristiques de celles-ci. Jimenez et Moin [3] déterminent par étude numérique que les valeurs des périodes moyennes d'apparition suivant les directions transversale et longitudinale de l'écoulement sont respectivement égales à $\lambda_z^+ = 100$ et $\lambda_x^+ = 250 - 300$. Ces valeurs, bien qu'établies sur paroi lisse, seront considérées en première approximation comme les périodicités transversale et longitudinale sur le lit de particules.

Plusieurs auteurs [4], [5] ont constaté expérimentalement que l'envol d'une particule peut être associé au phénomène d'éjection de fluide depuis la zone pariétale vers l'extérieur de la couche limite, phénomène qui est provoqué par la présence de tourbillons longitudinaux contra-rotatifs. En supposant qu'une seule éjection est produite par tourbillon longitudinal contra-rotatif, chaque tourbillon longitudinal formé à la surface du lit est considéré comme une possibilité d'envol et pour chacune de ces possibilités un critère d'envol est testé.

Le lit de particules de longueur L et largeur l est ainsi découpé en boîtes de dimensions transversale λ_z et longitudinale λ_x , qui sont obtenues grâce aux valeurs des périodicités statistiques transversale et longitudinale des structures tourbillonnaires. De plus, le pas de temps du modèle est considéré égal à la période moyenne d'occurrence des structures. En effet, Blackwelder et Haritonidis [6] mettent en évidence une période moyenne d'occurrence de ces structures donnée par :

$$T_b^+ = \frac{\overline{T_b} U_\tau^2}{l'} \approx 250 \quad (1)$$

Le critère d'envol est testé pour chacun des itérations, c'est-à-dire pour chaque structure cohérente formée à la surface du lit au cours de la simulation. Avant de réaliser le test de critère d'envol, une tranche granulométrique de diamètre représentatif D_p est tirée de manière aléatoire sur le nombre total de tranches granulométriques de la répartition. Dans le cas où toutes les particules de cette tranche granulométrique se seraient envolées alors un autre tirage aléatoire est effectué.

Le critère d'envol est déterminé à partir du bilan des forces exercées sur la particule à la surface du lit et soumis à un écoulement turbulent. Ces forces sont le poids, l'adhésion et la portance, la force de traînée étant négligeable au moment de l'envol par rapport aux autres forces. Le critère d'envol implique qu'il y

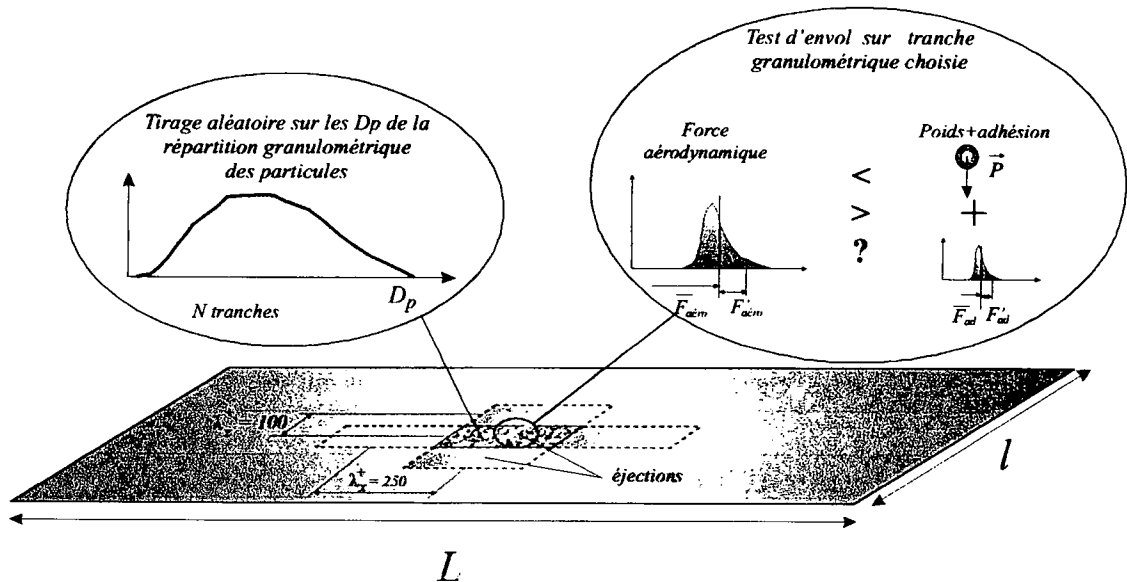


FIG. 1 – Principe du modèle de simulation du flux massique envolé

a envol d'une particule si la force de portance exercée sur celle-ci est supérieure à la somme de son poids et de la force d'adhésion de la particule à la surface du lit. La particularité du modèle d'entraînement aérodynamique est de se baser sur la comparaison des distributions des forces de portance et d'adhésion. L'expression de la force de portance utilisée dans le modèle est celle de Mollinger & al. [7], qui considère que la force de portance est une variable aléatoire très fluctuante dans le temps. La valeur de la force de portance instantanée est donc égale à la somme de la valeur de la force moyenne de portance et de la

fluctuation de la force de portance, déterminée par tirage aléatoire sur la fonction densité de probabilité, mesurée par Mollinger & al. [7]. De même, un tirage aléatoire sur la fonction densité de probabilité de la force d'adhésion est effectué. Le critère permet ainsi de tenir compte de la nature aléatoire du phénomène.

2.2 Modélisation du phénomène de pavage

La diminution du flux massique envoyé dans le temps est causée par le pavage du lit. Le pavage du lit est lié à la présence de particules de forte inertie, qui ne peuvent pas s'envoler, et qui forment une protection, aussi appelée **couverture** dans la littérature. Nous considérons que ces particules non érodibles s'accumulent à la surface du lit et, par conséquent, le recouvrent entièrement à partir d'une certaine profondeur, que nous nommons **épaisseur d'érosion** $E_{\text{érosion}}$. À partir de cette profondeur, les structures tourbillonnaires ne rencontrent plus que des particules qu'elles ne sont pas capables de mettre en mouvement et le flux massique s'arrête. L'épaisseur d'érosion est déterminée à partir d'une hypothèse de répartition spatiale uniforme des particules dans le lit et du taux de couverture de chaque tranche granulométrique. Les particules sont réparties uniformément suivant la hauteur du lit. Pour chacune des N_{tr} tranches de diamètre caractéristique D_p , le nombre de couches $N_c(D_p)$ de hauteur égale au diamètre D_p , contenue sur la hauteur H du lit, est calculé en divisant la hauteur du lit par le diamètre de la particule. Le nombre de particules $N_{part}(D_p)$ est répartie de manière égale sur chacune des couches du lit $N_c(D_p)$:

$$N_p(D_p) = \frac{N_{part}(D_p)}{N_c(D_p)} \quad (2)$$

Pour déterminer l'épaisseur d'érosion, il faut estimer la profondeur à partir de laquelle toutes les particules non érodibles peuvent recouvrir la surface du lit. Kurose & al. [8] définissent le taux de couverture comme le rapport entre la surface égale à l'aire de projection des particules sur la paroi et la surface totale de la zone considérée. Ainsi, le taux de couverture est déterminé pour chaque tranche granulométrique à partir de:

$$T_C(D_p) = \frac{N_p(D_p) \times \pi \times D_p^2 / 4}{L \times l} \quad (3)$$

À partir de $T_C(D_p)$, la surface du lit occupée par les particules non érodibles est calculée par sommation successive sur toutes les tranches granulométriques des particules non érodibles dans l'ordre croissant des diamètres, et, pour chacune de ces tranches, sur chacune des couches, ceci jusqu'à ce que cette surface soit égale à la surface du lit. $E_{\text{érosion}}$ est calculée en pondérant les diamètres des particules non érodibles par la valeur de leur taux de couverture et leurs nombres de couches impliquées au moment où la surface calculée est égale à $L \times l$.

Nous supposons que, dans le cas où il n'y a pas de particules non érodibles dans le spectre granulométrique, $E_{\text{érosion}}$ est égale à l'infini. Dans le cas où la surface exposée n'est jamais nulle, alors l'épaisseur d'érosion est égale à la hauteur du lit. À partir de l'épaisseur d'érosion, plus aucune particule ne pourra s'envoler. Connaissant l'épaisseur d'érosion, le nombre de couches $N_{\text{érosion}}(D_p)$ de hauteur D_p incluses à cette épaisseur est connu pour chaque tranche granulométrique:

$$N_{\text{érosion}}(D_p) = \frac{E_{\text{érosion}}}{D_p} \quad (4)$$

Pour chaque tranche granulométrique de diamètre D_p la force de portance est incrémentée à chaque fois que toutes les particules d'une couche, $N_p(D_p)$, se sont envolées. Cet incrément est défini de telle façon que l'on suppose qu'à une profondeur égale à l'épaisseur d'érosion, plus aucun envol ne sera possible du fait du taux de couverture des grosses particules, ceci est réalisé lorsque la force de portance maximum est égale à la force minimum d'adhésion plus le poids.

Quand une couche est intégralement envolée, une incrémentation de la force aérodynamique est réalisée (voir figure 2), l'incrément est donné par:

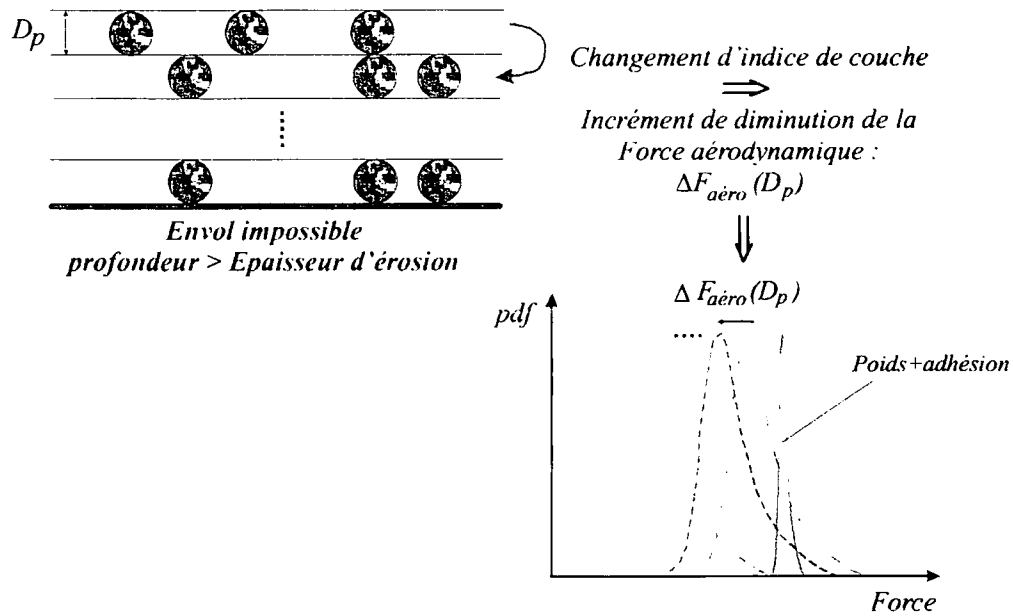


FIG. 2 – Intégration de l'effet de pavage par diminution incrémentale de la force aérodynamique imposée à une particule

$$\Delta \bar{F}_{aéro}(D_p) = \frac{\text{Max}(F_{aéro_{initiale}}) - \text{Min}(P + F_{ad})}{N_{érosion}(D_p)} \quad (5)$$

Cette formulation permet d'intégrer dans le modèle que la force aérodynamique aura progressivement une influence moindre sur les particules situées en profondeur.

3 Décroissance temporelle des envols

Un premier test du modèle a été réalisé sur une répartition granulométrique simple constituée d'un mélange binaire de particules de sable érodibles ($60 - 160 \mu m$) et nonérodibles ($540 - 640 \mu m$) en faisant varier les proportions respectives des deux constituants.

Les premiers résultats obtenus à l'aide du modèle sont présentés sur la figure 4. Ces résultats sont obtenus à partir du modèle d'envol.

Les courbes visualisées sur cette figure montrent que plus la fraction massique de particules non-érodibles est importante, plus la décroissance du flux massique est rapide, ce qui correspond au constat expérimental.

D'autre part, le flux initial ($t = 0$) de matière diminue en présence de particules non-érodibles. Par contre, il est identique pour tous les mélanges contenant des particules non-érodibles, ce qui ne correspond sans doute pas à une réalité physique. L'analyse et la correction de ce dernier point est en cours. Des mesures expérimentales en souffleries, basées sur le même matériau et les mêmes répartitions massiques, sont en cours de réalisation.

4 Conclusions et perspectives de l'étude

Les premiers résultats obtenus montrent, à partir d'un lit de particules soumis à un écoulement turbulent de vitesse stationnaire, la décroissance temporelle du flux de particules envoyées. Cette décroissance se

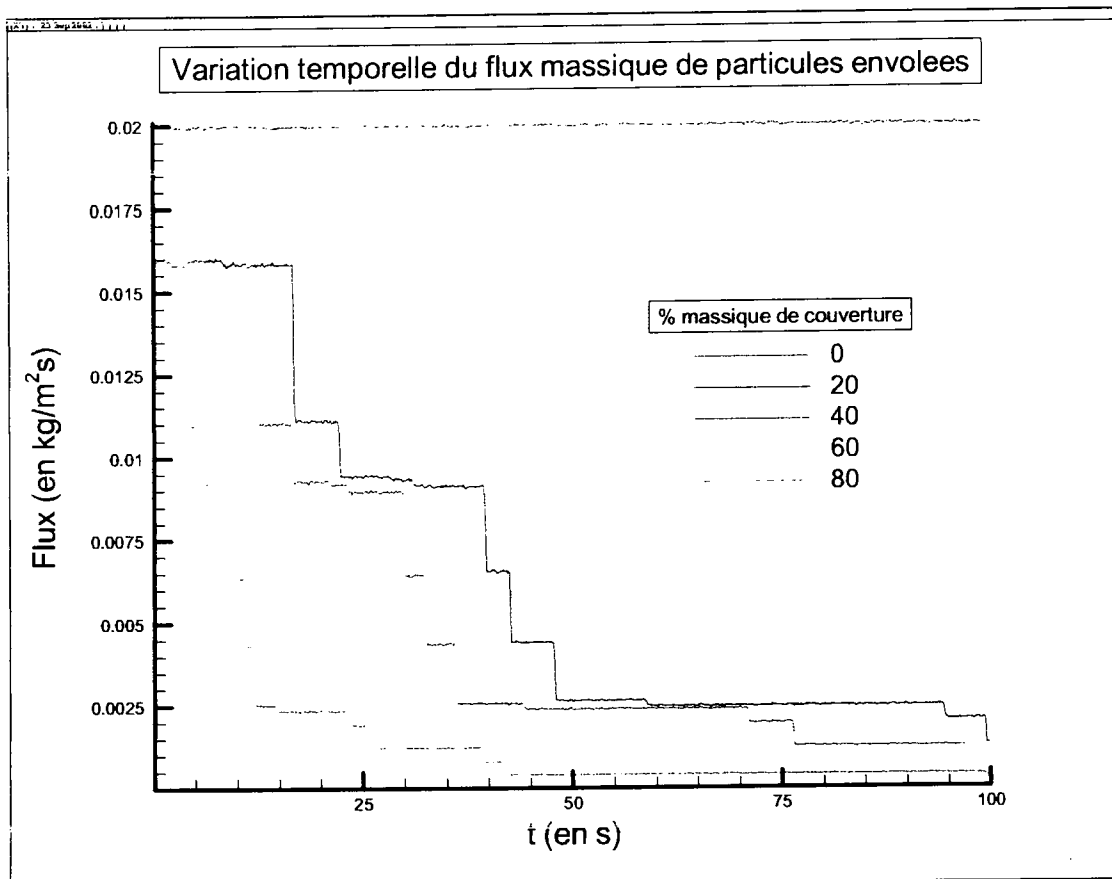


FIG. 3 – Premiers résultats du modèle d'évolution du flux massique envolé pour une répartition granulométrique large, $U_{\infty} = 10 \text{ m/s}$, $\rho_p = 2500 \text{ kg/m}^3$

fait par paliers. Le saut d'un palier à l'autre est dû au passage d'une couche à une autre et, par conséquent, à l'incrémentation de la fonction densité de probabilité de la force de portance. Ceci n'est pas bien sûr représentatif de ce qui se passe dans la réalité. Cependant, par interpolation des données par une fonction exponentielle négative, une évolution générale de la diminution du flux massique dans le temps est obtenue. Un exemple est donnée sur la figure 4. Le phénomène de couverture par les grosses particules, qui entraîne la décroissance temporelle du flux massique envolé, est donc correctement modélisé par la diminution progressive de la force de portance au fur et à mesure de l'érosion. Pour améliorer l'évaluation des émissions fugitives de particules ayant un large spectre granulométrique, il est nécessaire de tenir compte de cette décroissance. Une étude expérimentale permettant de mesurer l'évolution du flux massique de particules envolées dans le temps est en cours de réalisation et permettra de comparer les résultats obtenus par le modèle aux mesures réalisées. Une autre étude, consistant en la mesure des périodicités statistiques de formation des structures tourbillonnaires à la surface de parois rugueuses, permettra, quant à elle, d'ajuster les résultats obtenus par le modèle sur les résultats obtenus par étude expérimentale.

5 Remerciements

Les auteurs de cette communication tiennent à remercier SOLLAC Atlantique et Méditerranée ainsi que l'ADEME pour le soutien apporté à ces travaux sur les émissions fugitives de particules sur sites industriels.

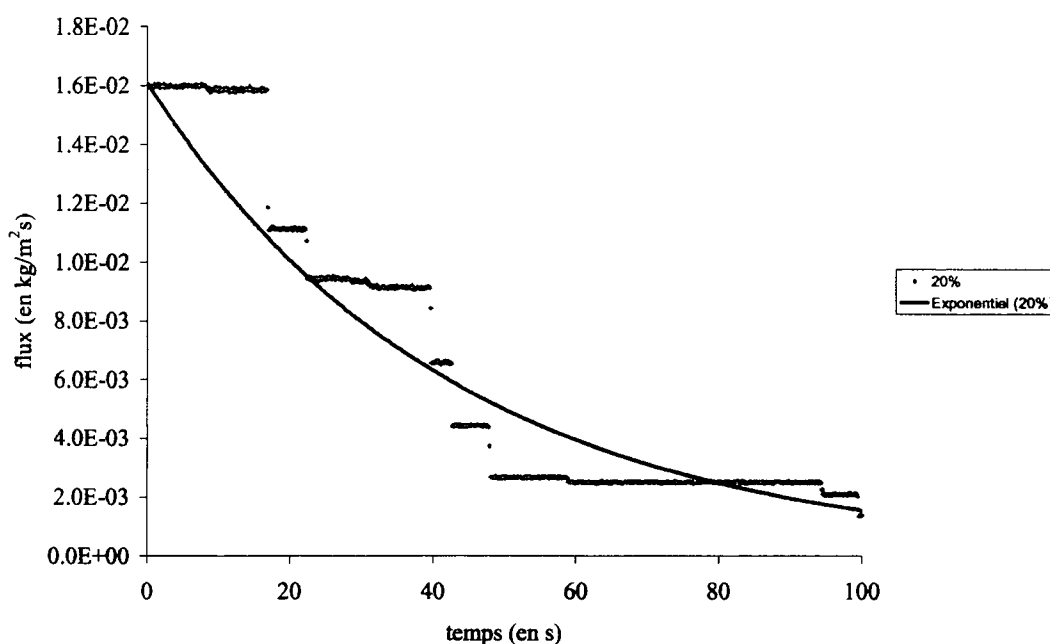


FIG. 4 – Interpolation de la décroissance temporelle du flux massique envolé obtenue à partir du modèle dans le cas d'une couverture massique égale à 20% . $U_{\infty} = 10 \text{ m/s}$, $\rho_p = 2500 \text{ kg/m}^3$

Références

- [1] **M.-A. Meunier**. *Envol et transport de particules en couche limite turbulente instationnaire*. Thèse de Doctorat, Valenciennes, 1999.
- [2] **D. A. Gillette and P. A. Stockton**. The effect of nonerodible particles on wind erosion of erodible surfaces. *J. of Geophysical Res.*, 94:12885–12893, 1989.
- [3] **J. Jiménez and P. Moin**. The minimal flow unit in near-wall turbulence. *J. Fluid Mech.*, 225:213–240, 1991.
- [4] **P. Sechet**. *Contribution à l'étude des structures cohérentes en turbulence de paroi. De leur influence sur le transport des sédiments dans le cas du charriage*. Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, 2000.
- [5] **Y. Niño and M. H. Garcia**. Experiments on particle-turbulence interactions in the near-wall region of an open channel flow: Implications for sediment transport. *J. Fluid Mech.*, 326:285–319, 1996.
- [6] **R. F. Blackwelder and J. H. Haritonidis**. Scaling of the bursting frequency in turbulent boundary layers. *J. Fluid Mech.*, 132:87–103, 1983.
- [7] **A. M. Mollinger and F. T. M. Nieuwstadt**. Measurement of the lift force on a particle fixed to the wall in the sublayer of a fully developed turbulent boundary layer. *J. Fluid Mech.*, 316:285–306, 1996.
- [8] **R. Kurose and S. Komori**. Turbulence structure over a particle roughness. *Int. J. of Multiphase Flow*. 27:673–683. 2001.

SPECIATION DES METAUX Pb, Zn, Cd DANS LES POUSSIERES EN SUSPENSION DANS L'AIR AMBIANT PAR EXTRACTIONS CHIMIQUES ET PAR ESEM-EDS AUTOMATISE.

Grégory LECORNET*(1) , Esperanza PERDRIX (1), Patrice DELALAIN (2)

(1) Département Chimie et Environnement, Ecole des Mines de Douai, 941 rue Charles Bourseul, BP 838, 59508 Douai.
lecornet@ensm-douai.fr

(2) Unité de Chimie Analytique Environnementale, Unité des Risques Chroniques, INERIS, Parc technologique Alata, BP 2, 60550 Verneuil-en-Halatte.

TITLE

Speciation of lead, zinc and cadmium in ambient air dust combining selective chemical extractions and individual particle analysis by ESEM-EDS.

ABSTRACT

To evaluate the toxicity, the biodisponibility and the environmental behaviour of metals like Pb, Zn , Cd in ambient air dust, it is necessary to determine the speciation of these elements, i.e their main physico-chemical species. A chemical extraction procedure has been defined and optimized for pure species of Pb, Zn and Cd (sulfate, sulphur, carbonate and oxide). Three fractions were selected: soluble, oxidisable and reducible. Then it has been applied to real ambient air dust samples:

- a certified reference material NIST 1648 "Urban particulate matter";
- ambient air dust sampled close to a lead and zinc smelter.

For the NIST 1648, the results were compared to the speciation obtained by Profumo et al. (1998) and Huggins et al. (2000). For the ambient air dust, the results were compared to the individual particle analysis done by ESEM-EDS.

RESUME

Pour évaluer la toxicité, la biodisponibilité et le comportement dans l'environnement des métaux Pb, Zn et Cd, il est nécessaire de connaître leur spéciation, c'est à dire de déterminer leurs principales espèces physico-chimiques. Dans ce but, un protocole d'extractions chimiques a été défini et optimisé pour des espèces pures (sulfates, sulfures, carbonates et oxydes). Trois fractions ont été choisies: soluble, réductible et oxydable. Ce schéma a été appliqué à deux échantillons de poussières en suspension :

- un échantillon de poussières urbaines NIST 1648 ;
- des poussières prélevées dans l'air ambiant à proximité d'un site industriel émetteur de métaux lourds.

Dans le cas des poussières NIST, la « distribution chimique » de Pb, Zn et Cd, établie avec notre protocole, est comparée à celles obtenues par Profumo et al. (1998) et Huggins et al. (2000). Dans le cas des poussières à proximité d'un émetteur industriel, une comparaison est effectuée entre notre « distribution chimique » et une analyse statistique de la composition élémentaire de particules individuelles par ESEM-EDS automatisé.

1. INTRODUCTION

L'atmosphère est un milieu de transfert de matière particulaire émise, soit directement par les sources naturelles (mer, sols, volcans ...) ou anthropiques (trafic, industrie, chauffage ...), soit formée secondairement par conversion gaz-particule (conversion du SO₂ gazeux en sulfate particulaire par exemple). Ces particules peuvent véhiculer aussi bien des éléments nutritifs indispensables aux cycles de vie que des polluants néfastes pour la santé humaine et les écosystèmes.

Dans ce travail, nous avons étudié la spéciation du plomb, du zinc et du cadmium, émis dans l'atmosphère par un site pyrométallurgique de production de plomb et de zinc, essentiellement sous forme particulaire.

1.1 La source industrielle

Le site pyrométallurgique, situé dans le nord de la France, comprend deux unités industrielles: l'une de production de plomb et l'autre de production de zinc. Il est à l'origine d'importantes émissions atmosphériques de plomb, zinc et cadmium (le cadmium étant naturellement présent dans les minerais). Les procédés classiques utilisés passent par une première étape de calcination du sulfure de plomb ou de zinc (minerai) pour produire de l'oxyde. Dans une seconde étape, l'oxyde est mélangé avec un fondant et du coke et réduit en plomb ou en zinc métallique par traitement dans un haut-fourneau [Hiscock, 1984]. Les hautes températures mises en jeu conduisent à la formation de particules fines, micrométriques ou sub-micrométriques.

1.2 Intérêt d'établir la spéciation des métaux lourds

Outre leur nombre, deux facteurs principaux déterminent les effets des particules sur la santé humaine : la taille et la composition chimique. La taille détermine le niveau de déposition des particules inhalées : les plus grosses restent dans la partie extra-thoracique tandis que jusqu'à 50% des particules ultrafines (< 1 µm) se déposent dans les alvéoles pulmonaires. L'effet de la composition chimique des particules sur la santé humaine est plus sujet à controverse. Cependant, il est difficile d'imaginer que les caractéristiques chimiques, en particulier la solubilité, l'acidité, la teneur en éléments toxiques ou en substances nocives, ne jouent pas un rôle [Harrison et Yin, 2000]. L'assimilation des éléments traces par le corps humain s'effectue par l'intermédiaire d'espèces ou de formes chimiques particulières [Lagarde et Leroy, 1995]. Celles-ci peuvent différer notablement d'une source d'émission à l'autre.

Divers travaux traitent de l'étude des poussières émises par les sites de production de plomb et de zinc. Les prélèvements ont été réalisés par filtration [Ragaini et al., 1977 ; Clevenger et al., 1991 ; Aragon Pina et al., 2000] ou impaction [Spear et al., 1998]. Les analyses chimiques ont été conduites globalement (XRF, NAA, ICP-AES, XRD, XPS, extractions chimiques, ...) ou sur des particules individuelles (microanalyse X, MEB-EDS). Cette multiplicité des moyens témoigne d'une méthodologie difficile à définir, actuellement l'objet de recherches actives.

En outre, la plupart de ces études se basent sur des prélèvements effectués dans l'enceinte d'une usine ou dans sa proximité immédiate. Aucune d'entre elles ne traite de l'évolution de la spéciation de ces éléments dans l'air ambiant. Or, après leur émission, les particules contenant du plomb et du zinc sont exposées aux agents atmosphériques organiques et minéraux, gazeux et particulaires ainsi qu'à la lumière solaire. Différentes réactions chimiques sont alors susceptibles de se produire, dont la plus probable est une d'oxydation.

Dans le cas de la source industrielle étudiée, des travaux antérieurs ont montré que les principales espèces de plomb et de zinc émises étaient des sulfures (PbS, ZnS), ainsi que des sulfates et des oxysulfates de plomb [Sobanska et al., 1999 ; Batonneau et al., 2001]. Compte-tenu de la rapidité avec laquelle ces espèces sulfurées s'oxydent en laboratoire, il est probable qu'elles subissent aussi une oxydation dans l'atmosphère, due non seulement à la présence d'oxygène dans l'air, mais aussi à celle de dioxyde de soufre provenant du grillage des minerais.

Le but de cette étude est de trouver une méthodologie, simple à mettre en oeuvre, pour caractériser l'évolution de la spéciation du plomb, du zinc et du cadmium dans l'air ambiant. Un intérêt particulier est accordé à la distinction des espèces sulfurées et sulfatées. A cette fin, la méthode des extractions chimiques sélectives, largement utilisée pour établir la distribution chimique d'éléments polluants dans diverses matrices solides (sols, sédiments, déchets), a été retenue.

Une revue bibliographique sur les schémas d'extractions existants et appliquée aux aérosols a été menée, afin de déterminer les fractions et les conditions expérimentales à optimiser. Le schéma d'extractions retenu comporte quatre étapes qui sont appliquées, en parallèle, sur des échantillons pris séparément :

- extraction par l'eau pour déterminer les espèces solubles ;
- extraction par l'hydroxylamine pour déterminer les espèces réductibles ;
- extraction par le peroxyde d'hydrogène pour déterminer les espèces oxydables ;
- attaque totale par un mélange acide nitrique-peroxyde d'hydrogène.

2. MATERIELS ET METHODES

2.1. Optimisation du schéma d'extractions

L'optimisation a été effectuée par la méthode des plans d'expériences, en utilisant, pour chaque fraction du schéma, l'espèce pure ou le matériau approprié :

- pour la fraction soluble, l'extraction a été optimisée sur les sulfates ;
- pour la fraction réductible, l'extraction a été optimisée sur les oxydes ;
- pour la fraction oxydable, l'extraction a été optimisée sur les sulfures ;
- l'attaque totale a été testée sur le matériau certifié NIST 1648.

2.1.1. Produits

- *Plomb* : oxyde de plomb jaune (puriss. p.a., Fluka), carbonate de plomb basique (purum. p.a., Fluka), sulfure de plomb (pur, Riedel-de-Haen), sulfate de plomb (pur, Riedel-de-Haen).
- *Zinc* : oxyde de zinc (purum. p.a., Fluka), carbonate de zinc basique (purum. p.a., Fluka), sulfure de zinc (pur, Riedel-de-Haen), sulfate de zinc heptahydrate (puriss. p.a., Fluka).
- *Cadmium* : oxyde de cadmium brun (purum. p.a., Fluka), carbonate de cadmium (extra pur, Riedel-de-Haen), sulfure de cadmium (pur, Riedel-de-Haen), sulfate de cadmium hydrate (puriss. p.a., Fluka).
- *NIST 1648 'Urban particulate matter'* : poussières urbaines, matériau certifié de référence par le National Institute of Standards and Technology

2.1.2. Réactifs

- Eau ultrapure, système USF, résistivité=0,055 $\mu\text{S}/\text{cm}$
- Hydroxylamine hydrochloride, 98%, Aldrich
- Peroxyde d'hydrogène, 30%, Merck
- Acétate d'ammonium. p.a., Riedel-de-Haen

2.1.3. Plans d'expériences

Ils ont servi à optimiser des paramètres expérimentaux du schéma d'extractions. Le nombre de facteurs à optimiser étant faible, ce sont des plans factoriels complets à deux niveaux qui ont été choisis.

2.2. Prélèvement dans l'air ambiant

- *Site de prélèvement* : le prélèvement de particules en suspension dans l'air ambiant a été réalisé à 1km de la fonderie de plomb et de zinc, sous les vents dominants.
- *Matériel de prélèvement* : un préleveur Partisol Spéciation permettant de prélever simultanément sur quatre voies des particules PM 10 à $1\text{m}^3/\text{h}$ a été utilisé. Pour les extractions, les particules sont recueillies sur des filtres en téflon (Gelman Zefluor) de diamètre 47mm et de porosité $2\mu\text{m}$. Pour les analyses par ESEM EDS, on utilise des filtres en polycarbonate (Millipore ATTP) de diamètre 47mm et de porosité $0,8\mu\text{m}$.

2.3. ESEM-EDS

Le microscope électronique à balayage environnemental (ESEM) utilisé est le modèle Quanta 400 de FEI. Il est couplé à la microanalyse X par dispersion d'énergie (EDS) avec un détecteur Si (Li) et possède une platine motorisée 5 axes qui permet l'analyse automatique de particules individuelles.

3. RESULTATS ET DISCUSSION

3.1. Optimisation du schéma d'extractions

3.1.1. Résultats de l'optimisation

Pour chaque fraction, certains paramètres expérimentaux comme le volume d'extractant, le temps d'extraction et la température ont été optimisés par le plan d'expériences. Il en résulte le schéma d'extraction suivant :

- pour la fraction soluble : extraction par 30 mL d'eau ultrapure à 60°C pendant 3h ;
- pour la fraction réductible : extraction par 15 mL d'hydroxylamine 0,25 mol/L à 25°C pendant 5h ;
- pour la fraction oxydable : attaque par 2*10mL de peroxyde d'hydrogène jusqu'à évaporation et reprise par 15 mL d'acétate d'ammonium 3 mol/L pendant 3h ;
- pour l'attaque totale : minéralisation micro-ondes par 10 mL d'acide nitrique .

3.1.2. Application aux particules NIST 1648

Le schéma d'extractions a été appliqué aux poussières urbaines NIST 1648 pour des masses de 1 mg déposées sur des filtres en téflon. Pour chaque fraction, trois échantillons de poussières ont été utilisés. Les résultats des extractions sont présentés dans la figure 1 (la barre verticale correspond au minimum et au maximum des valeurs obtenues).

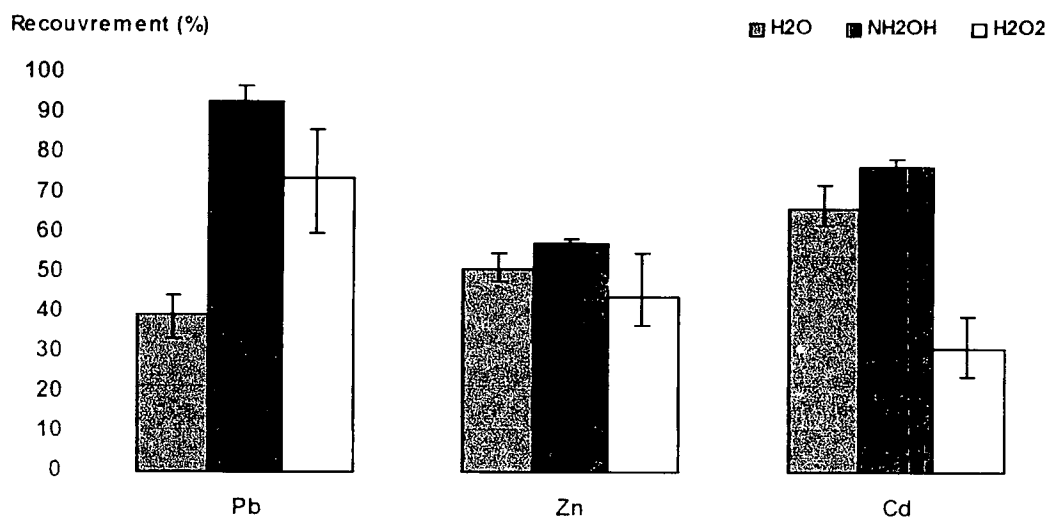


Figure 1. Taux de recouvrement de Pb, Zn et Cd pour les extractions appliquées au NIST 1648.

Pour quantifier la distribution chimique de chaque élément, nous avons posé un système de quatre équations linéaires à quatre inconnues. L'hypothèse est que la quantité de métal mise en solution par un extractant est une combinaison linéaire des quantités extraites de ce métal pour chacune des espèces pures. En résolvant ce système, on détermine le pourcentage de chaque espèce présente. Pratiquement, la résolution du système ne conduit pas toujours à des solutions physiquement acceptables. Des hypothèses supplémentaires sont alors formulées quant à la présence, par exemple, d'une espèce non prise en compte a priori et dont le comportement chimique diffère de celui des autres espèces retenues auparavant.

3.1.3. Comparaison avec les résultats d'Huggins et al. (2000)

Huggins et al. ont étudié la spéciation de plusieurs métaux dont le plomb, le zinc et le cadmium dans les poussières NIST 1648 par des techniques physiques d'absorption de rayons X très énergétiques, l'EXAFS et le XANES, afin de déterminer l'environnement chimique des métaux. Leurs résultats sont ici comparés avec les résultats obtenus par nos extractions chimiques.

- **Plomb** : la résolution du système d'équations, décrivant les résultats des extractions chimiques, conduit à supposer un mélange de sulfates et d'oxydes de plomb. Ceci est compatible avec les résultats d'Huggins et al. qui propose le plomb sous forme d'ions Pb^{2+} en coordination oxygène.
- **Zinc** : la résolution du système conduit à supposer un mélange de sulfates de zinc (44-52%) et d'autres espèces encore inconnues, dont la caractéristique majeure est qu'elles n'ont pas été solubilisées par nos extractions. Ceci est compatible avec les résultats d'Huggins et al. qui propose le zinc sous forme d'un mélange de sulfate de zinc hydraté et d'autres formes non déterminées.
- **Cadmium** : la résolution du système conduit à un mélange de sulfates de cadmium (70-85%) et d'autres espèces qui n'ont pas été extraites par nos extractions. Ceci est compatible avec les résultats d'Huggins et al. qui propose le cadmium sous forme d'un mélange de sulfates et de silicates de cadmium.

3.1.4. Comparaison avec les résultats de Profumo et al. (1998)

Profumo et al. ont étudié la spéciation du cadmium dans les poussières NIST 1648 par des extractions chimiques, menées séquentiellement dans l'ordre suivant :

- fraction 1 (Cd soluble) : 10 mL d'eau ultrapure, 2 mn ultrasons + 5mn agitation ;
- fraction 2 (CdO) : 10 mL de tampon citrate pH=7,4, 2 mn ultrasons + 5mn agitation ;
- fraction 3 (Cd) : 10 mL de nitrate d'ammonium 1M pH=4,6, 2 mn ultrasons + 5mn agitation ;
- fraction 4 (CdS) : 3 mL d'acide nitrique, 60 mn à reflux.

Profumo et al. (mode séquentiel)	Notre étude (mode parallèle)
Cd soluble =1,8% Cd =10%, CdO =64% CdS =23%	CdSO ₄ = 70-85% Cd - autres espèces = 15-30%

Tableau 1. Comparaison des résultats.

Les différences importantes entre les résultats de notre étude et celle de Profumo et al. (Tab 1) peuvent en partie s'expliquer par le mode séquentiel ou parallèle utilisé et par le choix des réactifs. Le mode séquentiel, en effet, tend à générer une accumulation d'incertitudes, augmentant l'imprécision au fur et à mesure des extractions successives. Cependant la faible quantité de Cd mis en solution dans la fraction soluble de Profumo et al. , par rapport à la nôtre, est étonnante. Du fait de la solubilité importante des sulfates, seule une limitation cinétique peut expliquer cette différence.

3.2. Prélèvement dans l'air ambiant

3.2.1. Résultats extractions

Notre protocole d'extractions chimiques a été appliqué aux poussières prélevées dans l'air ambiant. Les teneurs en métaux du prélèvement du 25/07/2002 étaient de : Pb 281 ng/m³, Zn 188 ng/m³ et Cd 9 ng/m³. Les résultats de ces extractions sont présentées dans la figure 2.

Les quantités de métaux extraites sont très proches de celles des poussières NIST 1648 (cf. Fig.1). Les quantités de Zn et de Cd mises en solution par l'extraction à l'eau sont cependant plus importantes, ce qui suggère une plus grande proportion d'espèces sulfatées.

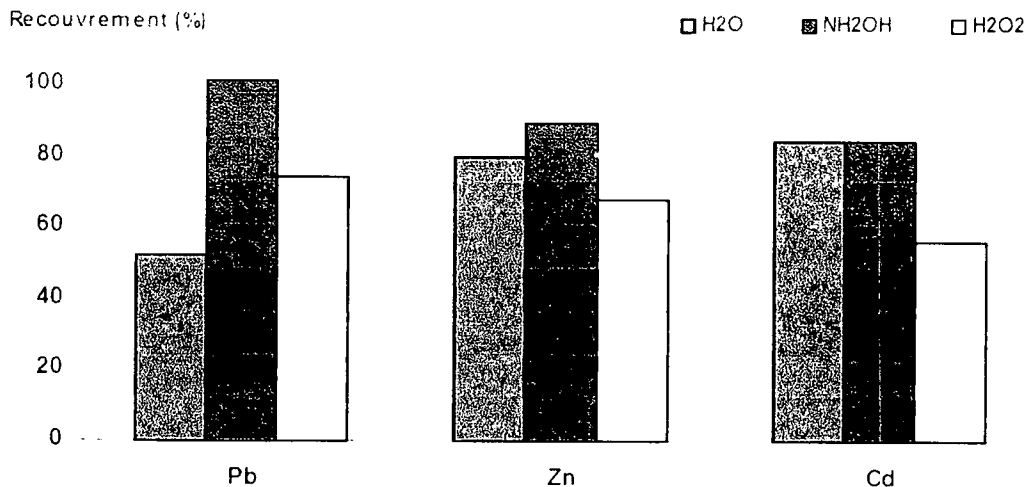


Figure 2. Taux de recouvrement du Pb, Zn et Cd pour les extractions appliquées aux poussières prélevées dans l'air ambiant.

3.2.2. Résultats de l'analyse par ESEM-EDS

L'analyse automatique a permis d'analyser 1345 particules dont 626 contenant du plomb ou du zinc. Le cadmium n'a pas été détecté au cours de ces analyses.

3.2.3. Comparaison des extractions chimiques et de l'analyse ESEM-EDS

	Extractions chimiques	ESEM-EDS
Pb	mélange oxydes + sulfates	association Pb-Si et Pb-Cl
Zn	mélange sulfates (69-89%) + autres espèces peu solubles	association Zn-S : Zn-S, Zn-S-Ba, Zn-S-Cl, Zn-S-Cl-Na-Al association Zn-Si : Zn-Si, Zn-Si-Al, Zn-Si-Al-Fe

Tableau 2. Comparaison des résultats.

Pour le plomb, les différences observées entre les deux méthodes (non détection des associations Pb-O et Pb-S par ESEM-EDS) s'expliquent notamment par les problèmes de déconvolution de l'interférence Pb/S et par la non prise en compte des éléments légers (O, C, N) en analyse automatique.

Pour le zinc, en revanche, les résultats des deux méthodes coïncident et se complètent, suggérant que les espèces peu solubles de zinc pourraient être de nature silicatée ou alumino-silicatée.

4. CONCLUSION

Nous avons mis en évidence l'oxydation des espèces de Pb et de Zn dans l'air ambiant en montrant que par, rapport à l'émission, la quantité de sulfures était devenue très faible.

Cette étude a aussi permis de montrer la cohérence et la complémentarité entre les extractions chimiques (semi-quantification) et les méthodes physiques (identification), confirmant la pertinence de leur association.

Remerciements:

Les auteurs remercient pour leur soutien A.R.M.I.N.E.S., la Région Nord-Pas-de-Calais et le ministère de l'Ecologie et du Développement Durable (actions du Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air).

BIBLIOGRAPHIE

- Aragon Pina A., Torres Villasenor G., Monroy Fernandez M., Luszczewski Kudra A., Leyva Ramos R., Scanning electron microscope and statistical analysis of suspended heavy metal particles in San Luis Potosi, Mexico, *Atmospheric Environment*, vol. 34, pp. 4103-4112 (2000).
- Batonneau Y., Laureyns J., Merlin J.C., Brémard C., Self-modeling mixture analysis of Raman microspectrometric investigations of dust emitted by lead and zinc smelters., *Analytica Chimica Acta*, vol. 446, pp. 23-37 (2001).
- Clevenger T.E., Saiwan C., Koirtiyohann S.R., Lead speciation of particles on air filters collected in the vicinity of a lead smelter, *Environmental Science and Technology*, vol.25, n°6, pp. 1128-1133 (1991).
- Harrison R.M., Yin J., Particulate matter in the atmosphere : which particle properties are important for its effects on health ?, *The Science of the Total Environment*, vol. 249, pp. 85-101 (2000).
- Hiscock S.A., Impact sur l'environnement du plomb, du zinc et du cadmium et moyens de contrôle – observations et points de vue de l'industrie, PNUE Industrie et Environnement, pp. 16-20 (1984)
- Huggins, F.E. (2000). Speciation of elements in NIST particulate matter SRMs 1648 and 1650. *Journal of hazardous materials*, 74, 1-23
- Lagarde F., Leroy M., Spéciation d'éléments traces : mise en œuvre, intérêts, *Spectra Analyse* n°185, pp.32-36 (1995).
- Ragaini R.C., Raiston H.R., Roberts N., Environmental trace metal contamination in Kellogg, Idaho, near a lead smelting complex, *Environmental Science and Technology*, vol. 11, n°8, pp. 773-780 (1997).
- Profumo, A. (1998). Sequential extraction procedure for speciation of inorganic cadmium in emissions and working areas. *Talanta*, 47, 605-612.
- S. Sobanska, N. Ricq, A. Laboudigue, R. Guillermo, C. Brémard, J. Laureyns, J.C. Merlin, J.P. Wignacourt, Microchemical Investigations of Dust Emitted by a lead Smelter, *Environmental Science and Technology*, vol. 33, pp. 1334-1339 (1999)
- Spear T.M., Svee W., Vincent J.H., Stanisich N., Chemical speciation of lead dust associated with primary lead smelting, *Environmental Health Perspectives*, vol. 106, N° 9, pp.565-571 (1998).

CONCENTRATION PARTICULAIRE DANS L'HABITACLE AUTOMOBILE

F. Gouriou (1), J-P. Morin (2), M. Weill (3),

(1) CERTAM, 1 rue J. Fourier, 76800 St. Etienne du Rouvray, (2) INSERM E9920, 22 Bd. Gambetta 76183 Rouen, (3) UMR 6614-CORIA Site du Madrillet - BP12 76801 St. Etienne du Rouvray,

1- Introduction.

L'attention portée aux atmosphères intérieures est une conséquence d'un mode de vie principalement citadin consistant à passer la plus grande partie de la journée dans un local fermé, appartement, transport en commun, automobile. Dans le cas de l'habitacle automobile les études ont visé le confort de l'occupant avec le souci de lui épargner les nuisances dues aux bruits (1) et aux odeurs (2). Les véhicules climatisés ont bénéficié d'une attention particulière portée aux filtres et à l'évolution de leurs capacités (3).

La différence de concentration des polluants entre l'intérieur et l'extérieur d'un véhicule a été recherchée à plusieurs reprises. L'étude de Zagury et al. (4) montre que les teneurs (CO, particules, NO et NO₂) mesurées dans l'habitacle de chauffeurs de taxi parisiens sont supérieures (sauf pour le CO), à celles enregistrées dans l'air ambiant particulièrement pour ce qui est des particules. Jo et Yu (5) se sont également intéressés aux chauffeurs de taxi de Taegu (Corée) en comparaison avec les chauffeurs d'autobus. Il en ressort que les chauffeurs de taxi sont plus exposés que la population de référence aux composés organiques volatils (COV). Rank et al. (6) ont considéré les différences d'exposition entre cyclistes et automobilistes de la ville de Copenhague pour le benzène et des dérivées ainsi que pour les particules. Leur conclusion conduit encore à une accumulation des polluants deux à quatre fois supérieure dans le véhicule.

Dans les études citées un système de filtration portable est mis en œuvre. Le contenu des filtres est ensuite analysé par gravimétrie ou par mesure de l'indice de fumée. L'avantage de ce type de dispositif est d'être directement lié à la personne et donc à son ambiance.

Néanmoins ce mode de prélèvement est global et intégral. Il ne fournit aucune indication sur la granulométrie alors que l'importance de la pénétration des particules au niveau pulmonaire est liée à leur taille et à leur concentration (7). Il intègre aussi des concentrations correspondant à des périodes différentes d'activité alors que l'on sait que la moyenne masque ici des fluctuations très importantes.

L'objectif principal de l'étude est la quantification de ces facteurs à l'aide d'un appareillage embarqué lié non au passager mais au véhicule. Deux campagnes de mesure se sont succédées, avec le même matériel principal et des aménagements mineurs, une troisième a été plus spécifiquement consacrée aux mesures en tunnel. Les mesures dans l'habitacle ont dans un premier temps été limitées à la mesure des flux entrant. L'étude de la dynamique à l'intérieur du véhicule fait l'objet d'études en cours.

2- Dispositif expérimental

L'appareil utilisé est un granulomètre ELPI (Electrical Low Pressure Impactor, Dekati). Cet appareil est constitué d'une cascade d'impacteurs mais, à la différence des impacteurs traditionnels, les particules sont chargées à l'entrée ce qui permet de suivre en continu l'évolution des concentrations particulaires déposées sur les différents plateaux à l'aide d'électromètres. L'appareil comporte douze classes (de 30nm à 10 micromètres) et offre ainsi la possibilité de suivre l'évolution d'un aérosol atmosphérique à spectre large. Lors de la première campagne les

mesures ont été faites à la cadence d'un relevé par seconde, fenêtres fermées, dans divers sites et situations caractéristiques intervenues naturellement lors d'un périple d'une durée totale de 2h30 : zones rurales, industrielles, tunnel, doublement de poids lourd, arrêt feu rouge etc. La prise d'air s'effectuait à l'aide d'un tuyau fixé dans le conduit de ventilation de l'habitacle.

La figure 1 montre, en exemple, l'évolution de la granulométrie à l'intérieur de l'habitacle pour trois classes submicroniques durant 500s.

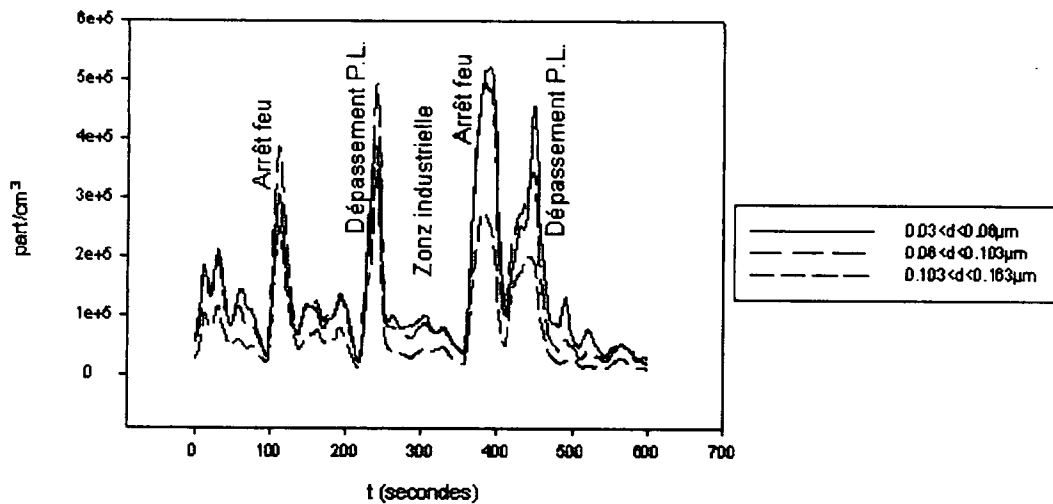


Figure 1 : profils évolution de trois classes submicroniques

On voit qu'il est possible de suivre finement la conséquence d'événements localisés et même d'attribuer à certains une signature spécifique en terme de granulométrie. On vérifie également que la dynamique est considérable et qu'il est possible d'éprouver en peu de temps par simple arrêt derrière un véhicule mal réglé une concentration dix fois supérieure à la concentration ambiante.

3- Les mesures en tunnel

Les mesures effectuées à l'intérieur d'un tunnel présentent plusieurs avantages.

- i) les conditions de circulation sont précisément définies du fait de la surveillance permanente du trafic. Ceci n'est pas le cas sur une chaussée quelconque, sauf à installer des systèmes spécifiques dont l'intérêt serait à démontrer.
- ii) l'influence des conditions météorologiques est moins marquée. Ce point est important car il est souvent difficile d'extrapoler des conclusions claires à partir des mesures effectuées dans un milieu ouvert.
- iii) elles reflètent l'état de la circulation réelle à la différence d'une estimation calculée à partir de la statistique des véhicules en circulation. Ainsi la permanence des conditions rencontrées dans les tunnels peut permettre un suivi significatif de l'évolution des émissions du trafic.

Pour ces raisons nous avons effectué des mesures spécifiques les 14 et 16 mai 2002 dans le tunnel de la Grand Mare (76). Ce tunnel d'une longueur de 1500m est en pente et présente deux tubes approximativement parallèles éloignés d'une trentaine de mètres. Un sas situé à mi distance permet, si nécessaire, un transfert de véhicules entre les deux tubes. Ce passage est ordinairement clos. Nous avons utilisé deux ELPI conjointement, l'un en mesure embarquée, l'autre fixe placé à l'intérieur du sas. Les objectifs étaient :

- 1) d'observer la distribution des particules entrant dans l'habitacle du véhicule lors de passages à l'intérieur du tunnel (tubes montants et descendants).

- 2) de vérifier la corrélation entre les mesures en poste fixe, plus aisée et les mesures prises à l'entrée de l'habitacle (matériel embarqué)

a) Dispositif expérimental et protocole

Poste fixe : l'un des ELPI a été installé dans le sas. Une trappe de ventilation a été utilisée pour faire aboutir un tuyau de prélèvement (2m) à l'intérieur du tunnel à une altitude d'environ 1.50m. Le pilotage du système, placé sur chariot mobile afin d'être transporté de part et d'autre du sas, l'acquisition et la sauvegarde des données nécessitent la présence d'un opérateur durant toute la durée d'expérience.

Poste mobile : le deuxième ELPI est installé à bord d'une voiture, le tuyau de prélèvement raccordé au niveau de la prise d'air de l'habitacle. Pour parer une éventuelle dérive des électromètres de l'ELPI des recalages ont été effectués tous les trois passages dans le tunnel. Un circuit routier en boucle permet d'alterner les passages entre tube montant et descendant.

Les ELPI ont été confrontés en laboratoire avant et après la campagne de mesure dans le cas de faible et de forte concentration. La différence relative entre les concentrations globales est de 0.9%. L'accord entre les distributions est également satisfaisant.

b) Résultats

La figure 2 montre les profils de concentration enregistrés dans le tube montant par le poste fixe et par le poste embarqué l'après midi du 16 mai.

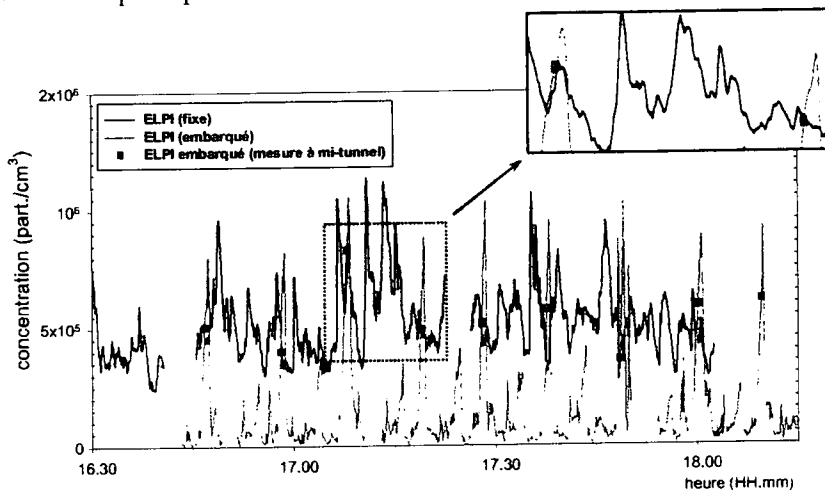


Figure 2 : profils de concentration temporels

On constate principalement :

- que la concentration moyenne au niveau du sas fluctue autour de $3 \cdot 10^5$ part./cm³ alors qu'elle est de l'ordre de $5 \cdot 10^4$ part./cm³ en milieu ouvert. Les valeurs moyennes recueillies le matin dans le tube descendant sont un peu plus faibles, $2 \cdot 10^5$ part./cm³.
- que les fluctuations de concentration à l'extérieur du tunnel sont importantes, ce qui correspond aux observations décrites dans la première partie
- que la concentration croît au long du tunnel. Ce point sera examiné plus en détail dans le paragraphe suivant.

Sur les enregistrements il est possible de retrouver les points correspondant aux passages du véhicule devant le sas, indiqués par un carré sur la figure 2. On constate la coïncidence des mesures fixes et embarquées. Ainsi la concentration mesurée en un poste fixe peut fournir la concentration effective au niveau des véhicules. Cette conclusion est logique dans un espace confiné tel le tunnel. Elle ne saurait être généralisée.

c) Profils de concentration le long du tunnel

Les figures 3 et 4 présentent les différents profils de concentration mesurés lors de la campagne ainsi que leur moyenne sur les tubes montant et descendant. La figure 5 permet de comparer les profils moyens des deux tubes.

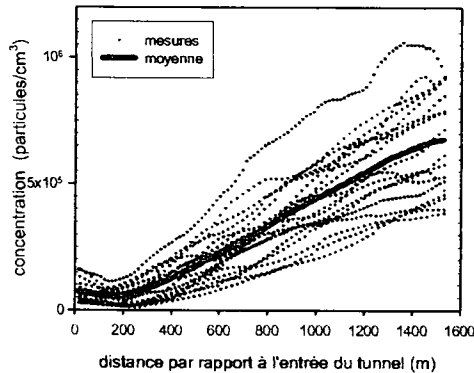


Figure 3 : profils de concentration / distance (tube montant)

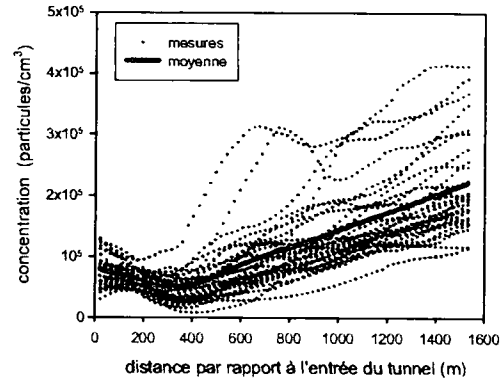


Figure 4 : profils de concentration / distance (tube descendant)

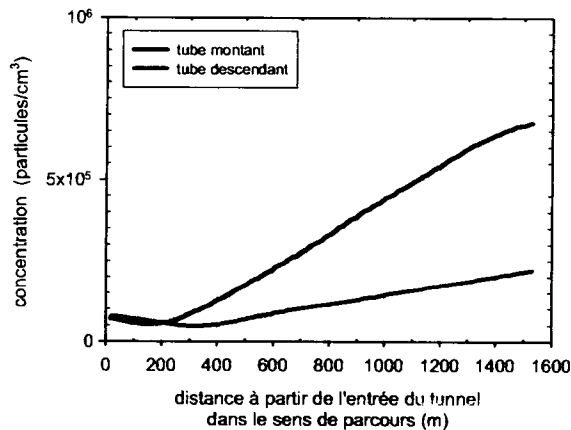


Figure 5 : profils de concentration moyens / distance

Plusieurs points sont à noter :

La répétitivité de la forme des profils obtenus lors des différents passages. Ceci est particulièrement marqué dans le tunnel montant.

La forme caractéristique des profils moyennés : une baisse paradoxale de la concentration à l'entrée du tunnel sur plus de deux cent mètres suivie d'une remontée quasi linéaire. La baisse est attribuée à un effet, dit effet piston, lié au déplacement des véhicules. Cet effet provoque un entraînement d'air frais à l'entrée du tunnel. Enfin l'augmentation de la concentration au fur et à mesure du tunnel est, logiquement, plus élevée dans le tunnel montant.

d) Modélisation

On considère l'atmosphère du tunnel comme composée de deux couches superposées. La plus basse, dans laquelle circulent les véhicules à la vitesse moyenne v_1 , est d'épaisseur h_1 , la concentration particulière est n_1 . La couche supérieure, d'épaisseur h_2 et de concentration n_2 , correspond à une couche d'air entraînée à la vitesse v_2 . La production de particules par unité de surface et de temps dans la couche basse est constante, égale à s . Les particules sont échangées entre les deux couches proportionnellement à leur différence de concentration par l'intermédiaire d'un coefficient α . Le tunnel est en première approximation bidimensionnel, la largeur du tunnel n'intervenant pas.

Le système d'équations correspondant s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_1}{\partial t} + v_1 \frac{\partial n_1}{\partial x} &= \frac{s}{h_1} - \frac{\alpha}{h_1} (n_1 - n_2) \\ \frac{\partial n_2}{\partial t} + v_2 \frac{\partial n_2}{\partial x} &= + \frac{\alpha}{h_2} (n_1 - n_2) \end{aligned} \quad (1)$$

Auquel on ajoute les conditions initiales :

$$\begin{aligned} n_1(0) &= 0 \\ n_2(0) &= n_{10} \end{aligned}$$

En considérant uniquement l'état stationnaire, le système (1) se simplifie. Après adimensionalisation et résolution analytique nous obtenons l'équation décrivant l'évolution de la concentration particulaire n_1 , ramenée à la concentration initiale n_{10} , en fonction de la distance x à l'entrée du tunnel, à savoir :

$$\begin{aligned} \frac{n_1}{n_{10}} &= \left[\frac{k_1 k_2}{1 + k_1 k_2} + \frac{s}{\alpha n_{10}} \frac{(k_1 k_2)^2}{(1 + k_1 k_2)^2} \right] \exp\left(-\frac{\alpha}{h v_1} \frac{(1 + k_1 k_2)(1 + k_1)}{k_1 k_2} x\right) + \frac{s}{h n_{10} v_1} \frac{1 + k_1}{1 + k_1 k_2} x \\ &+ \frac{1}{1 + k_1 k_2} - \frac{s}{\alpha n_{10}} \frac{(k_1 k_2)^2}{(1 + k_1 k_2)^2} \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} k_1 &= h_2 / h_1 \\ h &= h_1 + h_2 \\ k_2 &= v_2 / v_1 \end{aligned}$$

L'équation (2) est une équation à trois paramètres a,b,c de la forme :

$$y = a \exp(-bx) + cx + 1 - a \quad (3)$$

dont les coefficients peuvent être ajustés avec les résultats expérimentaux. Le meilleur accord conduit aux figures 6 et 7.

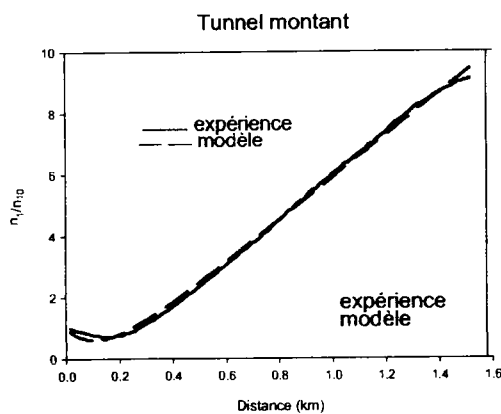


Figure 6 : expérience / modèle
(tube montant)

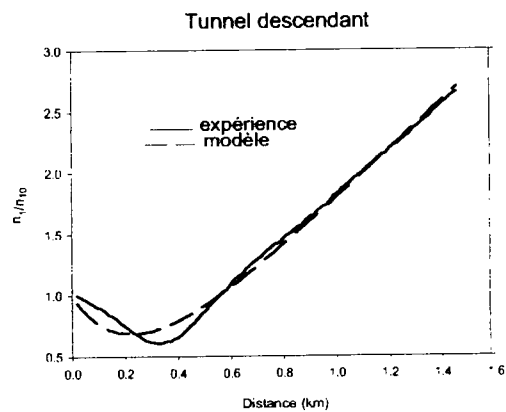


Figure 7 : expérience / modèle
(tube descendant)

Cet accord est bon, en particulier pour le tube montant. Il est moins bon pour le tube descendant en ce qui concerne l'effet piston. Néanmoins la forme est respectée. Ceci s'explique probablement par le fait que les profils descendant sont plus irréguliers que les profils montants.

4- Conclusion

La traversée d'une zone polluée est signalée aux occupants d'un véhicule par des observations visuelles et olfactives comme la fumée noire d'une voiture mal réglée ou l'odeur émanant d'une zone industrielle. Ces sensations sont nettes mais qualitatives donc peu utilisables. Les mesures embarquées permettent de quantifier les quantités de polluant pénétrant dans un habitacle et donc de connaître les quantités réelles auxquelles sont soumises les passagers.

Plusieurs points peuvent être retenus :

- la concentration en particules peut varier d'un facteur 100 au long d'un trajet
- la valeur moyenne est insuffisante pour rendre compte de la situation réelle
- les phénomènes transitoires (démarrage, dépassement...) génèrent des pics importants, le temps caractéristique d'acquisition doit être suffisamment fin pour les apprécier.

Une étude spécifique en tunnel conduit à observer deux phases en fonction de la distance parcourue à partir de l'entrée:

- une décroissance paradoxale de la concentration dans une première partie,
- une croissance quasi linéaire de la concentration ensuite.

Un modèle à deux couches permet de rendre compte de cet effet.

Enfin il est important de noter que, dans ce cas, la mesure en poste fixe fournit une valeur identique à la valeur embarquée.

- 1- KIM S. H. , LEE J. M. , SUNG M. H. Structural-acoustic modal coupling analysis and application to noise reduction in a vehicle passenger compartment Journal of sound and vibration. 225 ,p. 989 - 999 (99)
- 2- LEMAITRE N., MEYER M., BURGUN F. : Air Quality and Odors Evaluation for Passenger Compartment SAE Tech. Paper N° 950016 (95)
- 3- PTAK T.J. Recent development in Testing the Efficiency of Automotive Cabin Filters SAE Tech. Paper N° 980871 (98)
- 4- ZAGURY A., LE MOULLEC Y, MOMAS I Exposure of taxi drivers to automobile air pollutants within their vehicles. Occup. Environ. Med. 57, p. 406-410 (00)
- 5- JO W-K. and YU C-H. Public Bus And Taxicab Drivers' Exposure to Aromatic Work-Time Volatile Organic Compounds. Environ Research, A86, 66-72 (01)
- 6- RANK J , FOLKE J , JESPERSEN P-H, Difference in cyclists and car drivers exposure to air pollution from traffic in the city of Copenhagen. Science of the total environment (2001), V 279, pp131-136.
- 7- EPA «Air quality criteria for particulate matter». (1996) EPA/600/P-001L vol2 (96)

Origines et distribution granulométrique de l'aérosol d'une station souterraine du métro parisien

N. FISCHER*(1,2), S. MAZOUÉ (1), E. GEHIN (2), A. RENOUX (3)

(1) RATP, Département Environnement et Sécurité, LAC R277, 13 rue Jules Vallès, 75547 PARIS CEDEX 11

(2) CERTES, (3) LPATC, Université PARIS XII, 61 avenue du Général de Gaulle, 94010 CRETEIL CEDEX

1 INTRODUCTION

Depuis des années, la RATP surveille la qualité de l'air présent dans les stations de son réseau souterrain. Cette surveillance consiste en un suivi continu, dans 2 stations souterraines, des niveaux de plusieurs paramètres gazeux et de la concentration pondérale de la fraction PM_{10} de l'aérosol. Par ailleurs, la RATP a engagé depuis l'an dernier une vaste étude visant à approfondir la connaissance de l'aérosol présent dans l'atmosphère de ses espaces souterrains. Des mesures de concentrations massiques ainsi que des prélèvements sur filtres sont réalisés pendant 4 semaines dans certaines stations sélectionnées pour leur représentativité des réseaux métro et RER de la RATP. Ces prélèvements sont suivis d'analyses chimiques effectuées en laboratoire. Un site extérieur est instrumenté en parallèle et à l'identique du site souterrain pour constituer un point de référence. Cette étude permet de quantifier les niveaux PM_{10} et d'apprécier la nature de l'aérosol auquel sont soumis les usagers et le personnel de la RATP. Au cours d'une de ces expérimentations, deux analyseurs supplémentaires ont été mis en œuvre au niveau du quai afin d'apprécier la distribution granulométrique des particules en suspension dans l'air de la station choisie.

2 PROTOCOLE EXPERIMENTAL

2.1 Choix de la station à instrumenter

Des campagnes d'étude de l'aérosol ont déjà été réalisées ces dernières années dans 3 stations souterraines (Lesaint, 1999 ; Couty, 2000 ; Fischer, 2001). La station retenue pour notre investigation diffère de celles précédemment étudiées selon certains critères pouvant influencer la nature physique et chimique de son aérosol :

- ✓ Le tunnel jouxtant la station est équipé d'un ventilateur fonctionnant en extraction à un débit de $60 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$.
- ✓ Le matériel roulant possède des roues fer
- ✓ Enfin les organes de freinage sont faits de matériaux composites

Par ailleurs cette station est de configuration simple et longue en souterrain une artère parisienne assez fréquentée. Enfin, elle fait également partie d'un panel de 20 stations sélectionnées pour leur représentativité et dont l'aérosol doit être caractérisé à l'occasion d'une vaste campagne de mesure. C'est dans ce contexte que notre étude a été réalisée.

2.2 Protocole expérimental

La station d'intérêt a été instrumentée pendant 4 semaines. Deux sites ont été mis en place : un au milieu du quai de cette station et l'autre au niveau de la rue, à proximité d'un accès à la

station et également à moins de 10 m d'un carrefour parisien très fréquenté. Les moyens de mesures mis en œuvre sur ces deux sites sont identiques et détaillés ci-après :

2.2.1 *Mesure de la concentration PM₁₀ en continu*

Un TEOM (Rupprecht & Patashnik), qui réalise une mesure dynamique de la masse d'aérosol suivant le principe de la microbalance oscillante, est programmé pour enregistrer les concentrations PM₁₀ quart-horaires.

2.2.2 *Prélèvements sur filtres et analyse physico-chimique*

Un échantillonneur séquentiel de type Partisol+ (R&P) prélève l'aérosol PM₁₀ et dissocie les fractions fine (PM_{2,5}) et grossière (PM_{2,5-10}) grâce à un séparateur dichotomique. Chaque prélèvement dure 24 h. Les analyses chimiques faisant suite à ces échantillonnages nécessitent l'utilisation des trois types de filtres différents selon les espèces chimiques à analyser.

- ✓ Filtres en fibres de verre téflonées (Pallflex), pour une analyse par électrophorèse capillaire afin de déterminer les concentrations en anions et cations (analyse faite au 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 au 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 au Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux Gradignan).

Chaque type de filtre sert de média filtrant tous les 3 jours en concordance avec les prélèvements extérieurs.

2.2.3 *Analyse de la distribution granulométrique de l'aérosol*

Deux analyseurs supplémentaires sont placés aux côtés du TEOM et du Partisol+ pendant 12 jours au niveau du quai. En effet il est apparu nécessaire de compléter nos connaissances sur l'aérosol présent dans l'air du métro en investiguant sa distribution granulométrique et ses concentrations dans les dimensions submicroniques. Pour ce faire, nous mettons en œuvre :

- ✓ Un impacteur électrique basse pression (ELPI, *Dekati*). Le fonctionnement de cet appareil est décomposable en 3 phases. L'aérosol échantillonné au travers d'une tête de prélèvement PM₁₀ est d'abord chargé par effet couronne. Il est ensuite soumis à une classification inertielle à basse pression, au travers d'un impacteur en cascade. Celui-ci est constitué de 12 étages qui permettent de séparer des particules de diamètre compris entre 30 nm et 10 µm. Enfin les particules chargées sont détectées sur chaque étage par un électromètre. Cet appareil a donc la faculté de donner une réponse en temps réel ; la période d'acquisition choisie pour notre étude a été fixée à 15 s.
- ✓ Et un analyseur différentiel de mobilité électrique (SMPS, *TSI*). Cet appareil consiste en l'association en série de deux moyens de mesure. L'aérosol échantillonné est également chargé par passage à travers un nuage d'ions bipolaires puis séparé en une centaine de classes par un classificateur DMA qui sélectionne les particules selon leur mobilité électrique tandis qu'à chaque séparation la concentration numérique de la gamme est aussitôt mesurée par un compteur à noyaux de condensation. Nous avons choisi de programmer le SMPS pour qu'il balaye l'ensemble de la gamme en 180 s puis de faire l'acquisition de la distribution moyenne de 5 distributions successives (t = 15 min).

3 RESULTATS

3.1 Mesure pondérale et spéciation chimique

3.1.1 *Concentration massique*

Grâce au suivi quart-horaire de la concentration massique PM_{10} en station et en souterrain, il est possible d'obtenir le profil moyen de chaque environnement, du lundi au vendredi. Le profil extérieur est conforme à ceux observés classiquement sur les sites urbains parisiens avec une augmentation constante de 6 h 00 à 10 h 00 du matin pour atteindre des valeurs légèrement supérieures à $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ qui se stabilisent entre 40 et $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ dans l'après-midi. La concentration en station suit le profil classique systématiquement constaté lors de précédentes campagnes de mesure en souterrain. Deux pics apparaissent aux heures de pointe du matin et du soir aux alentours de $200 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, tandis que pendant la période creuse la concentration redescend sous le seuil de $150 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Hors exploitation, la concentration PM_{10} en souterrain tend à rejoindre celle de l'extérieur qui est alors de l'ordre de quelques dizaines de $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. On aura pu remarquer au cours de cet essai que la fraction fine ($PM_{2.5}$) ne compte que pour moins de 50 % de la concentration PM_{10} .

La RATP adapte le trafic des trains à la fréquentation de chaque ligne. Grâce à des données statistiques internes, il a pu être mis en évidence, sur un pas de temps de 30 minutes, l'existence d'une corrélation entre la concentration PM_{10} et des paramètres d'exploitation de la station. Ceci est valable pour le nombre d'usagers entrant dans la station ainsi que pour le nombre de trains passant en station. En effet, il existe entre la teneur PM_{10} et ces deux séries de données des coefficients de corrélation respectifs de 0,88 et 0,82.

3.1.2 *Bilan massique*

Les trois types d'éléments chimiques analysés au cours de cette campagne ont permis d'aboutir à l'explication d'une grande partie de la composition chimique des aérosols $PM_{2.5}$ et PM_{10} . L'aérosol extérieur présente la composition retrouvée la plupart du temps sur l'aérosol parisien, c'est à dire des fractions ionique et carbonée représentant plus des 2/3 de sa masse. Le rôle joué par les éléments traces est en revanche faible, inférieur à 10 %. Lorsqu'on considère l'aérosol de la station, les éléments ioniques et carbonés voient leur contribution massique chuter malgré un faible enrichissement en carbone organique. Globalement, seuls les éléments métalliques sont enrichis dans l'aérosol de la station par rapport aux particules extérieures. Cette conclusion semble indiquer que des particules sont produites en souterrain.

3.1.3 *Signature de l'aérosol PM_{10} par les émissions du freinage*

L'étude présentée au cours du précédent congrès sur les aérosols a mis en évidence que le freinage est bien une source interne avérée si on se réfère à la concentration PM_{10} (Fischer et al., 2001). Il est souhaitable de comparer la composition élémentaire des émissions issues de la sollicitation des matériaux de freinage équipant cette ligne à celle de l'aérosol échantillonné au cours de notre essai afin d'envisager la contribution du freinage à l'empoussièrément de cette station. Il apparaît que tous les éléments émis par le freinage sont détectés en station comme sur la Figure 1. Néanmoins les fractions élémentaires sur l'aérosol de la station ne sont pas identiques à celles de l'émission. C'est pourquoi le freinage ne suffit pas à expliquer la concentration de tous les éléments métalliques. Il existe donc au moins une autre source de PM_{10} liée au réseau et qui devrait expliquer la présence d'éléments tels que le titane et le

plomb, qui sont absents de la composition des matériaux composite ainsi que de l'aérosol extérieur.

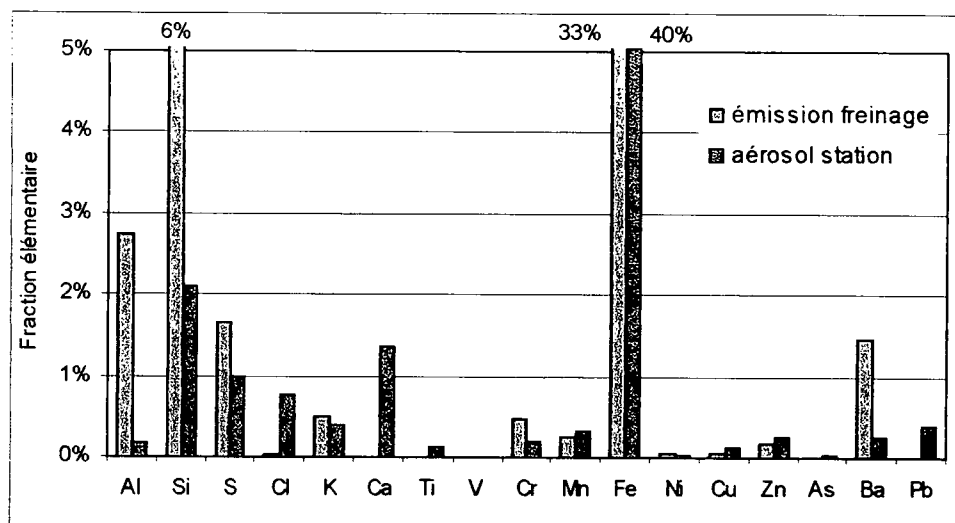


Figure 1 – Fraction massique des éléments métalliques dans l'aérosol

3.2 Distribution granulométrique en nombre

3.2.1 *Distribution « tri-horaire »*

Le choix de la gamme de mesure du SMPS – réalisé en partie grâce aux premiers résultats donnés par l'ELPI – entre 7 et 305 nm nous a permis de cerner avec précision la distribution granulométrique de l'aérosol. Les premières constatations de distributions « tri-horaires » sur une journée font état d'une diminution de la concentration en nombre lors de l'arrêt du trafic pour toutes les dimensions analysées. Par ailleurs, comme il pouvait être envisagé, les concentrations maximales apparaissent entre 6 h et 12 h. Le fait marquant découlant de l'observation de ces 8 courbes qui représentent la distribution moyenne sur 3 h est que le mode reste sensiblement constant puisque toujours compris entre 35 et 40 nm au cours d'une journée.

3.2.2 *Comparaison de la réponse des 2 méthodes*

Cet essai constituait la première investigation de la distribution granulométrique de l'aérosol d'une station du réseau et les 2 appareils fonctionnant selon des principes différents, il a été choisi de comparer la concentration numérique totale sur une partie commune de leur gamme de mesure, entre 29 et 259 nm. Le traitement des données s'est fait pour une journée, à partir des données quart-horaires. Il s'avère que les profils se suivent pratiquement parfaitement puisque le coefficient de corrélation reliant les deux séries est de 0,98. Il existe néanmoins une différence d'amplitude des deux réponses que l'on peut raisonnablement attribuer à la méconnaissance de la densité de l'aérosol de la station. En effet, les 2 appareils requièrent l'entrée de ce paramètre avant de calculer les distributions. Dans les 2 cas il a été choisi de prendre $d = 1$. Les réponses des deux appareils obéissent alors à l'équation : $[ELPI] = 0,67[SMPS]$.

3.2.3 Comparaison station / extérieur – concentration

A l'occasion de ces 12 jours d'expérimentation, il a été choisi de placer le SMPS pendant 48 heures dans le camion laboratoire afin d'apprécier la distribution granulométrique de l'aérosol extérieur. Le tracé sur une même figure des profils de la concentration numérique extérieure sur la plage 29 – 259 nm et de la concentration mesurée simultanément en station par l'ELPI - multipliée par l'inverse du facteur précédent - met en évidence que les brusques variations extérieures, relevées par le SMPS, ne sont pas répercutées en souterrain. En effet l'amplitude des variations en station est beaucoup plus adoucie, néanmoins les deux profils de concentration se suivent. Il semble donc bien exister un transfert entre les deux atmosphères. Il convient alors d'appréhender aussi les deux distributions granulométriques.

3.2.4 Comparaison station / extérieur – distributions granulométriques

La Figure 2 illustre les profils moyens obtenus grâce au SMPS dans les deux environnements. Celui de l'aérosol souterrain représente donc une moyenne sur 12 jours alors que celui de l'extérieur est calculé à partir de 2 jours de données quart-horaires.

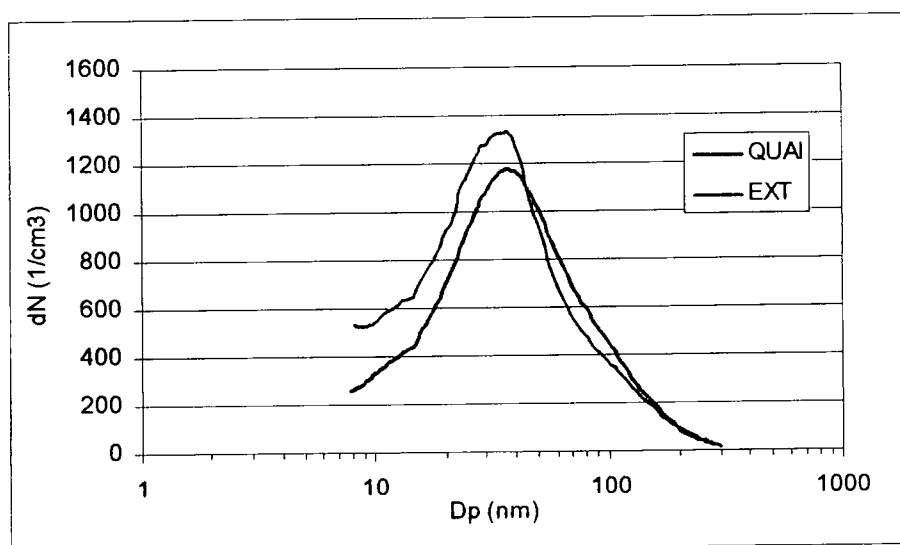


Figure 2 – Distribution granulométrique en nombre

Néanmoins les deux profils sont très voisins en terme d'amplitude et donc de concentration par plage granulométrique. On s'aperçoit également que la valeur du mode est proche pour les deux aérosols. Ces observations confortent l'hypothèse d'une communication entre les deux environnements et d'un transfert d'aérosol, au moins dans cette gamme de dimensions.

3.2.5 Corrélation trafic – concentration numérique

La concentration PM_{10} mesurée en continu dans les stations de métro présente l'avantage d'être bien corrélée à certains paramètres d'exploitation comme le trafic des trains et le nombre d'usagers entrant dans la station (cf. §3.1.1).

Nous avons profité de cette étude pour chercher s'il existe également une corrélation entre l'augmentation de la concentration numérique des particules en souterrain et celle du nombre de trains passant en station. Cette partie d'essai a été mis en œuvre au cours de deux débuts de matinées (27 et 28/05/02) au moment de la reprise de l'exploitation du métro. Au vu du tracé de l'évolution du coefficient de corrélation en fonction de la granulométrie, on peut remarquer une faible corrélation pour des particules de diamètre inférieur à une vingtaine de nm. Cette observation doit être relativisée puisque le CNC associé au SMPS ne présente pas une

efficacité de comptage optimale sous les 20 nm ; ce peut donc être la cause de l'absence de corrélation apparente. En revanche dès que les dimensions dépassent quelques dizaines de nm, on observe une bien meilleure relation entre la concentration numérique des particules en suspension et le nombre de trains passant en station. Ceci est également vérifié avec les données de l'ELPI, pour les granulométries plus fortes.

4 CONCLUSION

Grâce à cette expérimentation de 4 semaines, nous avons pu observer que la concentration PM_{10} est plus forte dans la station qu'à l'extérieur. D'autre part, on constate une nette corrélation entre la concentration PM_{10} et l'exploitation du métro. Concernant la composition chimique de l'aérosol de cette station, elle est très peu marquée par les éléments solubles notamment les sulfates et nitrates qui caractérisent l'aérosol extérieur. On a pu également constater un enrichissement en carbone organique traduisant la présence d'une source interne. Mais l'aérosol PM_{10} est principalement composé d'éléments métalliques en partie issus des émissions du freinage des trains. Mais il existe aussi d'autres sources non-identifiées qui doivent contribuer à la quantité restante de ces éléments et qui expliqueraient la présence d'autres éléments comme le plomb par exemple.

La mise en œuvre pendant 12 jours de l'ELPI et du SMPS au niveau du quai de la station a permis pour la première fois de cerner la distribution granulométrique en nombre de l'aérosol d'une station du réseau. Elle est caractérisée par un pic situé entre 35 et 40 nm toute la journée et est semblable à la distribution de l'aérosol extérieur ce qui évoque un transfert de l'aérosol submicronique entre les deux atmosphères. Enfin nous avons pu démontrer que la reprise de l'exploitation s'accompagne d'une augmentation des concentrations en nombre de l'aérosol supérieur à une vingtaine de nm. Il conviendra donc de mener au moins une expérimentation complémentaire afin de confirmer précisément que l'aérosol extérieur est bien le contributeur majoritaire à l'aérosol submicronique souterrain du réseau RATP.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Lesaint, T. (1999). Caractérisation de l'empoussièrement du métro parisien : contribution des organes de freinage du matériel roulant. Rapport d'essai interne RATP.
- 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.
- Fischer, N. (2001). Compréhension des mécanismes d'aérocontamination croisés à la station Bréguet-Sabin. Rapport d'étude interne RATP, n° DEE / E01-5213.
- Fischer, N., Mazoué, S., Renoux, A. (2001). Etude d'aérocontamination croisée d'aérosols entre l'extérieur et l'intérieur d'une station du métro parisien. ACTES du 17^{ème} CFA, ASFERA, p103-108.

DETERMINATION EXPERIMENTALE DE FACTEURS DE FORME DYNAMIQUE PAR COMPARAISON DES TECHNIQUES COULTER ET IMPACTEUR EN CASCADE.

O. Witschger*, R. Wrobel

Laboratoire de Métrologie des Aérosols,
INRS, BP 27, 54501 Vandoeuvre Cedex.
**olivier.witschger@inrs.fr*

et

S. Fauvel, G. Basso et F. Gensdarmes

Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols et du Confinement,
IRSN/DPEA/SERAC, Bat 389, BP68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex.

TITLE

Experimental determination of dynamic shape factors by comparison of the Coulter and impactor techniques.

ABSTRACT

Aerosols from natural and man-made sources are often non-spherical in shape. Particle size and shape are important characteristics because they largely influence the aerodynamic behavior of aerosols. Among the several existing shape factors, the dynamic shape factor is often used. It is defined as the ratio of the drag force on a particle to the drag force on the particle's mass equivalent sphere at the sedimentation velocity. For non porous particles, the dynamic shape factor relates the aerodynamic diameter to the volume equivalent diameter. The methodology developed in the present study allows to measure the dynamic shape factor as a function of the particle size for polydisperse aerosols. It consists in comparing the results of two particle size distributions measurements. The first is obtained on sampled aerosols with the Coulter technique. The second is conducted in parallel with the cascade impaction technique. The experiments have been carried out in two laboratories. Several dynamic shape versus particle size dependences have been measured for test aerosols made of glass spheres or alumina particles. Altogether, the results obtained are coherent and repeatable in the particle size range between 1 to 12 micrometers. Besides the numerous applications of this work, the results obtained contribute to the improvement of the precision and quality of the particle size measurements.

RÉSUMÉ

Outre la taille et la densité des particules qui composent un aérosol, une caractéristique importante à connaître si l'on s'intéresse à décrire précisément son comportement aérodynamique est la forme des particules. Parmi les différents facteurs de forme que l'on peut déterminer, le facteur de forme dynamique est le plus important. Il est défini comme le rapport entre la force de traînée de la particule irrégulière considérée et celle d'une particule sphérique ayant la même masse et la même vitesse de sédimentation dans l'air tout en étant composée du même matériau. Pour des particules composées d'un matériau non poreux le facteur de forme dynamique fait le lien entre le diamètre équivalent en volume et le diamètre équivalent aérodynamique. La méthode développée permet de mesurer l'évolution du facteur de forme dynamique en fonction de la taille des particules d'un aérosol polydispersé et composé de particules solides. Elle consiste à comparer les résultats d'une mesure effectuée suivant la technique Coulter (mesure du diamètre équivalent en volume) à ceux d'une mesure effectuée à l'aide d'une technique d'impaction en cascade (mesure du diamètre aérodynamique). La méthode a été appliquée dans deux laboratoires distincts pour étudier l'évolution du facteur de forme dynamique en fonction de la taille des particules pour quatre aérosols d'essai, dont un était composé de microsphères en verre et trois étaient composés de particules non sphériques d'alumine. La méthode mise en œuvre conduit à des résultats cohérents et bien répétables sur une gamme de diamètre comprise entre environ 1 et 12 micromètres. Outre les nombreuses applications de ce travail, les résultats obtenus participent directement à l'amélioration de la précision et de la qualité des mesures de diamètres des aérosols.

INTRODUCTION

Il existe très peu d'aérosols, d'origine naturelle ou non, qui soient constitués de particules sphériques. Outre la taille et la densité des particules qui composent un aérosol, une caractéristique également essentielle à connaître si l'on s'intéresse à décrire précisément son comportement aérodynamique est la forme des particules. Parmi les différents facteurs de forme que l'on peut déterminer, le facteur de forme dynamique est le plus important puisqu'il exprime le mouvement relatif de la particule considérée par rapport à celui d'une particule sphérique prise souvent en référence (Baron et Willeke, 2001).

Par définition, le facteur de forme dynamique χ est le rapport de la force de traînée de la particule non sphérique considérée à la force de traînée de la particule ayant même masse et même vitesse de sédimentation V_s dans l'air. Sous l'action de la pesanteur et en régime de Stokes, on peut écrire la relation suivante pour la force de traînée F_D qui exprime la résistance de l'air au mouvement de la particule :

$$F_D = \frac{3\pi\eta\chi D_{em} V_s}{C_C(D_{em})} = \frac{\pi}{6} \rho_p D_{em}^3 g \quad (1)$$

où D_{em} désigne le diamètre équivalent en masse de la particule, $C_C(D_{em})$ le facteur correctif de Cunningham relatif au glissement des particules sur les molécules de l'air, ρ_p désigne la masse volumique de la particule, η la viscosité dynamique de l'air et g l'accélération de la pesanteur.

Par ailleurs, toujours en régime de Stokes, la vitesse de sédimentation en fonction du diamètre aérodynamique D_{ae} s'exprime de la façon suivante :

$$V_s = \frac{\rho_0 D_{ae}^2 C_C(D_{ae})}{18\eta} g \quad (2)$$

où ρ_0 désigne la masse volumique de référence (1000 kg/m³).

Si la particule est composée d'un seul matériau non poreux, on a une équivalence entre D_{em} et le diamètre équivalent en volume (D_{ev}). Finalement, dans cette condition et en combinant les relations (1) et (2), on aboutit pour le facteur de forme dynamique à la relation suivante :

$$\chi = \frac{\rho_p D_{ev}^2 C_C(D_{ev})}{\rho_0 D_{ae}^2 C_C(D_{ae})} \quad (3)$$

L'équation (3) montre que le facteur χ fait le lien entre deux diamètres équivalents qui sont D_{ae} et D_{ev} . Pour des particules sphériques on a $\chi = 1$ et $\chi \geq 1$ pour des particules non sphériques ou des agrégats. Lorsque les aérosols sont polydispersés le facteur de forme dynamique peut être une fonction de la taille des particules.

Pour des aérosols composés de particules non sphériques le facteur χ est un facteur à prendre en compte, par exemple dès lors que l'on veut exprimer un résultat d'une mesure en fonction du diamètre aérodynamique alors que l'on a effectué la mesure à l'aide d'une technique qui mesure le diamètre équivalent en volume. L'équation (3) indique qu'une sous estimation du facteur χ conduit à surestimer le diamètre aérodynamique et inversement. Afin d'illustrer ceci la Figure 1 montre l'effet que produirait sur une mesure d'efficacité d'échantillonnage une sous estimation de 20% et une surestimation de 20% du facteur de forme χ . Dans l'exemple théorique présenté l'efficacité d'échantillonnage est prise égale à la convention alvéolaire (NF EN 481, 1993). On observe sur la Figure 1 que l'effet est d'autant plus fort que le diamètre aérodynamique est grand, l'erreur relative (biais) sur l'efficacité d'échantillonnage atteignant près de 50% autour de 8 μm .

Si il existe dans la littérature plusieurs études expérimentales sur le sujet (Allen *et al.*, 1978, Barbe Le Borgne *et al.*, 1986, Brockman *et al.*, 1990, Cheng et Allen, 1988a, Cheng *et al.*, 1988b, Wu et Colbeck, 1996), aucune d'entre elle ne donne de résultats sur des aérosols d'essai polydispersés et composés de particules solides d'alumine. Devant ce constat, une étude ciblée sur le sujet a été entreprise en collaboration entre l'INRS et l'IRSN. Le premier objectif de cette étude était de concevoir une méthode expérimentale simple pour la mesure de facteurs de forme dynamique sur des aérosols polydispersés composés de particules solides insolubles. Le deuxième objectif était de mesurer pour différents aérosols d'essai utilisés habituellement dans les laboratoires des deux instituts les facteurs de forme dynamique des particules suivant la méthode développée.

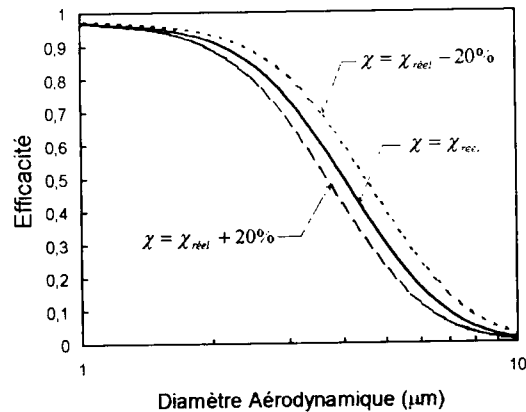


Figure 1 : Influence du facteur de forme dynamique, en fonction du diamètre aérodynamique, sur l'efficacité d'échantillonnage. Calcul effectué pour un écart sur le facteur de forme dynamique de $\pm 20\%$. Hypothèse : la courbe d'efficacité d'échantillonnage réelle suit la courbe conventionnelle alvéolaire.

METHODE

Le principe de la méthode employée pour déterminer expérimentalement le facteur de forme dynamique en fonction de la taille des particules pour un aérosol polydispersé est décrit sur la Figure 2. La méthode consiste à comparer deux résultats de mesures, réalisées en parallèle sur un même aérosol, de distributions granulométriques. La première est effectuée suivant la technique Coulter (Allen, 1999) qui est une technique de référence pour la mesure de la distribution granulométrique en fonction du diamètre équivalent volume (NF X 11-670, 1989). Cette mesure est réalisée sur l'aérosol collecté sur une membrane filtrante à l'aide d'un prélèvement de référence (voir le chapitre sur les moyens expérimentaux). La deuxième mesure est effectuée à l'aide d'un impacteur en cascade pour l'obtention de la distribution en taille en fonction du diamètre aérodynamique.

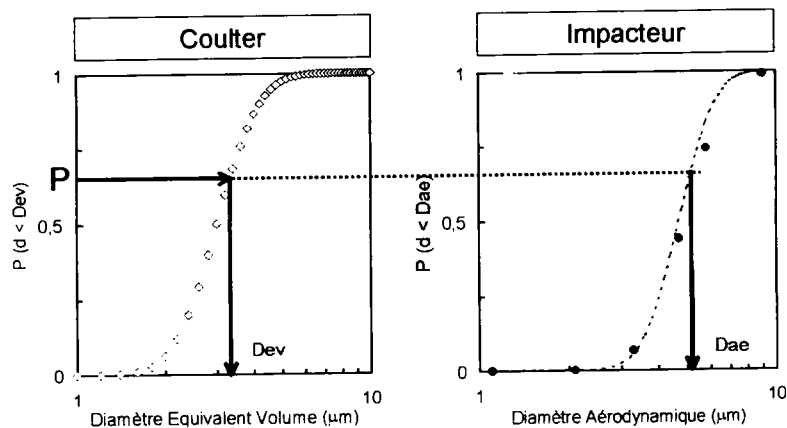


Figure 2 : Description de la méthode employée pour la détermination du facteur de forme dynamique.

La méthode de calcul consiste à faire correspondre à chaque seuil droit du canal de la distribution obtenue à l'aide de la technique Coulter une probabilité cumulée P et un diamètre D_{ev} , et à rechercher sur la distribution obtenue à l'aide de l'impacteur à quel D_{ae} correspond cette même probabilité P .

A partir de la connaissance de la masse volumique ρ_p de la particule, le facteur de forme dynamique est calculé à l'aide de la relation (3). Compte tenu de la plage granulométrique visée par l'étude (supermicronique), la correction de Cunningham n'a pas été prise en compte. La procédure de calcul est réitérée pour chaque canal droit de la distribution en D_{ev} pour obtenir ainsi l'évolution de χ en fonction du diamètre D_{ev} (ou D_{ae}) des particules de l'aérosol. Le nombre de canaux de mesure étant différent entre les deux techniques choisies, un traitement des données est nécessaire pour l'analyse des résultats issus des prélèvements réalisés avec l'impacteur.

Finalement, le facteur de forme dynamique déterminé expérimentalement suivant cette méthode est, pour un diamètre D_{ev} (ou D_{ae}) donné, un facteur de forme moyenné sur un grand nombre de particules.

MOYENS EXPERIMENTAUX

A l'INRS, les essais ont été réalisés dans un tunnel aéraulique basse vitesse (Fabriès *et al.*, 1988). La génération des aérosols d'essai a été effectuée à l'aide d'un lit fluidisé. L'analyse granulométrique suivant la technique Coulter a été réalisée sur 64 canaux de mesure sur l'aérosol échantillonné à l'aide du premier étage de l'impacteur individuel Marple 298 à 2 L/min (Rubow *et al.*, 1987). La distribution granulométrique en fonction du D_{ae} a été mesurée en parallèle à l'aide de la version complète de l'impacteur Marple 298 qui comprend 8 étages de collection dont les diamètres de coupure sont compris entre 0,5 μm et 20 μm .

A l'IRSN, les essais ont été réalisés suivant un protocole expérimental équivalent à celui décrit par Witschger *et al.* (2001). L'analyse granulométrique suivant la technique Coulter a été effectuée sur 64 canaux de mesure sur le filtre de collection du prélèvement de référence du protocole. La mesure de la distribution granulométrique en fonction du D_{ae} a été réalisée à l'aide d'un impacteur Andersen à 8 étages de collection (28,3 L/min) dont les diamètres de coupure sont compris entre 0,3 μm et 10 μm (Mitchell *et al.*, 1988)

Les résultats des mesures réalisées avec les impacteurs ont été analysés suivant trois méthodes :

- interpolation linéaire sur les données brutes,
- ajustement par une droite de Henry en faisant l'hypothèse d'une population mono-modale et log-normale,
- inversion des données suivant une méthode non linéaire de Twomey.

Pour cette dernière méthode, un programme de calcul développé par Berner (1991) à l'INRS a été utilisé.

Quatre aérosols d'essai ont été choisis dont un était composé de microsphères en verre et trois étaient composés de particules d'alumine. Le Tableau 1 présente pour les quatre aérosols les différentes caractéristiques mesurées en termes de granulométrie et masse volumique des particules. Ces dernières ont été mesurées en laboratoire à l'aide d'une technique d'ultracentrifugation (NF EN ISO 787-23, 1995).

Tableau 1 : Caractéristiques des aérosols d'essai utilisés pour l'étude. DVMV : Diamètre Volumique Médian en Volume. ETG : Ecart Type Géométrique. ρ_p : Masse volumique de la particule.

Type	Référence	DMV (μm)	ETG (-)	ρ_p (g/cm^3)
Microsphère en verre	B 3000	6,1	1,7	2,46
Alumine	Aloxite 50	4,7	1,5	3,90
Alumine	SPM 102	3,7	1,5	3,96
Alumine	SPM 105	4,2	1,5	3,88

RESULTATS ET DISCUSSION

Une première série de mesures a été conduite avec l'aérosol d'essai composé de microsphères en verre. Les résultats sont présentés sur la Figure 3 pour les trois méthodes d'analyses des données issues de l'impacteur (interpolation, droite de Henry, inversion). Les facteurs de forme dynamique sont représentés en fonction du D_{ev} et sur une gamme de diamètre qui correspond à ± 1 écart type géométrique par rapport au Diamètre Volumique Médian en Volume (DVMV), ce qui correspond à

68% de la population totale. Les intervalles de confiance représentent la dispersion des résultats sur trois essais réalisés.

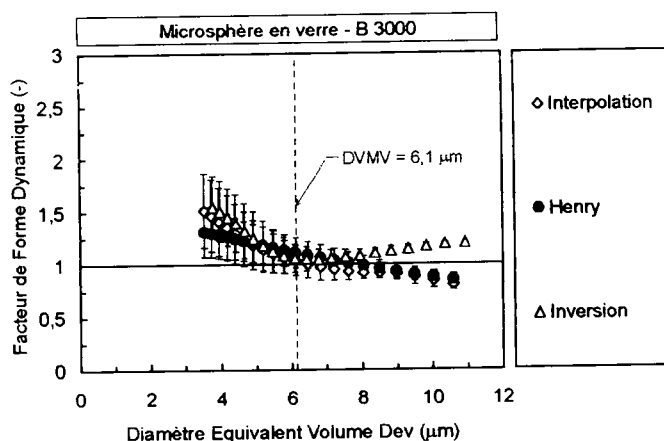


Figure 3 : Facteur de forme dynamique en fonction du diamètre équivalent en volume pour l'aérosol d'essai constitué de microsphères en verre. Comparaison entre les différentes méthodes d'analyse des résultats des mesures effectuées avec les impacteurs. Valeurs moyennes représentées avec leur intervalle de confiance à 95%.

On observe qu'en deçà du DVMV les différentes méthodes conduisent à des facteurs χ relativement équivalents et qu'au-delà du DVMV, et notamment de 8 μm , seule la méthode d'inversion conduit à des facteurs χ réalistes puisqu'ils restent supérieurs à l'unité. Cette même observation a été faite sur les résultats des essais réalisés avec les aérosols d'alumine. Ceci peut s'expliquer d'une part du fait de la « non-idéalité » et du recouvrement des efficacités de collection des impacteurs utilisés, d'autre part du fait d'une différence trop importante en terme de nombre de canaux entre les deux techniques (Coulter et impacteur). En conséquence, l'inversion des données est une phase indispensable pour l'analyse des résultats dans notre méthode.

On peut également noter sur la Figure 3 que le facteur χ évolue en fonction du D_{ev} mais il est toutefois très proche de $\chi = 1$ pour le DVMV. Ces résultats ont été confirmés par mesure indépendante d'indice de circularité en fonction de la taille des particules effectuée sur la poudre employée pour créer l'aérosol d'essai, mais également par des observations réalisées sous microscopie électronique à balayage. Ces résultats indépendants indiquent clairement la présence dans la poudre d'essai de particules non sphériques, ce qui a finalement bien été mesuré en terme de facteur de forme dynamique.

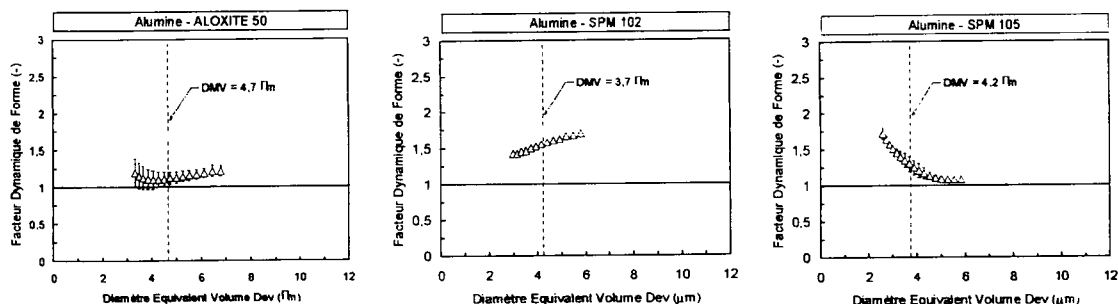


Figure 4 : Facteurs de forme dynamique en fonction du diamètre équivalent en volume pour les trois aérosols d'essai composés de particules d'alumine : Aloxite 50, SPM 102 et SPM 105. Résultats pour la méthode d'inversion pour l'analyse des résultats des mesures effectuées avec les impacteurs. Valeurs moyennes représentées avec leur intervalle de confiance à 95% sauf pour la SPM 102 (un seul essai réalisé).

Une deuxième série de mesures a été réalisée avec les trois aérosols d'essai composés de particules d'alumine. Les résultats sont présentés sur la Figure 4 pour uniquement la méthode d'inversion des données issues de l'impacteur. Une première observation conduit à dire que les essais réalisés aboutissent à des résultats très répétables. En effet, le coefficient de variation sur la dispersion des

résultats est compris pour l'ensemble de la gamme des diamètres entre $\approx 1\%$ et $\approx 15\%$. On peut également observer que l'évolution est différente suivant l'aérosol d'essai. Seul l'aérosol d'Aloxite 50 montre une certaine stabilité de χ en fonction de D_{ev} . Les valeurs de χ mesurées au DVMV pour l'aérosol d'Aloxite 50, d'alumine SPM 102 et d'alumine SPM 105 sont respectivement de 1,15 ; 1,30 et 1,55.

Enfin, l'analyse des résultats des facteurs χ obtenus pour un même aérosol (Alumine, SPM 105) dans les deux laboratoires indique qu'ils sont tout à fait semblables.

CONCLUSION

Pour résumer, une étude en collaboration entre l'INRS et l'IRSN a permis de mettre au point une méthode expérimentale destinée à mesurer l'évolution du facteur de forme dynamique en fonction de la taille des particules pour un aérosol polydispersé. Cette méthode a été utilisée dans les deux laboratoires pour mesurer cette évolution pour quatre aérosols d'essai dont un était composé de microsphères en verre et trois étaient composés de particules non sphériques d'alumine. La méthode mise en œuvre conduit à des résultats cohérents et bien répétables. Par ailleurs les résultats obtenus dans les deux laboratoires sont équivalents.

De nombreuses applications sont concernées : l'hygiène du travail pour l'évaluation des performances d'échantillonnage d'échantillonneurs d'aérosols mais aussi l'étude de l'évolution d'un aérosol dans une enceinte ventilée, la radioprotection des travailleurs pour l'estimation de doses inhalées ou bien encore la sûreté nucléaire pour le calcul du dépôt ou du réentraînement d'un aérosol dans une conduite. Au delà de celles-ci, les résultats issus de cette étude expérimentale participent directement à l'amélioration de la précision et de la qualité des mesures.

RÉFÉRENCES

- Allen, M.D., Moss, O.R., Briant, J.K. (1978) Dynamic shape factors for LMFBR mixed-oxidized fuel aggregates. *J. Aerosol Sci.*, 10, 43-48.
- Allen, T. (1999) Particle Size Measurement. Volume 1. Powder sampling and particle size measurement. Fifth edition. *Kluwer Academic Publisher, Londres, UK*.
- Baron, P.A. et Willeke, K. (2001) Aerosol Measurement. Principles, Techniques and applications. Second Edition. *John Wiley&Sons, Chichester, UK*.
- Barbe Le Borgne, M., Boulaud, D., Madelaine, G., Renoux, A. (1986) Experimental determination of the dynamic shape factor of the primary sodium peroxide aerosol. *J. Aerosol Sci.*, 17, 79-86.
- Berner D. (1991) Exploitation des propriétés physiques d'un aerosol pour la mesure de la taille des particules et de leur concentration. Applications. *Thèse de doctorat d'université. Notes scientifiques et techniques de l'INRS, NS 0083, avril 1991*.
- Brockman, J.E. et Rader, D.J. (1990) APS response to nonspherical particles and experimental determination of dynamic shape factor. *Aerosol Sci. Technol.*, 13, 162-172.
- Cheng, Y.S., Yeh, H.C., Allen, M.D. (1988a) Dynamic shape factors of a plate-like particle. *Aerosol Sci. Technol.*, 8, 109-123.
- Cheng, Y.S., Allen, M.D., Gallegos, D.P., Yeh, H.C., Peterson, K. (1988b) Drag force and slip correction of aggregate aerosols. *Aerosol Sci. Technol.*, 8, 199-214.
- Fabriès, J.F., Carton, B., Wrobel, R. (1984) Equipment for the study of air sampling instruments with real time measurement of aerosol concentration. *Staub-Rheinhaltung der Luft*, 44, 405-409.
- 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.
- Mitchell, J.P., Costa, P.A., Waters, S. (1988) An assessment of an Andersen Mark-II cascade impactor. *J Aerosol Sci*, 19, 213-221.
- NF EN ISO 787-23 (1995) Méthodes générales d'essai des pigments et matières de charge. Partie 23 : détermination de la masse volumique (en utilisant une centrifugeuse pour chasser l'air entraîné). AFNOR, Paris la Défense, octobre 1995.
- NF EN 481 (1993) Atmosphère des lieux de travail – Définition des fractions de taille pour le mesurage des particules en suspension dans l'air. Indice de classement X 43-276, AFNOR, novembre 1993.
- NF X 11-670 (1989) Granulométrie. Analyse granulométrique de particules en suspension dans un électrolyte par compteur à variation de résistance. AFNOR, Paris la Défense, septembre 1989.
- Rubow, K.L., Marple, V.A., Olin, J., McCawley, M.A. (1987) A personal cascade impactor: design, evaluation and calibration. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, 48, 532-538.
- Witschger, O., Fauvel, S., Basso, G., Grinshpun, S.A. (2001) Performance d'échantillonnage de préleveurs individuels d'aérosols en environnement d'air calme et à proximité d'une source de contamination. *Congrès Français sur les Aérosols, Paris, Décembre 2001, publié dans Actes, pp155-162*.
- Wu, Z., Colbeck, I. (1996) Studies of the dynamic shape factor of aerosol agglomerates. *Europhys. Lett.*, 33, 719-724.

ETUDE EN LABORATOIRE ET SUR LE TERRAIN DU SYSTEME CALTOOL

S. Fauvel (1), G. Basso (1) et O. Witschger (2)

(1) Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols et du Confinement, IRSN/DPEA/SERAC,
BP 68, Bât 389, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex, France.
sylvain.fauvel@irsn.fr

(2) Laboratoire de Métrologie des Aérosols, INRS, BP 27, 54501 Vandoeuvre Cedex.
olivier.witschger@inrs.fr

TITLE

Laboratory and field testing of a novel instrument (CALTOOL) for evaluating personal aerosol samplers performances.

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 and granulometry 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 system is basically an aerosol sampler, based around a simplified, idealised breathing head and upper torso of aerodynamic blockage similar to that of a 1.8 m person. This paper reports the progress that has been made in France in the CALTOOL System. The laboratory tests were carried out to determine the sampling efficiency of the CALTOOL in calm air conditions in the particle size range 5 to 30 μm . The field tests were carried out in two different workplace settings (machine shop and a powder nuclear fuel handling facility). The results demonstrate that the CALTOOL, although not perfect, is a suitable reference instrument for evaluating the performance of personal inhalable aerosol samplers

RESUME

Les méthodes d'évaluation des performances des échantillonneurs individuels de la fraction inhalable d'un aérosol utilisent généralement des installations de laboratoire spécifiques telles que des tunnels aérauliques ou des chambres à air calme, 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. Afin de pouvoir également évaluer in situ les performances de ces échantillonneurs, un outil, dénommé CALTOOL (CALibration TOOL) a été développé dans le cadre d'une étude européenne. Notre étude, conduite en laboratoire et sur le terrain, visait à montrer la capacité de CALTOOL à remplir ce rôle. Les résultats obtenus en laboratoire ont permis de déterminer l'efficacité en air calme de l'orifice de prélèvement de CALTOOL. Ils ont aussi montré que les performances des préleveurs positionnés sur le torse de CALTOOL n'étaient pas influencées par celui-ci. Enfin, des rapports de concentrations mesurées avec l'orifice de prélèvement de CALTOOL et avec les préleveurs testés ont été établis pour différentes granulométries. Deux séries d'essais réalisés directement sur des postes de travail ont permis de mesurer d'autres rapports de concentrations ou d'activités volumiques, comparables aux rapports établis en laboratoire. Tous ces résultats montrent clairement l'utilité de l'outil développé.

INTRODUCTION

L'exposition aux aérosols est source potentielle de nuisances pour les individus qui la subissent. Dans le domaine nucléaire, ce risque se traduit en termes de dose engagée, conséquence du dépôt dans les voies aériennes supérieures, dans l'arbre trachéo-bronchique ou dans la région alvéolaire de particules radioactives. L'estimation de cette dose, et plus généralement de l'effet biologique de l'inhalation de particules quelles qu'elles soient, passe par une connaissance, la meilleure possible, des caractéristiques de l'aérosol d'exposition. L'utilisation de préleveurs individuels, échantillonnant la fraction inhalable de l'aérosol en suspension, permet d'avoir accès aux caractéristiques principales de cet aérosol, en l'occurrence la concentration et la granulométrie.

L'utilisation de ces préleveurs implique que leurs performances, en particulier leur efficacité de prélèvement en fonction du diamètre aérodynamique de l'aérosol collecté, soient connues, afin d'obtenir une mesure la plus exacte possible des caractéristiques évaluées.

Les méthodes d'évaluation des performances des échantillonneurs individuels de la fraction inhalable d'un aérosol utilisent des installations de laboratoire spécifiques comme des tunnels aérauliques ou des chambres en air calme. Ainsi, les conditions expérimentales auxquelles sont exposés les préleveurs correspondent à un écoulement d'air uniforme et à un aérosol d'essai homogène du point de vue de sa granulométrie et de sa concentration (prEN 13205, 1998). Cependant, les conditions réelles rencontrées *in situ*, c'est à dire sur un poste de travail, ne correspondent généralement pas à ces conditions expérimentales de laboratoire. En effet, il existe de nombreuses situations où le travailleur se trouve 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 (Baldwin et Maynard, 1998).

Une caractérisation des dispositifs de prélèvement établie directement sur les postes de travail est donc indispensable. C'est dans ce but qu'a été développé le système CALTOOL, comme un dispositif visant à évaluer les performances des préleveurs d'aérosol directement sur le terrain.

Cet article présente les résultats d'expériences réalisées en laboratoire et sur le terrain, afin de démontrer les capacités de CALTOOL à remplir ce rôle.

DESCRIPTION DE CALTOOL ET RESULTATS ANTERIEURS

Conçu dans le cadre d'une coopération européenne, le dispositif CALTOOL se présente comme un échantillonneur permettant l'évaluation *in situ* des performances des préleveurs individuels d'aérosol. Cet outil est en fait un mannequin simplifié constitué d'une tête munie d'un orifice circulaire simulant la bouche d'un individu, d'un torse sur lequel on positionne les préleveurs à tester et d'un caisson contenant une pompe dont la capacité assure à l'aide d'orifices critiques 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'orifice de prélèvement d'un diamètre de 15 mm 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. 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 le rapport entre la concentration mesurée avec le préleveur et celle mesurée grâce au prélèvement de référence situé au niveau de la bouche.

Les premiers essais concernant l'évaluation des performances de CALTOOL ont été conduits essentiellement dans deux laboratoires : l'Institute of Occupational Medicine (IOM) au Royaume-Uni et le National Institute for Working Life (NIWL) en Suède. Ces essais ont montré une équivalence de l'efficacité de prélèvement de CALTOOL à celle d'un mannequin anthropométrique référencé, ainsi qu'une équivalence de l'efficacité de prélèvement de CALTOOL en mode 'aspiration continue' à celle obtenue en mode 'aspiration cyclique', et ce aussi bien en air calme qu'en présence d'air en mouvement.

L'ensemble de ces résultats, décrits dans une précédente publication, montre que le dispositif simplifié équipé d'une respiration continue se conduit comme un mannequin réaliste fonctionnant avec une respiration réaliste (Witschger et al, 2001b).

METHODE EXPERIMENTALE

Les essais en laboratoire ont été réalisés dans l'installation CEPIA (Chambre d'Etude pour les Préleveurs Individuels et d'Ambiance). Cette installation est un volume de 36 m³ (dimension L x l x h = 4m x 3m x 3m) dont les conditions aérauliques sont contrôlées (Fauvel et Witschger, 1999). L'évaluation des performances de CALTOOL ayant lieu dans des conditions d'air calme, l'installation fonctionne ici sans ventilation. Le protocole d'évaluation que nous utilisons permet de mesurer l'efficacité de prélèvement d'un échantillonneur en comparant la concentration d'aérosol qu'il prélève à celle échantillonnée par des sondes à bord mince utilisées comme référence. De telles sondes ont déjà été utilisées lors de précédentes expériences de prélèvement en air calme (Aitken *et al.*, 1999 ; Kenny *et al.*, 1999). La génération d'aérosol est assurée par un générateur à brosse tournante Palas associé à un orifice de dispersion en rotation constante. Cet orifice de dispersion est placé à une hauteur de 1 m 20. Les échantillonneurs en test ainsi que les sondes à bord mince sont situés à 1 m de haut sur un cercle dont l'orifice de dispersion est le centre. Préleveurs et sondes sont à 1 m de l'orifice de dispersion. Nous avons montré, au cours d'une étude précédente (Witschger et al., 2001a) qu'il n'y avait pas d'influence du jet de dispersion de l'aérosol dans la zone de prélèvement des échantillonneurs, que l'homogénéité de la concentration, tant spatiale que temporelle, était réelle dans cette zone de prélèvement et que les sondes à bord mince pouvaient effectivement être utilisées comme référence.

Nous utilisons pour nos essais des poudres d'alumine de différentes granulométries de type SPM fournies par la société Durmax. Afin de prendre en compte la granulométrie de l'aérosol prélevé, nous avons effectué pour chaque type de poudre utilisée des prélèvements sur filtre à l'aide des sondes à bord mince et en avons mesuré la granulométrie selon la technique Coulter avec l'analyseur Multisizer II (Witschger et al., 2001a).

RESULTATS ET DISCUSSION

Inhabilité en air calme

Les premiers essais que nous avons réalisés en laboratoire avaient pour but de mesurer l'efficacité en air calme de l'orifice de prélèvement de CALTOOL pour différentes granulométries, en l'occurrence trois aérosols de diamètre aérodynamique 4,3 µm, 14,1 µm et 29,4 µm.

Les résultats obtenus, comparés à ceux obtenus par l'IOM et le NIWL sont représentés sur la figure n°1. On observe une bonne similitude entre les résultats que nous obtenons et ceux des deux autres laboratoires, alors que notre protocole expérimental est différent. L'ensemble des résultats surestime légèrement la courbe d'inhabilité en air calme proposée par Aitken et al., (1999). Des calculs de biais effectués à partir des résultats précédents montraient un écart inférieur à 6% par rapport à cette courbe quelle que soit la granulométrie utilisée (Witschger et al. 2001). Nos mesures ne remettent pas en cause ce résultat et confirment que CALTOOL prélève de façon représentative et satisfaisante la fraction inhalable d'un aérosol telle qu'elle a été proposée récemment par Aitken et al. (1999).

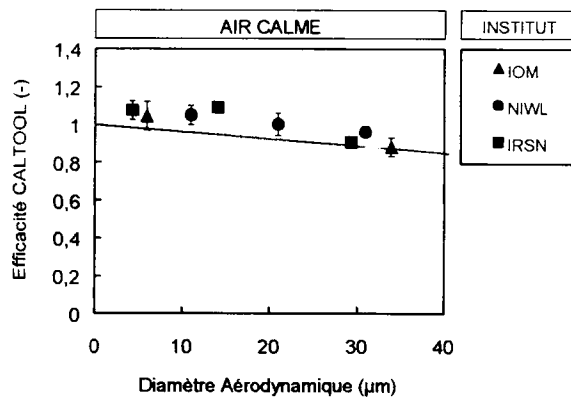


Figure n°1 : Efficacité de CALTOOL en environnement d'air calme et comparaison par rapport à la courbe d'inhabilité en air calme proposée par Aitken et al. (1999). Résultats présentés avec leur intervalle de confiance à 95%.

Influence de CALTOOL sur les préleveurs

Nous avons ensuite cherché à vérifier en laboratoire la non-influence de CALTOOL sur les performances des préleveurs positionnés sur son torse. Nous avons pour cela utilisé deux types d'échantillonneurs individuels, le préleveur IOM et la cassette 37 mm, dont les débits d'aspiration sont respectivement de 2 et 1 l/min. Le préleveur IOM a été employé suivant le protocole établi par le fabricant (pesée de l'ensemble cassette-filtre) et également en prenant en compte uniquement l'aérosol collecté sur le filtre (pesée du filtre uniquement – défini ici comme le *protocole simplifié*). Nous rappelons que ce protocole est plus adapté par exemple aux mesures de radioactivité. La concentration prélevée par un préleveur positionné sur CALTOOL et celle échantillonnée par deux mêmes préleveurs en position isolée ont été comparées. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure n° 2.

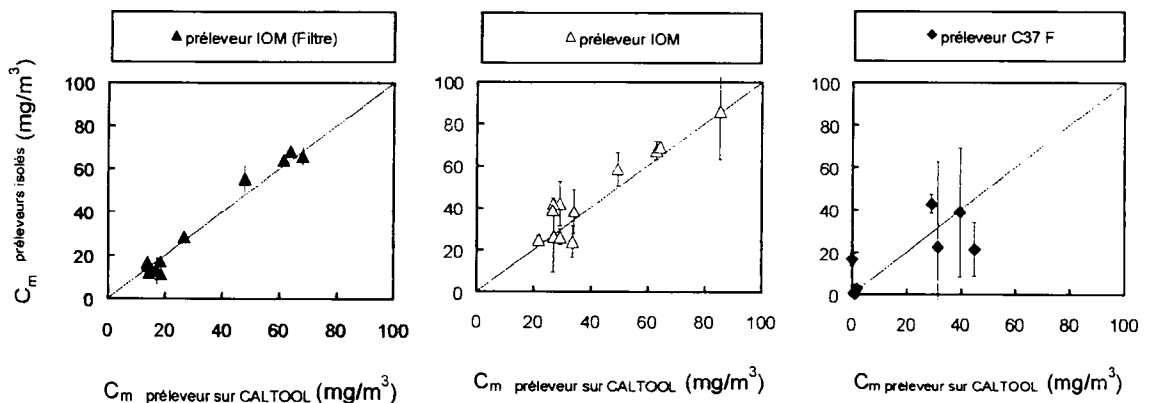


Figure n°2 : Comparaison entre les concentrations mesurées avec un préleveur positionné sur CALTOOL et celles mesurées avec deux préleveurs en position isolée. Résultats présentés avec leur intervalle de confiance à 95%.

On observe pour le préleveur IOM un bon accord entre les concentrations mesurées en position isolée par rapport à celles mesurées sur CALTOOL. Comme lors de notre étude précédente, nous observons une dispersion plus importante lorsque l'ensemble cassette-filtre est pesé plutôt que le filtre seul.

Les résultats obtenus avec la cassette 37 mm sont très dispersés. On observe aussi des concentrations mesurées très faibles lors des essais réalisés avec les granulométries les plus

élevées. Ici encore, ces résultats sont conformes à ce que nous avons déjà observé avec ce préleveur à savoir que son efficacité d'échantillonnage est très faible et peu reproductible (Witschger et al., 2001a).

On peut donc conclure que le système CALTOOL ne modifie pas les performances des échantillonneurs positionnés sur son torse qui sont similaires à celles des mêmes préleveurs en position isolée. Le dispositif permet donc l'exposition de préleveurs à un aérosol sans influencer sa réponse, ce qui est conforme aux conclusions de Kenny et al. (1999).

Efficacités comparées des préleveurs et de CALTOOL

Une troisième série d'essais conduits en laboratoire a permis de déterminer les rapports de concentrations mesurées grâce aux préleveurs positionnés sur le torse de CALTOOL à celle mesurée avec l'orifice de prélèvement du dispositif. C'est ce type de rapport qui est mesurable sur le terrain, où l'orifice de prélèvement de CALTOOL est la seule référence et où il n'y a pas de préleveurs en position isolée. L'efficacité de prélèvement de CALTOOL en air calme, que nous avons précédemment mesurée, nous permet d'utiliser ce dispositif comme référence. Les résultats des essais sont regroupés sur la figure n°3. Nous observons que le rapport de concentration mesurée avec le préleveur positionné sur CALTOOL à celle obtenue avec son orifice de référence est proche de l'unité et indépendant de la granulométrie pour le préleveur IOM si le filtre seul est pesé, mais que ce rapport croît si toute la cassette est prise en compte. Avec la cassette 37 mm, ce rapport est inférieur à l'unité pour un diamètre aérodynamique de 4,3 μm et décroît rapidement lorsque la granulométrie augmente. Rappelons que ce rapport de concentrations en fonction du diamètre aérodynamique de l'aérosol d'essai n'est applicable que parce que la granulométrie mesurée est celle de l'aérosol effectivement prélevé.

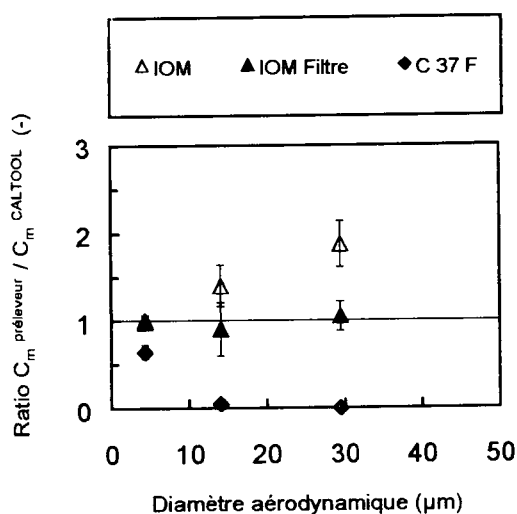


Figure n° 3 : Rapport de la concentration mesurée avec les préleveurs positionnés sur CALTOOL à celle mesurée avec l'orifice de prélèvement de CALTOOL en fonction du diamètre aérodynamique de l'aérosol échantillonné. Résultats présentés avec leur intervalle de confiance à 95%.

Les trois séries d'essais effectués en laboratoire nous ont permis de vérifier d'une part que l'efficacité en air calme de l'orifice de prélèvement de CALTOOL est conforme à celle mesurée par les instituts IOM et NIWL, et surestime légèrement la courbe proposée par Aitken et al. (1999). En conséquence, le dispositif peut dans ces conditions être utilisé comme référence. D'autre part, les performances des préleveurs positionnés sur le torse de CALTOOL ne sont pas influencées par le mannequin simplifié, et celui-ci peut donc être utilisé pour estimer leur réponse dans un environnement d'air calme. Enfin, il existe des rapports de concentrations mesurées avec l'orifice de prélèvement de CALTOOL et avec les préleveurs, établis en laboratoire, qui peuvent être comparés à ceux établis lors de prélèvements *in situ*.

Essais in situ

Deux séries d'essais ont été réalisées dans deux environnements de travail différents, un atelier où la majorité des aérosols émis provenait du ponçage du bois et un atelier d'échantillonnage de combustible nucléaire où de la poudre de minerai d'uranium naturel était manipulée. Le dispositif CALTOOL équipé de quatre préleveurs a été testé dans ces deux environnements. Au préleveur IOM et à la cassette 37 mm fermée ont été ajoutés le préleveur Bouton et la cassette 37 mm ouverte dont les débits respectifs de fonctionnement sont 4 et 2 l/min. L'emplacement choisi était fonction de la place disponible, le plus près possible de la source de contamination sans gêner le ou les opérateurs. Un impacteur Andersen et un compteur Grimm ont été ajoutés pour estimer la granulométrie de l'aérosol émis et suivre l'évolution temporelle de sa concentration. Cependant, les mesures obtenues avec ces deux appareils ne peuvent être considérées comme décrivant de façon certaine les caractéristiques de l'aérosol prélevé par les échantillonneurs individuels et l'orifice de prélèvement de CALTOOL, à la différence de ce que nous avons pu obtenir en laboratoire à l'aide des prélèvements sur filtre. Les résultats obtenus sont exprimés en rapport de la concentration mesurée avec les préleveurs à celle mesurée grâce à l'orifice de prélèvement de CALTOOL. Le tableau n°1 résume les résultats obtenus dans l'atelier de travail du bois.

Tableau n°1 : Rapport de la concentration mesurée avec les préleveurs à celle mesurée avec l'orifice de prélèvement de CALTOOL au cours de quatre journées d'essai. Les diamètres aérodynamiques mesurés à l'aide d'un impacteur Andersen donnent une estimation de la granulométrie de l'aérosol ambiant.

	D ₅₀ (µm)	C _{IOM} /C _{CALTOOL}	C _{IOM Filtré} /C _{CALTOOL}	C _{BOUTON} /C _{CALTOOL}	C _{C37F} /C _{CALTOOL}	C _{C37O} /C _{CALTOOL}
PEINTURE, SOUDAGE, PONÇAGE BOIS	6,9	1,14	1,05	1,01	0,83	0,78
RABOTAGE BOIS	7,3	0,85	0,86	0,84	0,67	0,42
PONÇAGE BOIS (GROS GRAIN)	> 10	0,91	0,86	0,70	-	-
PONÇAGE BOIS (GRAIN FIN)	> 10	0,88	0,88	0,87	0,38	0,34

On observe avec le préleveur IOM un rapport de concentration relativement constant et proche de l'unité. On remarque ici peu de différence entre les résultats obtenus suivant le protocole établi par le fabricant et suivant le protocole simplifié (filtre seul). Cela est sans doute explicable par la granulométrie estimée de l'aérosol, obtenue par prélèvement de l'impacteur Andersen, et qui est proche de 10 µm pour les 4 essais. On peut noter également que la concentration prélevée est relativement faible comme le montre la figure n° 4 et qu'elle induit donc peu de dépôt sur la cassette porte-filtre. Le ratio observé avec la cassette 37 mm fermée est systématiquement inférieur à l'unité. Ces résultats pour ces deux préleveurs sont conformes à ceux obtenus en laboratoire et représentés sur la figure n°3. Le ratio obtenu avec le préleveur Bouton est proche de l'unité, avec un résultat un peu plus faible pour un des essais. La cassette 37 mm ouverte donne des résultats légèrement supérieurs à la cassette 37 fermée mais du même ordre de grandeur.

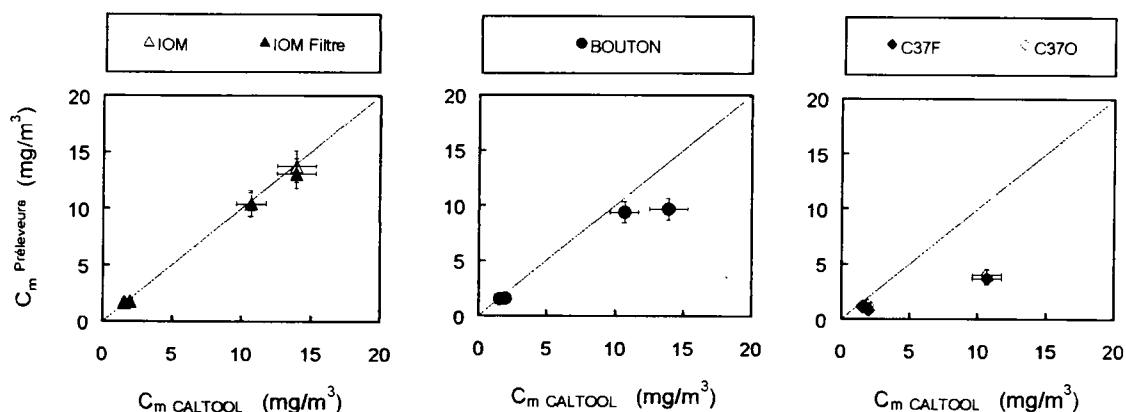


Figure n°4 : Comparaison entre la concentration mesurée avec les préleveurs et celle mesurée avec l'orifice de prélèvement de CALTOOL. Résultats présentés avec leur intervalle de confiance à 95%.

Le tableau n°2 résume les résultats obtenus dans l'atelier d'échantillonnage du combustible nucléaire. On se trouve en présence de particules radioactives au sein d'un aérosol qui ne l'est pas. Nous présentons les résultats d'activités volumiques mesurées par comptage des filtres de prélèvement. On observe pour le préleveur IOM des ratios plus faibles que ceux obtenus en laboratoire et dans l'environnement précédent. Les ratios obtenus avec le préleveur Bouton sont également inférieurs à ceux de l'essai précédent sur le terrain. Les résultats obtenus avec les cassettes 37 mm sont très contrastés. La cassette ouverte montre des ratios d'activité volumique très faibles, alors que ceux de la cassette fermée sont conformes à ceux obtenus en laboratoire pour deux d'entre eux, le troisième étant particulièrement élevé.

Tableau n°2 : Rapport de l'activité volumique mesurée par les préleveurs à celle mesurée par l'orifice de prélèvement de CALTOOL au cours de trois journées d'essais.

	$A_{V \text{ IOM}} / A_{V \text{ CALTOOL}}$	$A_{V \text{ BOUTON}} / A_{V \text{ CALTOOL}}$	$A_{V \text{ C37O}} / A_{V \text{ CALTOOL}}$	$A_{V \text{ C37F}} / A_{V \text{ CALTOOL}}$
1	1,31	0,67	0,52	6,80
2	0,50	0,42	0,13	0,80
3	0,67	0,35	0,19	0,67

On peut expliquer ces résultats par la faiblesse des activités volumiques prélevées (de l'ordre de 0,1 Bq/m³) comme on peut le voir sur la figure n°5. En effet, en prenant comme hypothèse simplifiée que l'uranium naturel est sous la forme chimique U₃O₈ (masse volumique proche de 9 g/cm³) et que le diamètre aérodynamique médian en activité des particules est de 5 µm, cette activité volumique est induite par environ 14000 particules /m³, soit seulement 10 à 20 particules par litre d'air prélevé. Ce nombre peu élevé de particules se traduit en cas d'inhomogénéité de l'aérosol présent par des différences importantes en termes de concentration dans la zone de prélèvement des différents échantillonneurs. Le diamètre de 5 µm pris en compte pour cette estimation est la valeur par défaut préconisée par la CIPR pour les ambiances de travail (ICRP publication 66, 1994). Notons que des mesures précédentes avaient permis d'estimer le diamètre aérodynamique moyen de cet aérosol autour de 7 µm.

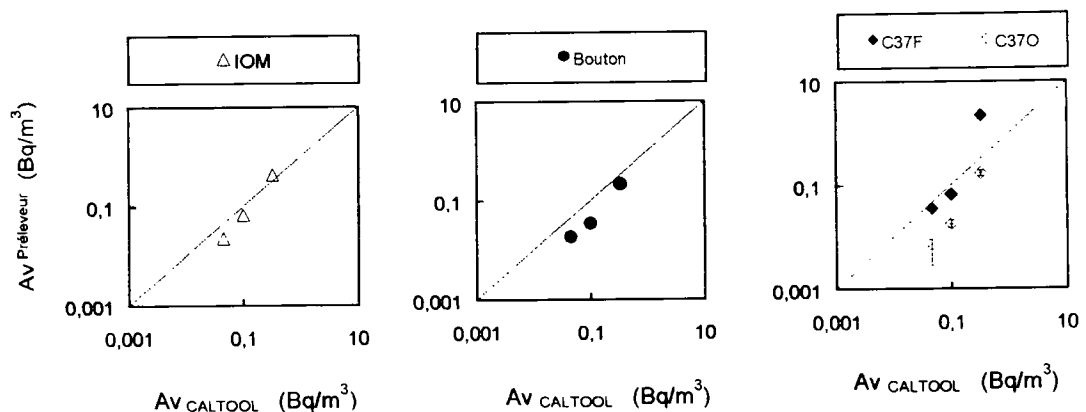


Figure n° 5 : Comparaison entre l'activité volumique mesurée avec les préleveurs et celle mesurée avec l'orifice de prélèvement de CALTOOL. Résultats présentés avec leur intervalle de confiance à 95%.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Les résultats de cette étude montrent que l'efficacité d'échantillonnage en air calme de CALTOOL est proche de la courbe d'inhalabilité proposée par Aitken et al. (1999). Ces résultats sont conformes à ceux qui avaient été obtenus par les instituts IOM et NIWL, alors que les trois laboratoires utilisent des protocoles d'évaluation différents (Witschger et al. 2001b). En air calme, notre étude en laboratoire montre que l'efficacité d'un préleveur positionné sur CALTOOL est comparable à celle du même préleveur en position isolée. Ce résultat confirme l'hypothèse avancée par Kenny et al. (1999). Les essais sur le terrain ont montré une bonne concordance entre les concentrations mesurées par CALTOOL et celles mesurées par les préleveurs, les ratios obtenus pouvant être comparés à ceux obtenus en laboratoire.

Le système CALTOOL peut donc être utilisé pour mesurer des performances *in situ* des préleveurs individuels.

Nous souhaitons maintenant poursuivre les essais d'efficacité de CALTOOL et notamment pour des granulométries plus élevées, afin de suivre correctement la gamme décrite par la convention inhalable. Par ailleurs de nouveaux essais vont être engagés dans différents environnements de travail. L'ensemble des résultats attendus devrait permettre de reconnaître *in fine* l'utilisation du système CALTOOL dans l'évaluation des performances d'échantillonneurs individuels d'aérosols.

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. et Maynard, A.D. (1998) A survey of wind speeds in indoor workplaces. *Ann. Occup. Hyg.*, 42, 5, 303-313.
- CIPR publication 66 (1994) Human Respiratory tract model for radiological protection. *Commission Internationale de Protection Radiologique, publication 66, Elsevier Science Ltd, Oxford.*
- Fauvel, S. et Witschger, O., (1999) Echantillonnage des aérosols en ambiance de travail : une nouvelle chambre expérimentale. *15^{ème} Congrès Français sur les Aérosols, CFA'99. Paris, France, 8-9 décembre 1999. publ. dans actes, pp 73-79.*
- 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., Mark, D., Aitken, R.J., Beaumont, G., Liden, G., Koch, W., Komhout, H. Développement d'un outil pour l'évaluation *in situ* des performances des échantillonneurs individuels d'aérosols. *17^{ème} Congrès Français sur les Aérosols, CFA'2001. Paris, France, 11-12 décembre 2001 Publ. dans actes, pp 148 –154.*
- Witschger, O., Fauvel, S., Basso, G., Grinshpun, S., (2001a) Performances d'échantillonnage de préleveurs d'aérosols en environnement d'air calme et à proximité d'une source de contamination. *17^{ème} Congrès Français sur les Aérosols, CFA'2001. Paris, France, 11-12 décembre 2001. Publ. dans actes, pp 155-162.*

DETERMINATION DE LA DISTRIBUTION DIMENSIONNELLE DU ^{218}Po NANOMETRIQUE EN ATMOSPHERE CONTRÔLÉE A PARTIR DE DEUX NOUVEAUX SYSTEMES

N. Michielsen¹, G. Tymen², A. Vargas³, M. Rio³ et X. Ortega³

¹ Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, DPEA/SERAC/LPMAC,
CEA-Saclay, Bâtiment 389, BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex, France.
nathalie.michielsen@irsn.fr

² Laboratoire de Recherches Appliquées Atmosphère-Hydrosphère,
Université de Bretagne Occidentale, 6 avenue Le Gorgeu, 29285 Brest Cedex, France.

³ Institut de Techniques Energétiques, Universitat Politècnica de Catalunya,
Avda. Diagonal 647, 08028 Barcelona, Espagne.

TITLE

Determination of ^{218}Po nanometer size distribution in controlled environment by two new systems

ABSTRACT

In order to measure the size distribution of the unattached fraction of the ^{218}Po accurately, two new devices have been developed and compared. The diffusion batteries used were optimized in order to obtain five cut off diameters range between 0.5 and 4 nm. Three series of measurements were carried out: two with a fixed radon concentration at 5 kBq.m^{-3} , then at 2 kBq.m^{-3} . For the third series the radon concentration in the test chamber was increasing from 390 Bq.m^{-3} to 4.1 kBq.m^{-3} . Until now, only the results of the first two series are available for comparison. A thermodynamic median diameter of 0.84 nm, corresponding to a diffusion coefficient of $5.10^{-6} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ was found for both system, but the associated geometric standard deviation were different; 1 for INTE-UPC group and 1.25 for UBO-IRSN group. For the third series, the results of the combination of annular diffusion battery and EVE deconvolution algorithm show that the relative uncertainty on the penetration data has to be less than 10% in order to obtain reliable size distribution.

RESUME

On attribue à la distribution dimensionnelle du ^{218}Po nanométrique un rôle important dans l'évaluation du risque radon. Pour mesurer précisément cette granulométrie, deux nouveaux prototypes ont été fabriqués. Le groupe formé par l'IRSN et le LARAAH (université de Brest) a développé une batterie de diffusion à canaux annulaires tandis que le groupe INTE-UPC a mis au point une batterie de diffusion à tubes cylindriques. Les débits et les longueurs des échantillonneurs ont été optimisés de manière à fixer les diamètres de coupure entre 0,5 et 4 nanomètres. Une intercomparaison s'appuyant sur ces deux nouveaux systèmes a été organisée dans une chambre de radon expérimentale à l'Institut de Techniques Energétiques de l'Université Polytechnique de Catalogne. Trois séries d'expérimentations ont été entreprises : deux avec une activité volumique de radon maintenue constante à 5 kBq.m^{-3} , puis à 2 kBq.m^{-3} , la troisième en laissant croître l'activité volumique de 390 Bq.m^{-3} à $4,1 \text{ kBq.m}^{-3}$. Pour l'instant, seuls les résultats des deux premières séries ont pu être comparés. Un diamètre médian thermodynamique de 0,84 nm, correspondant à un coefficient de diffusion de $5.10^{-6} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$, a été obtenu pour les deux appareils, mais le groupe INTE-UPC trouve une granulométrie monodispersée alors que le groupe UBO-IRSN obtient un écart type géométrique de 1,25. Les résultats de la batterie de diffusion annulaire et de l'algorithme de déconvolution EVE, lors de la troisième série d'expériences, montrent que les incertitudes relatives sur les mesures de fraction pénétrante doivent être inférieures à 10%.

INTRODUCTION

On attribue à la distribution dimensionnelle du ^{218}Po nanométrique un rôle important dans l'évaluation du risque radon. En effet, 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 (Marsh, 2000). 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.

Les données publiées jusqu'à maintenant sur la caractérisation dimensionnelle du ^{218}Po libre restent encore limitées et les résultats obtenus ne sont vraisemblablement pas définitifs principalement parce que les outils utilisés ne sont pas optimisés pour cette mesure. Par exemple, dans le cadre du projet de recherche Européen RARAD (Monchoux, 1999), des mesures dans les atmosphères domestiques montrent trois modes ; 0,55 nm, 0,85 nm et 1,35 nm, dépendant des conditions environnementales telles que l'humidité relative, la composition du gaz (traces de composés organiques) ou l'activité volumique de radon. Huet (1999) mesure, toujours en atmosphère domestique, des diamètres médians variant de 0,5 nm à 1,25 nm. Mais les instruments utilisés, pour mesurer la distribution en taille de la composante non-attachée du ^{218}Po , ont comme plus petit diamètre de coupure 0,85 nm, ce qui ne permet pas une mesure précise de cette taille ni des dimensions inférieures. C'est pour cette raison que deux nouveaux systèmes ont été développés avec des diamètres de coupure variant de 0,5 nm à 3,7 nm, l'un à l'université de catalogue (groupe INTE-UPC), l'autre en France grâce à une collaboration entre l'UBO et l'IRSN (groupe UBO-IRSN). Le deuxième défi, ou problème de cette mesure, est qu'il n'existe pas d'étalon (en taille) de particules inférieures à 5 nm. La seule façon de vérifier ces systèmes est donc de les comparer et se sont les résultats de cette inter-comparaison qui font l'objet de cet article.

MATÉRIELS ET MÉTHODES

La batterie de diffusion à tubes cylindriques (CDT), développé par le groupe INTE-UPC, ainsi que la batterie de diffusion à canaux annulaires (ADC), construit par le groupe UBO-IRSN sont décrites en détail par ailleurs (Vargas et al., 2002 ; Michielsen et al., 2002). Nous rappelons ici les principaux éléments.

CARACTÉRISTIQUES DES BATTERIES DE DIFFUSION UTILISÉES

Le CDT comme l'ADC se présentent sous la forme de six unités fonctionnant en parallèle : une unité de référence collectant la totalité des particules et cinq unités de différentes longueurs où les particules nanométriques sont partiellement piégées par diffusion. La figure 1 présente des coupes schématiques de deux dispositifs.

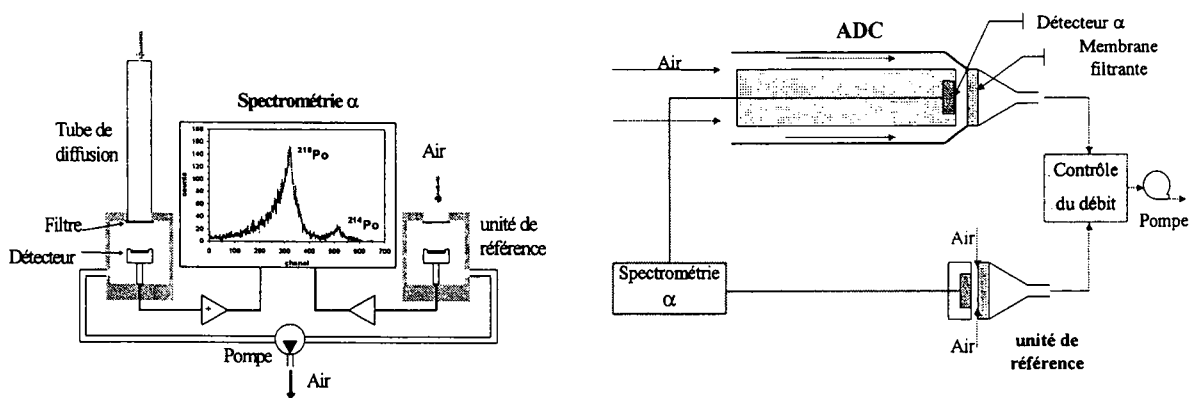


Figure 1. Gauche : Coupe schématique d'un CDT et du filtre de référence. Droite : Coupe schématique d'un ADC et du filtre de référence

Durant le prélèvement et conformément à leur coefficient de diffusion, les particules pénètrent partiellement les différentes unités pour être collectées sur des membranes filtrantes. Les émissions alpha du ^{218}Po et ^{214}Po présents sur ces filtres, sont analysées par spectrométrie α à l'aide d'un détecteur placé derrière le filtre, pour le CDT, ou face au filtre pour l'ADC. On peut comparer les paramètres de fonctionnement des deux systèmes à l'aide du tableau 1, où D (50%) et dp (50%) sont respectivement le coefficient de diffusion et le diamètre de la particule pour une pénétration de 50%.

Tableau 1 : Caractéristiques des batteries de diffusion utilisées.

Unité	CDT (INTE-UPC)				ADC (UBO-IRSN)			
	Longueur (cm)	Débit (l.min ⁻¹)	D (50%) (mm ² .s ⁻¹)	dp (50%) (nm)	Longueur (cm)	Débit (l.min ⁻¹)	D (50%) (mm ² .s ⁻¹)	dp (50%) (nm)
1	30	4,6	10,3	0,50	2,5	12,8	11,5	0,46
2	50	4,6	6,1	0,72	4,5	12,4	6,4	0,7
3	70	4,5	4,4	0,91	10	12,4	2,9	1,2
4	50	2,2	3,1	1,17	25	12,5	1,1	2,1
5	70	2,2	2,1	1,45	30	5,3	0,37	3,7
référence	-	4,6	-	-	-	11,7	-	-

Chaque unité de batterie de diffusion est caractérisée par une courbe de pénétration fonction du coefficient de diffusion ou de la taille des particules incidentes (figure 2). Pour le CDT, la détermination de la fonction pénétrante a fait l'objet de calculs numériques pour prendre en compte les effets d'entrée du tube, la diffusion axiale, la formation en vol et la décroissance radioactive du ^{218}Po à l'intérieur du tube, l'influence du filtre sur les lignes de courant du fluide ainsi que le dépôt non uniforme des particules sur le filtre.

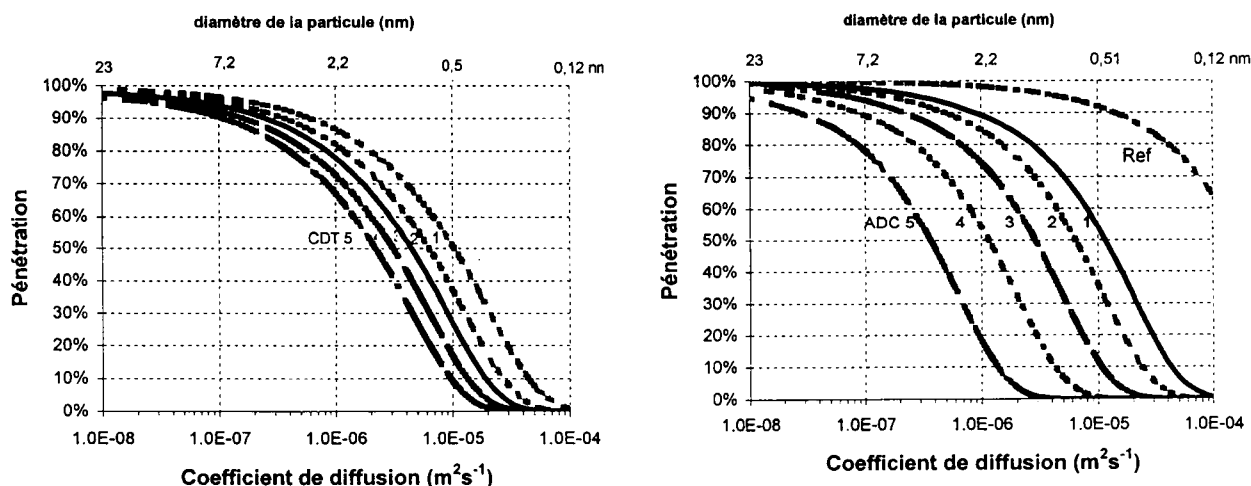


Figure 2 : Courbes de pénétration de chaque unité du CDT (gauche), de l'ADC (droite)

Nous avons vu précédemment (Tymen et al., 2001) l'intérêt d'utiliser l'ADC par rapport à d'autres systèmes. En particulier, les points cités plus haut ont des effets négligeables sur la fonction pénétrante qui est déterminé par l'expression suivante (Kérouanton et al., 1996) :

$$P = \sum_{i=1}^3 A_i \exp(-2B_i \mu)$$

où A_i et B_i sont une fonction du rapport R_1/R_2 , des rayons interne ($R_1 = 1,8$ cm) et externe ($R_2 = 2$ cm), 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 et U la vitesse moyenne de l'air dans l'espace intercyllindrique.

Lorsque $\mu \leq 0,001$ la fonction pénétrante suit l'expression d'Ingham (1976) :

$$P = 1 - 7.3945\mu^{2/3} - 1.6\mu - 0.8030\mu^{4/3}$$

ALGORITHMES DE DÉCONVOLUTION

Le groupe espagnol utilise l'algorithme de déconvolution Random Walk (RW) (Butterweck et al, 1999) tandis que l'équipe française emploie l'algorithme Extreme Value Estimation (EVE) (Paatero, 1990).

L'algorithme RW utilisé pour cette étude a été développé en Fortran par le groupe INTE-UPC. La région d'intérêt exploitée s'étend de 0,1 à 6 nm pour le diamètre médian et de 1.00 à 2.60 pour l'écart type géométrique en supposant que la solution soit une distribution log-normale.

La version 11.0, d'EVE, réalisée en janvier 1994 par Pentti Paatero a été utilisée pour cette étude avec une région d'intérêt allant de 0,1 à 10 nm pour les diamètres, divisée en 50 intervalles équidistants sur une échelle logarithmique, et un écart type géométrique de 1,2.

On trouvera une inter-comparaison de ces deux techniques de reconstruction granulométrique dans Butterweck-Dempewolf et al. (2000).

CONDITIONS D'EXPOSITION

L'inter-comparaison des deux appareils s'est effectuée dans une chambre de radon de 20 m³ située à l'INTE-UPC. Cette chambre est décrite en détail dans Vargas et al. (2002). 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 ont toutes été menées avec une concentration en particules inférieure à 20 cm⁻³ (mesuré par un CNC 3025).

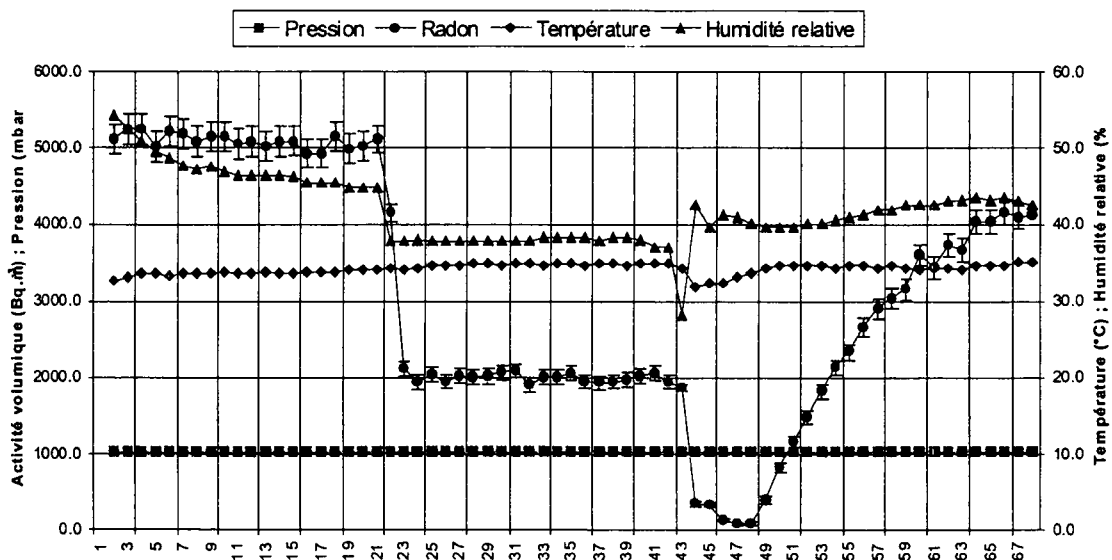


Figure 3 : Evolution temporelle des conditions d'exposition

Trois séries de tests ont été réalisés : les deux premières avec une activité volumique de radon maintenue constante à 5000 Bq.m⁻³ puis à 2000 Bq.m⁻³, la troisième en laissant croître l'activité volumique de radon dans la chambre d'essais. Dans chaque expérience, six à sept cycles de 3 heures ont été programmés. Les conditions expérimentales ainsi que l'activité volumique de radon dans la chambre, durant les expériences, sont reproduites figure 3 (résultats de mesure d'un alphaGUARD).

RÉSULTATS ET DISCUSSION

Le tableau 2 montre les valeurs moyennes des fractions pénétrantes du ²¹⁸Po et les écarts types associés, de chaque unité de diffusion, pour les expériences effectuées à niveau constant ; 7 expériences pour le niveau 5 kBq.m⁻³ de radon et 6 expériences pour le niveau 2 kBq.m⁻³ de radon. Dans les deux cas, et pour les deux appareils, on note que les résultats sont bien reproductibles. Par ailleurs, les deux appareils mesurent des fractions pénétrantes légèrement plus importantes pour le niveau 2 kBq.m⁻³ de radon, moins actif mais aussi moins humide que le niveau 5 kBq.m⁻³. De plus, les résultats de pénétration de la cinquième unité de l'ADC confirment que la fraction de particule de taille supérieure à 3 nm peut être considérée comme négligeable.

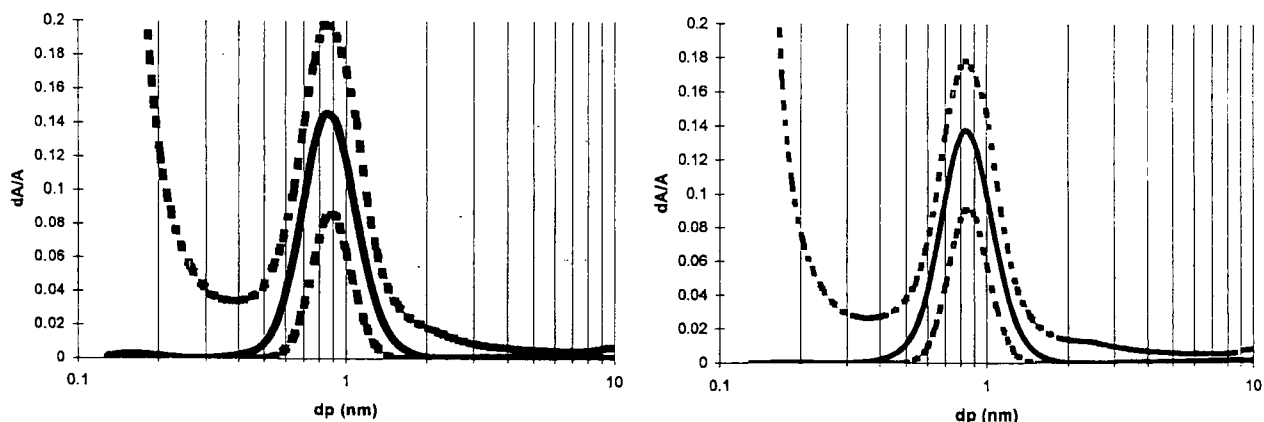
Tableau 2 : Résultats des fractions pénétrantes à niveaux constants

Unité	CDT (INTE-UPC)				ADC (UBO-IRSN)			
	2 kBq.m ⁻³		5 kBq.m ⁻³		2 kBq.m ⁻³		5 kBq.m ⁻³	
	Moyenne	écart type	Moyenne	écart type	Moyenne	écart type	Moyenne	écart type
1	7,50E-01	4,50E-02	7,04E-01	3,50E-02	6,60E-01	3,47E-02	6,32E-01	1,23E-02
2	5,89E-01	2,36E-02	5,74E-01	2,90E-02	5,36E-01	2,75E-02	5,12E-01	1,72E-02
3	5,28E-01	4,22E-02	4,94E-01	2,50E-02	3,93E-01	1,94E-02	3,28E-01	1,28E-02
4	4,12E-01	3,30E-02	3,94E-01	3,90E-02	8,46E-02	8,50E-03	7,13E-02	7,90E-03
5	2,86E-01	1,72E-02	2,74E-01	2,70E-02	1,60E-02	3,40E-03	1,88E-02	2,70E-03

C'est à partir de ces valeurs moyennes, et de leur écart type, que la granulométrie est calculée avec l'algorithme RW pour le CDT, et l'algorithme EVE pour l'ADC. Il faut noter que la solution de ce problème de déconvolution n'est pas unique, pourtant tous les algorithmes de déconvolution, à l'exception d'EVE, ne propose qu'une solution. Pour notre comparaison, nous utilisons d'abord les diamètres médians et écart type géométrique de la solution centrale obtenue par EVE (tableau 3) mais il est aussi important de reporter l'ensemble des solutions trouvées par ce logiciel (figure 4), c'est à dire, la solution centrale associée à un intervalle de confiance où se trouve 95% des solutions.

Tableau 3 : Résultats granulométriques

Niveau radon kBq.m ⁻³	INTE-UPC		UBO-IRSN	
	Diamètre médian nm	Ecart type géométrique	Diamètre médian nm	Ecart type géométrique
2	0,84	1,00	0,86	1,26
5	0,83	1,00	0,84	1,25



— Solution centrale EVE ; Intervalle de confiance EVE

Figure 4 : Résultats de déconvolution de l'algorithme EVE pour un niveau de 2 kBq.m^{-3} (gauche), et un niveau de 5 kBq.m^{-3} (droite)

Les résultats étant posés, il nous faut maintenant les comparer. Les diamètres médians obtenus sont très proches et on peut supposer qu'ils ne sont pas différents. En effet, le diamètre médian calculé par l'équipe espagnole se situe dans le domaine des solutions possibles définies par EVE. Au contraire l'écart type géométrique unité ne se trouve pas dans ce domaine. Nous choisissons, pour évaluer ces résultats, de comparer les distances entre les fractions pénétrantes mesurées et celles calculées. Pour cela, nous calculons les fractions pénétrantes dans chacun des deux systèmes avec les deux granulométries obtenues précédemment et comparons les χ^2 (tableau 4) suivant la relation:

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^5 \frac{(M_i - S_i)^2}{\sigma_i^2}$$

où M_i est la fraction pénétrante mesurée pour l'unité i , σ_i est l'écart type estimé de cette mesure et S_i est la fraction pénétrante calculée à partir de la granulométrie obtenue par les deux équipes.

Tableau 4 : Valeurs des χ^2

granulométrie	Batterie de diffusion à tubes		Batterie de diffusion à canaux	
	2 kBq.m^{-3}	5 kBq.m^{-3}	2 kBq.m^{-3}	5 kBq.m^{-3}
INTE-UPC	9,7	15,6	79,4	335
UBO-IRSN	7,4	18,3	13,1	8,84

Pour la batterie de diffusion à tubes les χ^2 sont similaires, par contre, pour la batterie de diffusion à canaux annulaires les χ^2 obtenus avec les granulométries mesurées par l'INTE-UPC sont beaucoup trop grands pour considérer cette distribution comme une solution possible du système. On en conclue que, malgré un diamètre médian équivalent, les deux résultats granulométrique doivent être considérés comme différents.

La dernière série d'expériences consiste à laisser croître la concentration en radon dans la chambre d'essai au cours du temps. La figure 5 illustre les différentes distributions (solutions centrales) obtenues pour le ^{218}Po lors de cette série (les valeurs entre parenthèses indiquent l'activité volumique de radon en Bq.m^{-3}). Seules les solutions obtenues par le groupe UBO-IRSN sont accessibles pour l'instant.

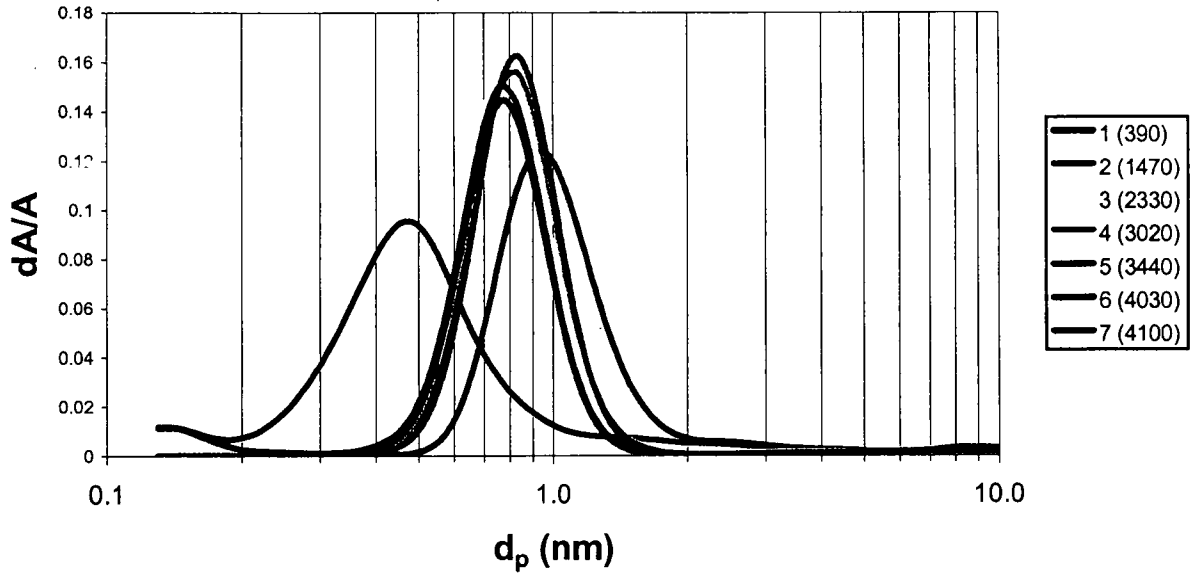
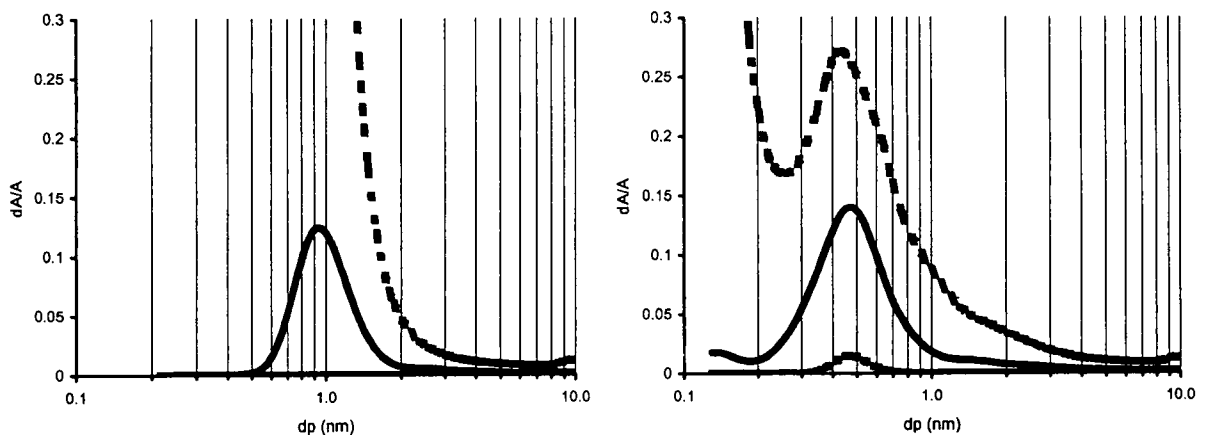


Figure 5 : Distributions dimensionnelles du ^{218}Po dans la chambre expérimentale pour une activité volumique de radon croissante jusqu'à 4100 Bq.m^{-3} .

Les intervalles de confiance des solutions centrales des mesures 3 à 7 sont identiques à celles présentées figure 4 et on peut considérer ces granulométries comme égales. Par contre, les granulométries trouvées lors de la première et deuxième mesure sont différentes et nous reportons, figure 6, les solutions centrales accompagnées des intervalles de confiance. On voit que le domaine des solutions possibles est considérablement élargi, ce qui doit nous inciter à utiliser ces résultats avec prudence, quant à leur interprétation, ou même être un motif d'élimination. En effet, comme l'a déjà montré Butterweck et al. (2000), les algorithmes de déconvolution arrivent difficilement à traiter un signal bruité, c'est à dire des résultats de mesure comprenant des incertitudes. Pour la deuxième mesure, les écarts types relatifs liés aux fractions pénétrantes sont de l'ordre de 5% pour les deux premiers canaux, de 10% pour les canaux trois et quatre et de 26% pour le canal 5. Ces valeurs sont doublées pour la première mesure. Nous choisissons donc d'éliminer ces deux premiers résultats car leurs incertitudes ne permettent pas une déconvolution convenable.



— Solution centrale EVE ; Intervalle de confiance EVE

Figure 6 : Résultats de déconvolution de l'algorithme EVE pour une activité volumique de 391 Bq.m^{-3} (à gauche) et 1470 Bq.m^{-3} (à droite).

Durant cette troisième série d'expériences, nous retrouvons les résultats acquis lors des deux premières séries, c'est à dire un diamètre médian thermodynamique de 0,84 nm correspondant à un coefficient de diffusion de $5.10^{-6} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$, avec un écart type géométrique de 1,25. De plus, malgré la croissance de l'activité volumique du radon, nous n'observons pas de variation de taille pour des activités volumiques de radon compris entre 2 et 5 kBq.m⁻³. En second lieu, nous ne pouvons définir avec précision les granulométries lorsque les incertitudes relatives sur les fractions pénétrantes sont supérieures à 10%.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Les expériences réalisées dans la chambre radon de l'Université Polytechnique de Catalogne à Barcelone avec une batterie de diffusion à canaux annulaires, destinée à la mesure des distributions en taille des dérivés à vie courte du radon, ont montré une bonne reproductibilité des mesures. La distribution en taille du ²¹⁸Po libre obtenue, lors de ces expériences, présente un diamètre médian thermodynamique de 0,84 nm correspondant à un coefficient de diffusion de $5.10^{-6} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$, avec un écart type géométrique de 1,25. L'utilisation de l'algorithme EVE, pour déconvoluer les résultats de la batterie de diffusion, permet d'obtenir, en plus d'une solution centrale, le domaine de solutions possibles. Nous introduisons ainsi, dans les résultats granulométriques, un niveau de confiance comparable à ce que sont les incertitudes pour des résultats de mesure. Ceci permet de mieux appréhender la qualité du résultat granulométrique et d'améliorer son interprétation. Notamment, on voit que, pour la batterie de diffusion à canaux annulaires, des incertitudes relatives sur les fractions pénétrantes supérieures à 10% ne permettent pas une déconvolution convenable. Dans un avenir proche, nous envisageons de diminuer ces incertitudes de mesure en changeant le protocole de comptage.

Malgré l'obtention d'un diamètre médian équivalent pour les batteries de diffusion à tubes et à canaux, on ne peut pas conclure à l'identité des résultats pour cette intercomparaison. Des tests complémentaires sur les deux systèmes permettront de les améliorer et d'envisager une autre intercomparaison.

RÉFÉRENCES

- Butterweck-Dempewolf, G., Schuler, Ch., Vezzú, G. and Reineking, A. (1999). Improved determination of bimodal size distribution from measurements with diffusional size classification. *Aerosol Sci. Tech.* 31, 383-391.
- Butterweck-Dempewolf, G., Schuler, Ch., Vezzu, G., Reineking, A., Huet, C., Tymen, G., Strong, J.C., Knutson, E. O., Vargas-Drechsler, A. (2000). Intercomparison of approximation algorithms for the determination of the size distribution of the unattached fraction of radon progeny". *Aerosol Sci. and Tech.*, 33, 261-273.
- Huet C. (1999). Etude du comportement des descendants à vie courte du radon dans l'habitat ". Thèse université de Brest,
- Ingham, D. B. (1976) Simultaneous diffusion and sedimentation of aerosol particles in rectangular tubes. *J. Aerosol Sci.* 7, 373.
- Kerouanton D., Tymen, G. and Boulaud, D. (1996). Small particle diffusion penetration of an annular duct compared to other geometries , *J. Aerosol Sci.*, 27, 345-349.
- Marsh, J.W. and Birchall, A. (2000). Sensitivity analysis of the weighted equivalent lung dose per unit exposure from radon progeny. *Radiat. Prot. Dosim.* 87,167-178.
- Michielsen, N., Voisin, V., Tymen, G. (2002). Measurement of the unattached radon decay products with an annular diffusion channel battery. In: *Proceedings of the VII Congress of Natural Radiation Environment*, Rhodes (Greece).
- Monchaux, G. (1999). Final report of the CEC Contract F14P-CT-95-0025, Risk Assesment of Exposure to Radon Decay Products (RARAD). Ed. Direction de l'information scientifique et technique, Report CEA-R-5882(2).
- Paatero P. (1990). The Extreme Value Estimation deconvolution method with application to aerosol research, University of Helsinki, *Report series in Physics*, HU-P-250.
- Tymen, G., Voisin V. et Michielsen N. (2001). Un nouvel instrument pour mesurer la distribution dimensionnelle de la fraction non-attachée des produits à vie courte du radon-222. *Actes du 17^{ème} congrès français sur les aérosols*, Paris, 11-12 décembre 2001.
- Vargas, A., Rio, M. and Ortega, X (2002). Set up of a diffusion tube battery to measure continuously the radon progeny nanometric size distribution. In: *Proceedings of the VII Congress of Natural Radiation Environment*, Rhodes (Greece).
- Vargas, A., Ortega, X., Rio, M. and Martín Matarranz, J.L. (2002). The Spanish radon Reference Chamber. In: *Proceedings of the VII Congress of Natural Radiation Environment*, Rhodes (Greece).

PROPRIETES DES SUIES DIESEL. DETERMINATION DE L'INDICE DE REFRACTION

P. Van Hulle, M. Talbaut, C. Coppalle, M. Weill (*)

UMR 6614-CORIA Site du Madrillet - BP12 76801 St. Etienne du Rouvray,

1- Introduction

La connaissance de l'indice de réfraction des suies générées par les moteurs diesel est nécessaire si l'on veut disposer de moyens de contrôle optique adaptés aux véhicules actuels dont les émissions sont soumises à des normes de plus en plus strictes. Pour la mesure de cet indice la procédure décrite ci dessous a été mise au point et appliquée à un moteur diesel Robin.

Nous montrons que la détermination des deux composantes (n,k) de l'indice de réfraction complexe $m=n-ik$ pour une longueur d'onde donnée est possible à partir de données expérimentales à condition de connaître la forme des particules qui vont diffuser la lumière, la manière dont elles vont la diffuser et leur répartition granulométrique.

2- Morphologie

On sait depuis environ vingt ans que les aérosols issus de la combustion, les suies, peuvent être modélisés par des agrégats quasi fractals de sphérules de taille suffisamment voisines pour être considérées comme identiques. Le nombre N_p de sphérules d'un agrégat est relié à son rayon de giration R_g via la dimension fractale D_f et un préfacteur k_f selon la relation :

$$N_p = k_f \left(\frac{R_g}{r_p} \right)^{D_f}$$

r_p : rayon de la sphérule.

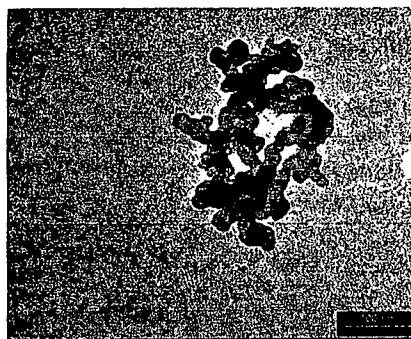


Figure 1 :Agrégat de suie Diesel (TEM)

3- Diffusion de la lumière par les agrégats

La diffusion de la lumière par un agrégat fractal de petites sphères peut être calculée selon trois approches qui diffèrent par leur degré d'approximation. La première approche nommée RDG-FA (Rayleigh-Debye-Gans for Fractal Aggregate) est analytique (1,2). Elle consiste à modéliser les sphérules par la RDG et à tenir compte de la multidiffusion par l'intermédiaire d'un coefficient correcteur. Les expressions des sections efficaces d'un agrégat pour l'absorption C_a^a et la diffusion à

un angle θ , $C_w^a(\theta)$, s'expriment alors simplement en fonction des sections efficaces des particules C_a^p et $C_{vv}^p(\theta)$ par :

$$C_a^a = N_p C_a^p$$

$$C_w^a(\theta) = N_p^2 C_{vv}^p(\theta) f(w)$$

$$w = q^2 R_g^2 \quad ; \quad q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)$$

La forme de la fonction $f(w)$ dépend du rapport w/D_f . On voit que ces relations ne dépendent pas de la morphologie précise de l'agrégat étudié qui n'apparaît, toutes choses égales par ailleurs, que par son rayon de giration.

La deuxième approche consiste à modéliser l'agrégat, et plus précisément chaque sphérule, par un ensemble de dipôles situés sur les nœuds d'un maillage cubique. En un point de l'espace les champs diffusés (et rediffusés) par chaque dipôle sont sommés. Ce calcul est effectué par le code numérique DDSCAT (3). La précision des résultats, et le temps de calcul, dépendent du nombre de dipôles utilisés (179 par sphérule ici). Notons que ce code peut être appliqué à n'importe quelle configuration matérielle.

La troisième approche est fondée sur la résolution rigoureuse des équations de Maxwell pour un ensemble de sphères homogènes. Pour cela la solution exacte de Mie est écrite pour chaque sphère, des théorèmes de translation permettant de les ramener à une origine commune (4). Cette approche fournit une solution analytique mais sous forme, comme la théorie de Mie, de séries infinies. Le calcul numérique correspondant ne peut donc qu'être approché.

Dans les trois approches il s'agit de calculer la diffusion d'une onde par un agrégat donné, celui ci pouvant se présenter sous un angle quelconque devant le faisceau. Aussi est il nécessaire de faire la moyenne des intensités diffusées selon plusieurs orientations (343 ici). Il est clair que le temps de calcul dans les deux derniers cas est multiplié par un facteur du même ordre.

C'est la raison pour laquelle nous avons testé sur des agrégats synthétiques de 64 et 128 sphères l'écart entre les trois approches. Il en ressort que la RDG-FA peut, en première approximation, être utilisée dans la méthode expérimentale décrite ci-dessous (5). Le paramètre de taille des sphérules, ≈ 0.2 , joue ici favorablement.

4- Le dispositif expérimental

Le moteur diesel

Le moteur Robin utilisé est un moteur de motopompe à injection directe sous pression atmosphérique. Il est constitué d'un seul cylindre de 230 cm³ et développe une puissance maximale de 3.5kW à 3600t/min. Nous l'avons utilisé en raison de sa facilité d'emploi à une vitesse constante de 3000t/min.. Bien qu'il ne présente pas les caractéristiques des diesels les plus récents son usage n'est pas un obstacle à la généralisation de la méthode.

Les mesures optiques d'extinction et de diffusion

Les suies générées par le moteur sont envoyées dans une cellule optique instrumentée d'une longueur de un mètre cinquante qui possède à une extrémité une source laser et un détecteur pour la mesure de la lumière diffusée et à l'autre extrémité un détecteur pour la mesure de l'extinction. La source est un laser He-Ne ($\lambda=632.8$ nm) couplé avec la cellule optique. Au cours de ce travail, la cellule a également été dotée d'un laser He-Cd ($\lambda=442$ nm) afin d'effectuer des études à une

deuxième longueur d'onde. Pour la diffusion, les mesures sont effectuées à l'aide d'un photomultiplicateur placé à 90° par rapport au faisceau incident dans le plan de diffusion et perpendiculairement à celui-ci. La partie 'détecteur pour l'extinction' est composée d'un diffuseur et d'une photodiode. La cellule est thermostatée afin d'éviter la condensation de la vapeur d'eau à l'intérieur de la cellule. Le banc est équipé d'un système d'électrovannes qui permet le remplissage de la cellule par différents gaz pour étalonnage.

Les mesures granulométriques

Les moteurs diesel produisent principalement des particules fines, généralement selon une distribution lognormale dont le mode est de l'ordre de 100nm. Pour cette raison un analyseur de mobilité électrique tel que le SMPS est souvent utilisé dans l'analyse des émissions diesel (6). Néanmoins l'entrée des particules dans le SMPS est limitée en taille par la présence d'un impacteur dont le diamètre de coupure est 0.5µm environ. Ceci n'est pas gênant dans le cas de diesel récents, peu polluant, mais l'examen des distributions obtenues sur le moteur Robin a montré qu'une masse non négligeable de particules se trouvait au dessus de cette valeur. Nous avons donc été dans la nécessité d'utiliser simultanément un ELPI afin de mesurer la distribution des particules non reconnues par le SMPS.

Les mesures morphologiques

Peu d'études ont été réalisées à la sortie des moteurs relativement à la morphologie des suies. Les valeurs proposées dans la littérature pour les caractéristiques fractales sont dispersées. Il nous a donc semblé nécessaire de déterminer par microscopie électronique les paramètres morphologiques des particules émises. Le dispositif de prélèvement est composé d'une grille de 3 mm de diamètre en cuivre (maillage de 300x300) à laquelle une membrane est ajoutée pour capturer les suies. Cette grille est placée dans l'écoulement pendant plusieurs dizaines de secondes.

Le dépouillement des clichés de microscopie électronique est classique. Chaque cliché est binarisé ce qui permet d'obtenir N_p , R_g et d_p . On en déduit la courbe $\ln(N_p) = f(R_g/r_p)$ traduisant la relation fractale représentée sur la figure. L'ordonnée à l'origine et la pente permettent alors d'en déduire D_f et k_f . Les valeurs obtenues sont les suivantes :

$d_p = 25 \text{ nm}$, $D_f=1.94$; $k_f=2.03$. Les incertitudes sont respectivement de 5, 7 et 25%.

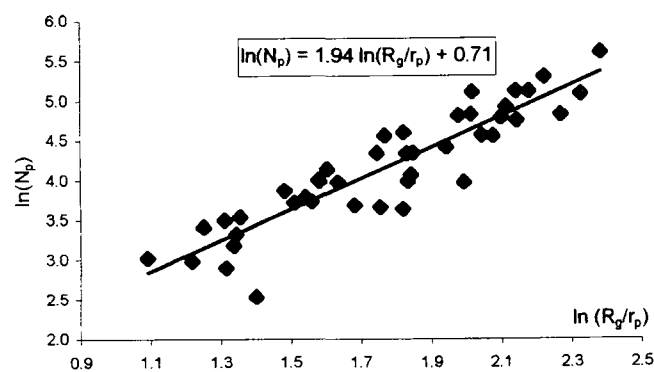


Figure 2 : détermination des caractéristiques fractales

Les grandeurs obtenues, en ce qui concerne le préfacteur et la dimension fractale, sont dans la gamme de valeurs que l'on rencontre dans la littérature pour les flammes-air.

5- La technique d'inversion

Soient K_e^{exp} , K_v^{exp} les coefficients expérimentaux d'extinction et de diffusion à 90° et K_e^{cal} , K_v^{cal} ces mêmes coefficients calculés théoriquement par :

$$K_e^{\text{calcul}}(m) = \int_{d_h} N(d_a) C_e^a(d_a, m) dd_a$$

$$K_v^{\text{calcul}}(m, 90^\circ) = \int_{d_h} N(d_a) C_v^a(d_a, m, 90^\circ) dd_a$$

où l'indice a se rapporte toujours aux agrégats.

Ces coefficients sont égaux aux coefficients expérimentaux pour les valeurs adéquates de l'indice complexe $m = n - ik$. Le problème se résume donc à la résolution numérique de deux équations à deux inconnues (n, k). Nous avons employé pour cela la méthode de Newton-Raphson

Le calcul de l'expression nécessite la connaissance de la distribution en taille $N(d_a)$ et de la morphologie de l'agrégat : diamètre d_p des sphérules, dimension fractale D_f et préfacteur k_f . L'organigramme est représenté sur la figure 3

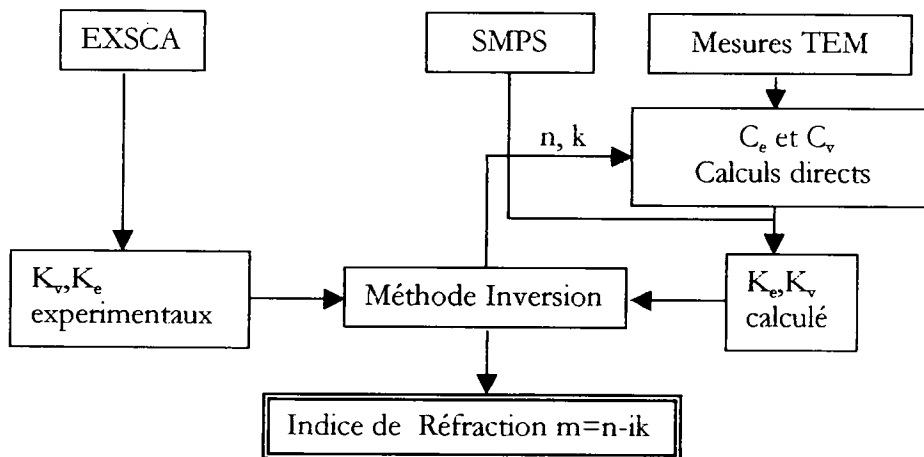


Figure 3 : organigramme de l'inversion

6- Les résultats

Les mesures préliminaires ont mis en évidence une incohérence entre les mesures optiques et les mesures SMPS rendant l'inversion impossible: le coefficient d'extinction mesuré était plus élevé que le coefficient théorique établi à partir de la distribution SMPS mesurée. Il est apparu que cette différence était liée à une particularité des distributions de taille et de masse

En effet, on voit sur la figure 4 que la distribution en masse présente un plateau et même une remontée vers les plus gros diamètres. Ainsi le prolongement vers les plus grands diamètres effectué par extrapolation introduit un biais car on ne tient pas compte des grosses particules.

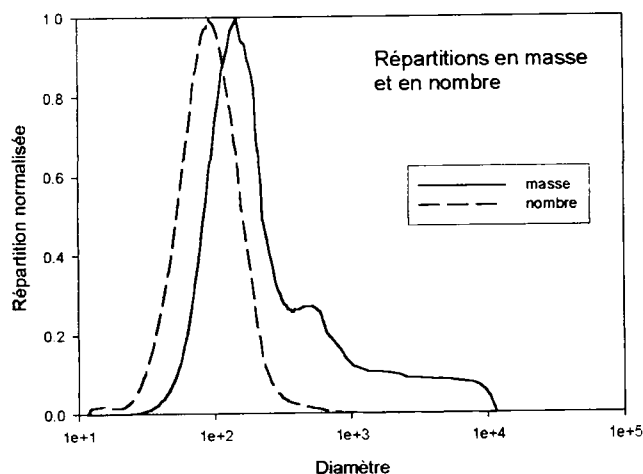


Figure 4 : répartitions à la sortie du moteur Robin

La difficulté consiste à faire coïncider les distributions SMPS et ELPI. Pour cela on utilise la plage commune aux deux granulomètres. Le SMPS permet d'effectuer des mesures de 10 à 450 nm et l'ELPI de 30 nm à 10 μ m, la plage commune se situant entre 30 et 450 nm. L'ELPI ne comporte que 12 classes au total dont seulement cinq dans cette partie commune. Pour faire coïncider les distributions, on ajuste la masse spécifique dans le logiciel ELPI pour retrouver le même nombre de particules à l'intérieur de la gamme commune au ELPI et au SMPS. Ensuite, considérant le faible nombre de classes données par le ELPI, on effectue artificiellement une répartition des particules sur un plus grand nombre de classes à partir de la distribution mesurée expérimentalement. Cette répartition est nécessaire pour une meilleure précision des calculs dans la méthode d'inversion.

Pour une longueur d'onde donnée l'indice moyen est déterminé par la mesure expérimentale de coefficients d'extinction et de diffusion reproduite un minimum de cinq fois. De même, la distribution établie avec le SMPS correspond à la moyenne d'enregistrements d'une dizaine de distributions. Cinq valeurs d'indice déterminées par la technique d'inversion permettent de donner les valeurs présentées dans le tableau 1 pour les deux longueurs d'onde. Les indices obtenus sont dans la gamme des valeurs d'indice proposées dans la littérature. Pour la partie réelle, les valeurs déterminées sont proches pour les deux longueurs d'onde considérées. Pour la partie imaginaire, une différence de l'ordre de 23% apparaît.

	$\lambda=442$ nm	$\lambda=632.8$ nm
n	1.47 ± 0.24	1.52 ± 0.04
k	0.63 ± 0.18	0.49 ± 0.12

Tableau 1

Une analyse de sensibilité de l'inversion à l'aide d'une méthode de Monte Carlo montre que les différences sont statistiquement significatives. Et en effet les relations de dispersion et la littérature montrent, pour cette gamme de longueur d'onde et pour des suies obtenues à partir des flammes, une relative constance de la partie réelle et une décroissance de la partie imaginaire. On remarque que l'incertitude relative sur la partie imaginaire est plus importante que celle sur la partie réelle. Cette différence est propre à toutes les méthodes. Ceci s'explique par le fait que les incertitudes absolues sont du même ordre pour n et k.

L'analyse de sensibilité a également mis en lumière les paramètres influant sur la précision. Il en ressort que les variations relatives d'indice sont inférieures ou égales à celles des paramètres mesurés K_e , K_w , $N(d_a)$, d_p . Au contraire, l'indice de réfraction est plus sensible aux paramètres fractals, D_f et k_f .

7- Conclusion

Nous avons défini et utilisé un protocole de mesure permettant la détermination expérimentale des parties réelle et imaginaire de l'indice des suies ou d'autres particules. Ce protocole nécessite la connaissance des caractéristiques physiques des particules sous étude : morphologie et granulométrie. Il a été mis en œuvre sur des émissions Diesel. La précision est suffisante pour apprécier les changements d'indice correspondant à des longueurs d'onde rouge et bleue.

La méthode comporte actuellement une partie *ex situ* pour recueillir les données morphologiques. L'objectif est de réussir à obtenir ces informations morphologiques par des mesures *in situ* dans le cas où les prélèvements sont délicats. On peut ainsi espérer obtenir directement la caractérisation complète d'un nuage de particules par un ensemble unique de mesure.

Références

- 1- DOBBINS R. A. , MEGARIDIS C. M. Absorption and scattering of light by polydisperse aggregates, *Applied Optics*, vol.30, n°33, 4747-4754 (1991)
- 2- FAETH G. M. , KÖYLÜ Soot morphology and optical properties in nonpremixed turbulent flame environments, *Combustion Science and Technology*, vol.108, 207-229 (1995)
- 3- DRAINE, P.J. FLATAU Discrete-Dipole Approximation for scattering calculations, *Optical Society of America*, vol.11, n°4, 1491-1499 (1994)
- 4- XU Y. L. Electromagnetic scattering by an aggregate of spheres: far field, *Applied Optics*, vol.36, n°36, 9496-9508 (1997)
- 5- VAN-HULLE P., TALBAUT M., WEILL M., COPPALLE C. (2002) Inversion method and experiment to determine the soot refractive index. *Measurement Science and Technology*, 13, 375-382

**ETUDE DE LA PRODUCTION D'IODE GAZEUX
PAR UN AEROSOL D'IODURE DE CESIUM
SOU MIS A DES TEMPERATURES ELEVEES DANS L'AIR HUMIDE.**

F. Deschamps(1) et J.C. Sabroux(2).

(1) Hémisphères,
1, rue du Château, 92200 Neuilly-sur-Seine, France.
(2) Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire,
DPEA/SERAC, Centre de Saclay, BP68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex, France.
jean-christophe.sabroux@irsn.fr

TITLE

STUDY OF GASEOUS IODINE PRODUCTION BY HEATING OF CAESIUM IODIDE AEROSOL IN A WET ATMOSPHERE.

ABSTRACT

Passive autocatalytic recombiners are intended to mitigate the risk of a hydrogen explosion in the containment of a nuclear power plant in case of a hypothetical core melt accident. Due to their high temperature of operation and extremely reactive components (platinum and palladium catalysts), these devices might tamper with the chemistry of fission products in the reactor containment, and eventually modify the so-called radioactive source term and potential radiological consequences of the accident. We investigate into the conversion of non-radioactive caesium iodide particles (1 µm) into gaseous iodine I₂, within a physico-chemical environment that mimics a recombiner in operation. Preliminary results show that this conversion is significant at ca. 900°C, and that it should be taken into account in the numerical codes which have been developed to calculate iodine behaviour in reactor containment and auxiliary building.

RESUME

Les recombineurs d'hydrogène sont des dispositifs catalytiques passifs destinés à limiter le risque d'explosion d'hydrogène dans l'enceinte de confinement d'un réacteur nucléaire au cours d'une séquence accidentelle hypothétique entraînant une fusion partielle ou complète du cœur. Compte tenu des hautes températures atteintes par les recombineurs en fonctionnement, et de la grande réactivité des matériaux catalytiques utilisés (platine et palladium sur alumine), il se pourrait qu'en plus de la combustion catalytique recherchée $H_2 + \frac{1}{2} O_2 \rightarrow H_2O$, les recombineurs provoquent des réactions chimiques "parasites" entre les différents constituants (y compris les produits de fission) de l'atmosphère de l'enceinte. Nous avons étudié la conversion éventuelle d'un aérosol (1 µm) d'iodure de césium non radioactif en iode volatil I₂, dans des conditions physico-chimiques reproduisant celles d'un recombineur en fonctionnement. Au vu des résultats préliminaires, nous pouvons affirmer que cette conversion est significative aux alentours de 900°C, et que l'aérosol chauffé évolue vers une granulométrie de plus fines particules. Une telle modification devra être prise en compte dans les codes numériques servant à évaluer le terme-source iode et, *in fine*, les conséquences radiologiques potentielles des scénarios d'accident considérés.

1. Introduction

En situation hypothétique d'accident grave (accident hors dimensionnement), l'enceinte de confinement d'un réacteur nucléaire à eau sous pression (REP) contiendrait sous forme de gaz, de vapeurs et d'aérosol, les produits de fission échappés du combustible nucléaire, accompagnés de quelques actinides mineurs ainsi que des matériaux constitutifs du cœur du réacteur en fusion (combustible et éléments de structure). Parmi les produits de fission, l'iode radioactif (isotopes 129 à 135) serait présent sous forme de particules d'iodures métalliques — principalement iodure de césium, mais aussi iodures d'argent, d'indium et de cadmium — particules dont le diamètre géométrique se situerait entre 0,5 et 1 μm .

Une faible proportion de l'inventaire total d'iode dans l'enceinte de confinement y serait sous forme gazeuse, iode moléculaire I_2 — avec $P(\text{I}_2) < 10^{-7}$ atm — et, subsidiairement, iodure de méthyle ICH_3 . La détermination du rapport $\text{iode}_{\text{gazeux}} / \text{iode}_{\text{total}}$ et de son évolution au cours de l'accident fait encore l'objet de très nombreuses études théoriques ou expérimentales, études rendues nécessaire pour une évaluation précise du terme-source des différents scénarios accidentels. Ce rapport est extrêmement dépendant des séquences accidentelles et du temps écoulé depuis le début de l'accident : par exemple, à la brèche mettant en communication le circuit primaire et l'enceinte de confinement, ce rapport — ou, plus précisément, le rapport $(\text{I}_2 + \text{HI}) / \text{Csl}$ — pourrait ne pas dépasser 0,1 % (Kress *et al.*, 1993).

Au cours du déroulement de l'accident, l'aérosol serait ensuite sujet aux processus habituels de condensation/évaporation, coagulation, impaction, thermophorèse, diffusiophorèse et sédimentation dans l'enceinte de confinement, processus auxquels pourrait s'ajouter le rabattement sous l'effet de l'aspersion d'eau déclenchée par l'exploitant afin de diminuer la température et donc la surpression dans le bâtiment réacteur. Les particules en suspension seraient *in fine* arrêtées par les filtres THE dans le cas où une ventilation de l'enceinte serait jugée nécessaire. La rétention des gaz étant relativement moins efficace que celle des aérosols, c'est alors la faible portion d'iode présent dans l'enceinte de confinement sous forme gazeuse qui poserait l'essentiel des problèmes radiologiques en cas de rejet, d'où l'importance d'une détermination précise du rapport mentionné plus haut.

Aux produits de fission issus du cœur dégradé s'ajouterait, dans l'enceinte de confinement, l'hydrogène engendré par la réaction de la vapeur d'eau sur le *zircaloy* (alliage de zirconium et d'étain) des gaines de combustible. Une oxydation complète du cœur produirait jusqu'à 1300 kg d'hydrogène, soit une teneur moyenne de 18,2 % en atmosphère sèche dans le bâtiment réacteur (Libmann, 1996). L'installation de recombineurs catalytiques d'hydrogène, désormais programmée dans la totalité des centrales nucléaires françaises, vise à supprimer le risque d'une combustion explosive pouvant mettre en péril l'étanchéité de l'enceinte de confinement. Ces recombineurs sont constitués d'un catalyseur à base de métaux précieux (platine et palladium) déposés sur un support en alumine poreuse ; ils fonctionnent de façon passive, du fait de la convection engendrée par l'échauffement du catalyseur en présence d'hydrogène. Cette convection est facilitée par la présence d'une "cheminée" (tube vertical de section rectangulaire) à la base de laquelle est disposé le catalyseur (empilement de billes, ou alignement de plaques parallèles verticales).

La combustion de l'hydrogène étant très exothermique (242 kJ/mol), les recombineurs en fonctionnement, siège de la "recombinaison" catalytique de l'hydrogène et de l'oxygène en vapeur d'eau, atteignent en effet une température très élevée (au moins 900°C) : ils peuvent donc être le siège de réactions chimiques "parasites" entre les multiples constituants de l'atmosphère de l'enceinte. Il est alors particulièrement légitime de s'interroger sur l'éventuelle transformation des iodures en iode moléculaire à l'intérieur des recombineurs en fonctionnement.

2. Conversion des iodures en iode : approche théorique et expérimentale

Il convenait tout d'abord de s'assurer qu'une telle conversion était possible, tant du point de vue de la thermique que de la thermodynamique chimique. Il est clair, en effet, que des taux de conversion significatifs ne peuvent être atteints que si les réactions chimiques éventuelles ont lieu en phase gazeuse, c'est-à-dire si la tension de vapeur des iodures est comparativement élevée aux

températures caractéristiques de fonctionnement des recombiners. Tel est bien le cas puisque, s'agissant par exemple de l'iodure d'argent, le plus réfractaire des iodures représentatifs retenus dans cette étude, $P(\text{AgI}) > 10^{-3}$ atm à 900°C.

Pour les particules transportées par l'atmosphère de l'enceinte de confinement, le temps caractéristique de traversée d'un recombiner en fonctionnement est de l'ordre de 1/10^{ème} de seconde. Il a été démontré (Rozé *et al.*, 2001) que ce temps est largement suffisant pour que les particules d'iodures atteignent la température du gaz porteur, voire une température légèrement supérieure, compte tenu des échanges radiatifs avec le catalyseur. Il est facile, enfin, de s'assurer que le temps caractéristique de vaporisation de cet aérosol est du même ordre de grandeur (Hinds, 2001) : le recombiner a donc pour effet de vaporiser les particules d'iodures qui le traversent.

Si toutefois les vapeurs produites au dépens des iodures restaient chimiquement inertes dans l'environnement du recombiner, cette volatilisation n'aurait qu'une incidence limitée sur la chimie de l'iode dans l'enceinte de confinement. Tout au plus, en se re-condensant à la sortie du recombiner, les vapeurs d'iodures feraient évoluer la granulométrie de l'aérosol vers les plus fines particules. La question qui reste posée est donc celle de la stabilité des vapeurs d'iodures métalliques dans l'atmosphère oxydante typique du recombiner en fonctionnement (excès d'air).

S'il existe en effet un nombre très important d'études sur la chimie (la "spéciation") de l'iode dans le circuit primaire (milieu réducteur à haute température ; Cordfunke et Konings, 1993) ou dans une enceinte de confinement non équipée de recombiners (milieu oxydant à basse température ; Beahm *et al.*, 1986), en revanche, le comportement de l'iode et des iodures dans des conditions oxydantes à haute température n'avait pas été considéré jusqu'à présent comme relevant des études de sûreté. L'introduction des recombiners dans une enceinte de confinement impose donc l'étude de ce nouveau domaine de la physico-chimie de l'iode en situation d'accident grave.

A l'aide d'un code numérique de minimisation d'énergie libre (*THERMODYNAMICS Gemini1*), il est facile de démontrer qu'en présence d'oxygène libre et de vapeur d'eau à 900°C, les iodures de césium, argent, indium et cadmium libèrent de l'iode volatil, sous forme d'iode atomique I et moléculaire I₂ (di-iode), mais aussi d'acide hypoiodéux HIO et d'acide iodhydrique HI (Fig. 1).

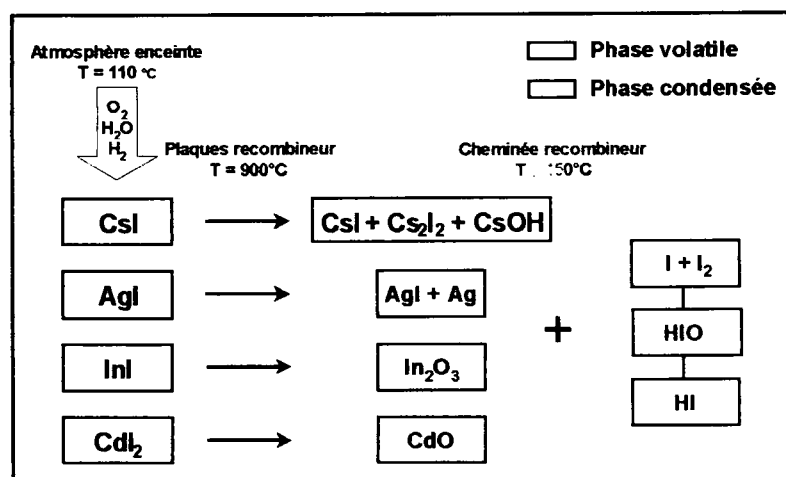


Figure 1. La dissociation des iodures métalliques en présence d'oxygène et de vapeur d'eau est thermodynamiquement possible aux températures atteintes par un recombiner. Elle conduit, selon le cas, à la formation d'hydroxyde, de métal ou d'oxyde. La partition ("spéciation") des produits finaux dépend donc de la cinétique des réactions chimiques en présence du catalyseur, et de l'efficacité de la trempe chimique dans la cheminée du recombiner. Dans la plupart des cas, l'iode volatil formé aux dépens des iodures se trouvera, par ordre de concentrations décroissantes, sous forme d'iode atomique et moléculaire, d'acide hypoiodéux, et d'acide iodhydrique.

La cinétique des réactions chimiques impliquant des vapeurs d'iodures métalliques dans les milieux à forts gradients thermiques et chimiques qui caractérisent la catalyse hétérogène (c'est-à-dire les recombiners) reste très complexe à modéliser, quand bien même les constantes cinétiques seraient toutes disponibles, ce qui n'est pas nécessairement le cas. Le passage à l'expérimentation s'est donc avéré nécessaire à un stade où l'existence d'une conversion :

particule d'iodure → iodure vapeur → iode volatil

dans le recombiner était solidement établie sur des bases théoriques (Sabroux, 2001).

3. Le banc expérimental

Un banc d'essais intégrant un générateur d'aérosol par ultrasons et divers appareils d'analyse de l'iode moléculaire (capteur gaz, électrode sélective et colorimètre) a été réalisé dans les laboratoires de l'IRSN à Saclay (Fig. 2) : il permet de déterminer quantitativement la conversion en iode gazeux de particules d'iodure de césium CsI traversant un tube de quartz ou d'alumine chauffé et dont les dimensions reproduisent la géométrie de l'écoulement du gaz entre les plaques d'un recombineur industriel. Le banc d'essais a été dimensionné de telle façon qu'une production d'iode gazeux ne dépassant pas 1 % de l'iode introduit sous forme d'aérosol à la base du tube soit aisément accessible à la mesure.

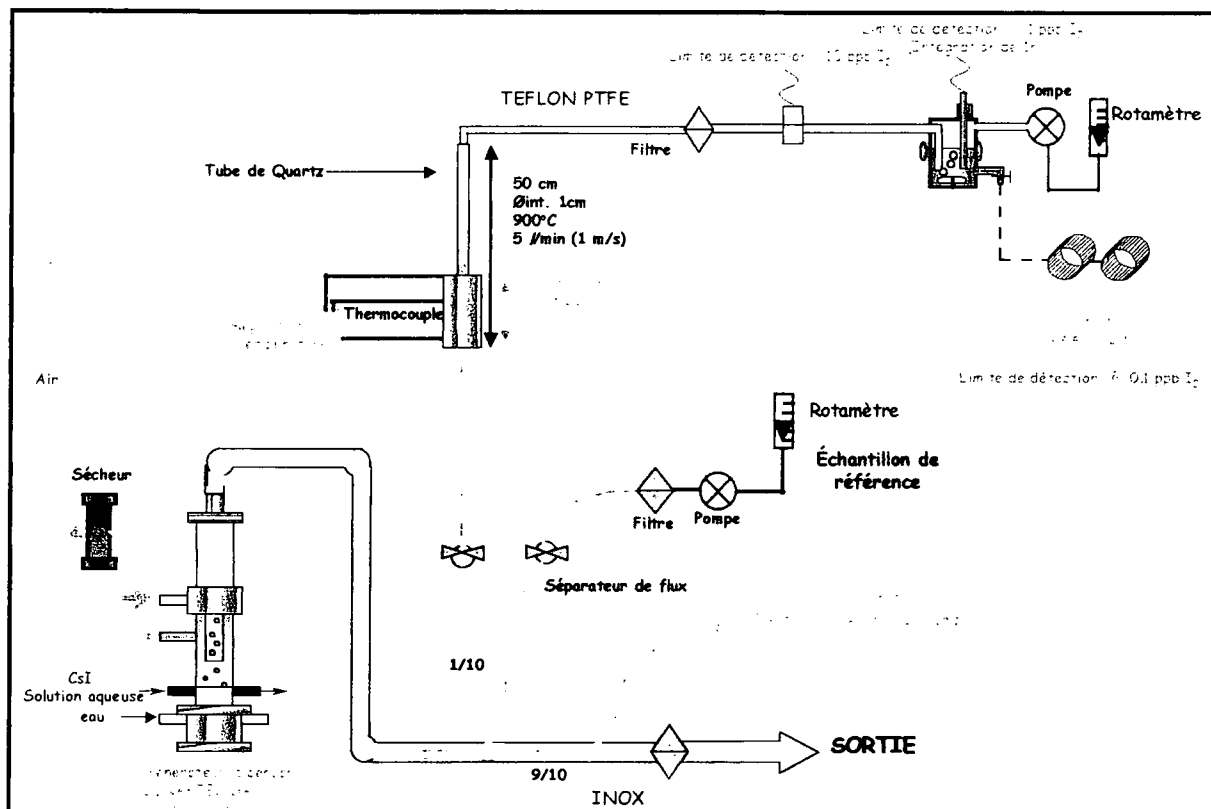


Figure 2 : le banc d'essais "RECI" — RECombineur & Iode — dans sa configuration actuelle (décembre 2002). La céramique piézo-électrique du générateur d'aérosol détermine, par sa fréquence de résonance (~1 MHz), la taille des gouttelettes de solution aqueuse d'iodure de césium entraînées dans le courant d'air. Après séchage de ces gouttelettes, l'aérosol est constitué de particules d'iodure de césium dont la taille ne dépend que de la concentration de la solution aqueuse nébulisée. La concentration de cet aérosol n'est, elle, que fonction de l'énergie électrique fournie à la céramique et du débit du gaz porteur : cette concentration est contrôlée avec précision par un prélèvement de référence. L'aérosol traverse ensuite le tube de quartz ($\varnothing_{int} = 1$ cm), chauffé dans un four électrique annulaire, simulant une veine gazeuse à l'intérieur d'un recombineur. Le temps de séjour de l'aérosol dans la zone chauffée (14 cm) du tube vertical est, lui aussi, représentatif des paramètres de fonctionnement d'un recombineur. En sortie de tube, l'aérosol est filtré sur une membrane téflon, et le gaz, débarrassé de ses particules, circule devant un capteur électrochimique ampérométrique, spécifique de l'iode gazeux, puis barbote dans une solution alcaline. Dans cette solution alcaline, une électrode sélective des ions I^- délivre en continu une mesure intégrée de la quantité totale d'iode transporté par le gaz pendant la durée d'une expérience. La cohérence, en fonction du débit gazeux, de la mesure instantanée (capteur gaz) et de la mesure intégrée (électrode sélective) indique qu'en aval du filtre, le transfert se fait bien sous forme de I_2 , et non pas de CsI : nous avons donc accès à la mesure directe d'un taux de conversion de CsI en I_2 . A titre de contrôle, la solution alcaline est enfin analysée, pour chaque expérience, à l'aide d'une méthode colorimétrique, méthode de référence dans nos laboratoires (Fournier-Bidoz, 1997).

Avec son générateur d'aérosol par ultrasons, l'actuel banc d'essais "RECI" pourra explorer de la même façon la conversion de l'iodure de cadmium CdI_2 , tout aussi soluble dans l'eau que CsI . En revanche, un autre type de générateur d'aérosol devra être mis en œuvre pour étudier la conversion en iode de l'iodure d'indium InI (hydrolysable), et de l'iodure d'argent AgI (insoluble).

4. Premiers résultats expérimentaux

Les expériences préliminaires ont visé à qualifier le banc expérimental ; elles se situent donc en amont de l'élaboration d'une grille d'essais destinée à explorer de façon exhaustive un domaine de conditions représentatives. Ces expériences ont d'ores et déjà montré que l'iodure de césium sous forme d'aérosol, chauffé dans l'air humide à 900°C pendant une fraction de seconde, produisait de l'iode volatil en quantités mesurables (Fig. 3). De même, ces expériences confirment l'évolution attendue de la granulométrie de l'aérosol vers de plus fines particules, conséquence du processus d'évaporation/condensation qui intervient à la traversée du recombineur (Fig. 4).

Il apparaît que le taux de conversion $\tau = 2,047 \times m(I_2) / m(Csl)$ s'établit autour de 1% pour un aérosol de diamètre aérodynamique d'environ 1 μm dans l'air humide ($H_2O \cong 1,5 \%$ vol.), une température du four de 900°C et une vitesse d'entrée dans le tube de 1 m/s. Les expériences à venir devront préciser cette valeur, tout en rapprochant les conditions expérimentales des conditions représentatives. Parmi les facteurs entraînant vraisemblablement une sous-évaluation du taux de conversion, nous retiendrons :

- l'absence d'hydrogène,
- la faible teneur en vapeur d'eau,
- l'adsorption de l'iode gazeux sur la paroi interne des tubes de quartz et de téflon, ainsi que sur l'iodure de césium déposé sur ces tubes et sur le filtre,
- l'absence de catalyseur.

En revanche, il se peut qu'une géométrie plus compacte et une trempe chimique plus vigoureuse (tube plus court que la cheminée d'un recombineur réel, et maintenu à température ambiante en aval du four) favorise la conversion de l'iodure de césium en iode volatil dans notre montage expérimental.

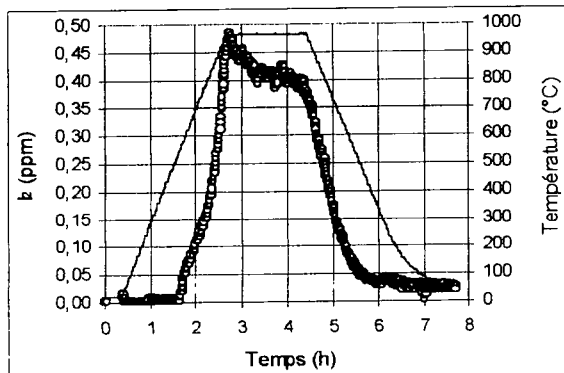


Figure 3. La production d'iode dans le tube chauffé suit fidèlement la rampe de température du four : la conversion de l'iodure de césium intervient dès 500°C. Il convient toutefois de noter que, dans cette expérience, le temps de séjour de l'aérosol dans la zone chauffée du four est trois fois supérieur aux durées de chauffage représentatives du fonctionnement d'un recombineur réel, ce qui favorise très vraisemblablement la conversion. La teneur en iode mesurée à la sortie du tube réacteur (0,45 ppm, pour une concentration de l'aérosol à l'entrée du tube de 75 mg/m^3), correspond à un taux de conversion de 3,3 % à 950°C. L'adsorption de l'iode sur l'iodure de césium condensé au niveau des parois froides en aval du four se traduit par une décroissance de cette teneur tout au long du palier de température.

Si les premières expériences ont été conduites (relativement faibles) conduisant à des conversions sans doute plus importantes que celles qui seraient observées dans une situation présente les grandeurs suivantes : l'iode I_2

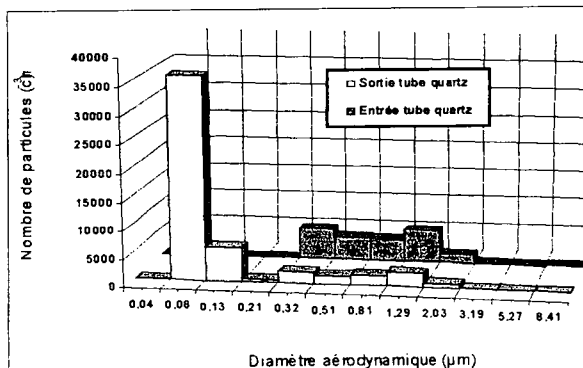


Figure 4. Le chauffage de l'aérosol dans le tube de quartz se traduit, en aval du four, par une perte de matière due à la condensation de la vapeur d'iodure de césium au niveau des parois froides, mais conduit aussi à l'apparition d'une importante population de particules ultra-fines (mesures réalisées à l'aide d'un *Electrical Low Pressure Impactor*). Le diamètre aérodynamique d'une particule d'iodure de césium est approximativement le double de son diamètre géométrique, si bien que l'aérosol mis en œuvre dans cette expérience est légèrement plus fin qu'un aérosol représentatif. Il ne semble pas, toutefois, que le taux de conversion soit très dépendant de la granulométrie de l'aérosol : contrairement aux diverses réactions chimiques, la vaporisation des particules ne serait pas le phénomène cinétique limitant.

dans des conditions (aérosol fin et débits conversions sans doute plus importantes que réelle, il est cependant possible d'avancer dès à apparaît vers 525°C, et le taux de conversion du

Csl atteint au moins 1 % au delà de 900°C. Ce taux de conversion paraît très sensible au débit du gaz porteur dans le tube, ce qui met en valeur l'importance de la cinétique chimique dans le processus de conversion. Il se peut donc que l'introduction de catalyseur dans le tube chauffé conduise à des taux de conversion plus élevés.

5. Conclusions

Les premières expériences réalisées sur le banc expérimental "RECI" confirment l'hypothèse selon laquelle le rapport $\text{iode}_{\text{gazeux}} / \text{iode}_{\text{total}}$ dans l'atmosphère d'une enceinte de confinement d'un réacteur nucléaire en situation d'accident grave pourrait être modifié par le fonctionnement des recombineurs d'hydrogène. Cette hypothèse était déjà confortée par des calculs de thermique (vaporisation des aérosols) et par une approche thermodynamique de la conversion iodure \rightarrow iode. L'expérience révèle désormais que les cinétiques sont suffisantes pour que la conversion ait lieu malgré le très bref temps de passage de l'aérosol dans le recombineur.

Ces résultats ne sont pas totalement inattendus dans la mesure où les températures atteintes par les plaques d'un recombineur en fonctionnement se situent entre celles des procédés industriels connus sous le nom de *spray drying* (Masters, 1979) et de *spray pyrolysis* (Mooney et Redding, 1982), avec des durées de chauffage du même ordre de grandeur : les particules d'iodures seront donc en grande partie vaporisées lors de la traversée des recombineurs, comme elles le sont dans ces procédés qui utilisent d'ailleurs souvent des halogénures (fluorures et chlorures) comme matériau de départ pour la synthèse de poudres et de nano-particules. Quant à la formation d'iode gazeux aux dépens des vapeurs d'iodures, nous avons vu qu'elle est thermodynamiquement possible en présence d'oxygène et de vapeur d'eau à de telles températures.

Une grille d'essais a été élaborée, qui permettra de préciser le taux de conversion et d'explorer sa sensibilité à la variation des divers paramètres influents retenus. Les données expérimentales pourront alors être utilisées pour valider un futur module *RECOMBINEUR* dans les codes permettant de calculer le terme-source iode pour différents scénarios accidentels (Neeb, 1997).

Références

- Beahm, E.C., Shockley, W.E. et Weber, C.F. (1986). Chemistry and transport of iodine in containment. In *Source term evaluation for accident conditions*, pp. 479-500, IAEA Proceedings Series, IAEA-SM-281, Vienna.
- Cordfunke, E.H.P. et Konings, R.J.M. (1993). The release of fission products from degraded UO_2 fuel: thermochemical aspects. *Journal of Nuclear Materials*, 201, 57-69.
- Fournier-Bidoz, V. (1997). Description pratique d'une méthode de dosage des traces d'iode inorganique dans les solutions aqueuses. *Rapport SERAC/LPMC/97-10*, IPSN, Saclay.
- Hinds, W.C. (2001). Physical and chemical changes in the particulate phase. In *Aerosol measurement: principles, techniques and applications* (Edited by Baron, P.A. and Willeke, K.), pp. 83-97, Wiley, New York.
- Kress, T.S., Beahm, E.C., Weber, C.F. et Parker, G.W. (1993). Fission product transport behavior. *Nuclear Technology*, 101, 262-269.
- Libmann, J. (1996). *Éléments de sûreté nucléaire*. Les Editions de Physique & IPSN, Paris.
- Masters, K. (1979). *Spray drying handbook*. G. Godwin, London.
- Mooney, J. et Redding, S. (1982). Spray pyrolysis. *Annual Review of Materials Science*, 12, 81-90.
- Neeb, K.H. (1997). *The radiochemistry of nuclear power plants with light water reactors*. Walter de Gruyter, Berlin.
- Rozé, C., Girasole, T. et Berlemont, A. (2001). Evolution thermique de particules microniques chauffées par rayonnement et par convection dans un mélange gazeux. *Rapport LESP*, Université et INSA de Rouen.
- Sabroux, J.C. (2001). Chimie de l'iode et recombineurs d'hydrogène. *Rapport SERAC/LPMAC/01-17*, IPSN, Saclay.

MODELISATION DE LA CONDENSATION DE VAPEUR SUR
UNE GOUTTE ET ETUDE DE LA TECHNIQUE ARC-EN-CIEL
GLOBALE EN VUE DE MESURER LA TEMPERATURE DES
GOUTTES.

P. Lemaitre ^(1,2); G. Grehan ⁽²⁾; J. Malet ⁽¹⁾; E. Porcheron ⁽¹⁾;
P. Cornet ⁽¹⁾; P. Brun ⁽¹⁾; J. Vendel ⁽¹⁾

(1) Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire
DPEA/SERAC

Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols et du Confinement.
BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette cedex.

(2) UMR 6614 CORIA, Laboratoire d'Electromagnétisme et Systèmes Particulaires
Site Universitaire du Madrillet
Avenue de l'université BP 12

76 801 Saint Etienne du Rouvray Cedex

Corresponding author: phone: 33 (0)1 69 08 91 24, Fax: 33 (0)1 69 08 97 36

E-mail: Pascal.Lemaitre@irsn.fr

Nomenclature

d : diamètre

I : Intensité diffusée

P : pression

T : Température

V : vitesse de la goutte

u' : fluctuation de vitesse du gaz

u : vitesse du gaz

H R : humidité relative

t : temps

z : fonction linéaire de l'angle de diffusion θ

f(d) : fonction de dispersion granulométrique log-normale

Lettres grecques

α_τ : niveau de turbulence ($\alpha_\tau = \frac{u'}{u}$)

δ : mode de la distribution granulométrique

θ : angle de diffusion hors axe

σ : dispersion de la distribution granulométrique

Indices

I : relatif à l'interface goutte gaz

Inj : à l'injection

gte : relatif à la goutte

1.CONTEXTE ET OBJECTIFS

Lors d'un hypothétique accident grave, la vapeur d'eau dégagée par une brèche dans le circuit primaire entraîne une importante augmentation de la pression et de la température dans le bâtiment réacteur. Or, à haute température le zirconium des gaines du combustible réagit avec la vapeur d'eau pour former de l'hydrogène qui s'il est fortement concentré dans l'enceinte du réacteur peut conduire à des modes de combustion plus ou moins violents. L'asperser est un dispositif destiné à faire chuter la pression et la température dans le

bâtiment réacteur nucléaire. Or, la condensation de la vapeur sur les gouttes entraîne la diminution de la fraction volumique de vapeur dans l'enceinte et provoque une augmentation de la fraction volumique d'hydrogène et accroît ainsi le risque de détonation. De plus, l'aspersion génère un fort taux de turbulence qui va aussi permettre de mélanger les différents gaz présents dans l'enceinte. L'aspersion joue donc deux rôles antagonistes, l'un ayant tendance à diminuer le risque hydrogène, l'autre à l'accroître. Jusqu'à présent, l'IRSN a développé parallèlement deux types d'outils pour décrire les transferts entre la phase continue et la phase dispersée. Les codes multidimensionnels, avec les travaux de ARMAND [2] pour décrire les transferts de quantité de mouvement entre les phases, et de GAUCHET [4] pour décrire les transferts de masse entre l'atmosphère et un train de gouttes. Et les codes 0-D avec les travaux de PLUMECOCQ [7] et DUCRET [12].

Ces différents développements ont été validés sur les expériences à effets découplés suivantes : DYNASP [3] pour les échanges de quantité de mouvement entre un ensemble de particules et le gaz, DYNASPT pour les échanges de chaleur et de quantité de mouvement entre un ensemble de particules et le gaz et CARAIDAS [12] pour les transferts de masse entre l'atmosphère et une goutte.

Toutes ces expériences menées jusqu'à présent étaient à effets découplés, la question soulevée est de savoir si les modélisations développées par l'IRSN sont satisfaisantes pour traiter des cas où tous les transferts sont couplés.

L'objectif de l'IRSN est d'étudier les transferts couplés de matière, chaleur, et quantité de mouvement de sorte à valider les codes développés pour des conditions proches de « l'accident grave ».

L'objectif de ce travail est de présenter les actualisations apportées au programme ACACIA de sorte à modéliser le plus finement possible les transferts de masse et de chaleur entre une goutte et l'atmosphère, puis dans une deuxième partie il s'agira de déterminer les essais permettant d'apporter une validation expérimentale de ce modèle. Pour cela nous présenterons les travaux que nous avons réalisés sur une technique innovante permettant de mesurer la température de particules non-intrusivement.

2. BIBLIOGRAPHIE TRANSFERTS DE MASSE ET DE CHALEUR.

Une étude bibliographique approfondie nous permet d'actualiser le programme ACACIA développé précédemment au SERAC (modification du modèle de flux de masse sur la goutte, des corrélations sur les nombres de Nusselt et Sherwood et de la température moyenne dans la couche limite) afin d'être en mesure de décrire le plus finement possible les transferts de masse et de chaleur entre les gouttes et l'atmosphère environnante (nous appellerons désormais ce programme ACACIA2). Il nous importe donc tout d'abord de décrire le modèle implanté dans ACACIA2. Nous supposons dans ce modèle que tous les transferts de masse et de chaleur sont à symétrie sphérique et sont localisés dans deux films. Le premier film, coté gaz est constitué d'une couche limite thermique et d'une couche limite de diffusion [5], le second film coté liquide est une couche limite thermique. Les propriétés thermodynamiques du gaz sont calculées à l'aide de la « règle du 1/3 » [1,5] et les corrélations de Sage & Galloway sont utilisées pour calculer les nombres de Nusselt et de Sherwood. Ces corrélations permettent de prendre en compte les effets de la turbulence sur les transferts de masse et de chaleur. La deuxième couche limite (coté liquide) est une couche limite thermique. Nous utilisons des corrélations empiriques dépendantes du régime d'écoulement dans la goutte pour calculer un nombre de Nusselt et ainsi modéliser cette couche limite.

3. RESULTATS OBTENUS AVEC LE PROGRAMME ACACIA2

Grâce à ACACIA2, nous sommes désormais capables d'évaluer l'effet de la turbulence sur le grossissement de la goutte (figure 1). Sur ce graphique nous faisons varier le niveau de turbulence de 0 à 50 % car une pulvérisation peut générer un taux de turbulence allant jusqu'à 50 % [8]. On constate que pour un niveau de turbulence de 50 % le diamètre à l'issue des 4 mètres de chute est de 6 μm inférieur à celui calculé si l'on avait pas pris en compte le rôle de la turbulence.

Ce programme nous permet aussi de déterminer s'il est intéressant de calculer la température d'interface de la goutte pour ne pas perdre de précision sur le calcul du grossissement de la goutte ou si on peut la supposer égale à la température de la goutte (figure2).

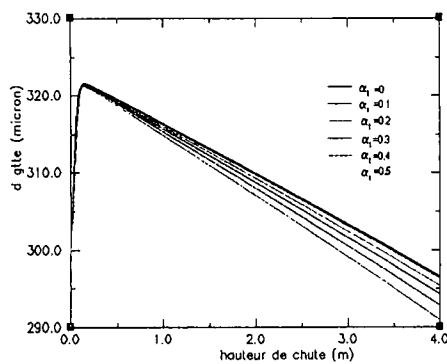


Fig.1 Effet de la turbulence sur la variation de diamètre des gouttes

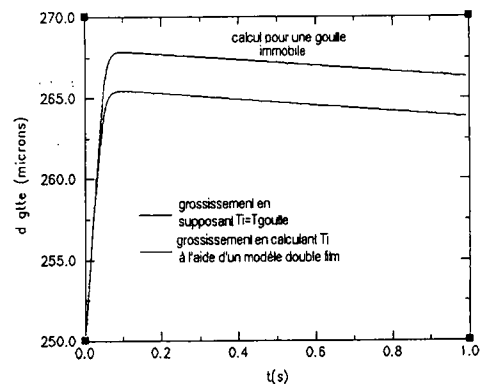


Fig2. Influence du calcul de la température d'interface sur le grossissement

Nous remarquons, sur la figure 2, que si l'on suppose la température de l'interface égale à la température de la goutte, on surestime le grossissement de la goutte d'environ 2.5 μm , sachant que le grossissement est seulement de 15 μm , il s'agit donc d'une erreur de 17 %. Pour s'assurer de la validité de ce programme, il a été confronté aux résultats de l'expérience CARAIDAS (figure 3), il s'agit de l'évaporation d'une goutte lors de sa chute dans un mélange air-vapeur. On constate un bon accord entre les points expérimentaux et le calcul numérique.

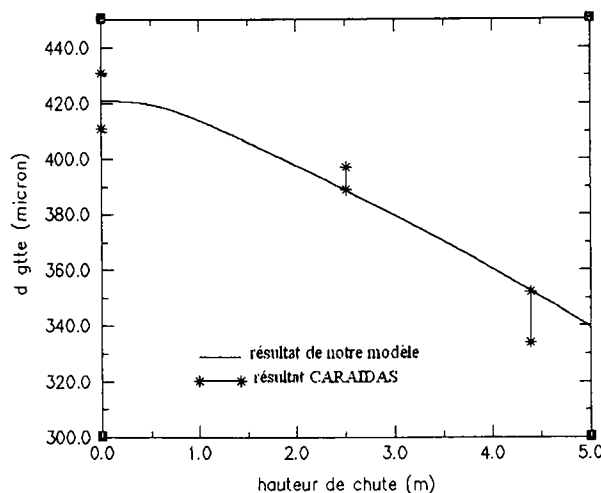


Fig.3 Confrontation de notre modèle aux résultats CARAIDAS

Les simulations effectuées à l'aide d'ACACIA2 nous ont conduits d'une part à déterminer une grille d'essais à réaliser dans l'enceinte expérimentale TOSQAN [6,9] d'autre part à évaluer le niveau de précision à apporter à nos mesures pour être capable de valider ces modèles dans des conditions thermohydrauliques accidentelles.

4.DETERMINATION D'ESSAIS A REALISER PERMETTANT LA VALIDATION DES MODELES DE TRANSFERT DE MASSE ET DE CHALEUR

Il s'agit maintenant de déterminer les grandeurs physiques auxquelles la condensation sur un spray est la plus sensible, et ce dans le but d'établir notre grille d'essais. Nous réalisons donc avec ACACIA2 une étude de sensibilité de la condensation aux différentes grandeurs liées au gaz (T_{gaz} , P , HR) et aux gouttes (d_{gutte} , T_{inj} , V_{inj}). Cette étude de sensibilité nous montre que la condensation est principalement sensible à quatre paramètres qui sont la taille et la température des gouttes à l'injection, la température du gaz et enfin son taux de saturation. Nous réaliserons donc différents essais dans des conditions thermohydrauliques proches du cas réacteur en faisant varier ces quatre paramètres.

De plus, nous ferons des essais à différentes concentrations en gouttes, car tous les modèles utilisés sont établis pour une unique goutte et il s'agira donc de mesurer l'effet de la concentration en gouttes sur les transferts de masse et de chaleur entre les gouttes et l'atmosphère.

Pour valider les modèles de condensation, nos paramètres de validation seront la température et la taille des gouttes qui seront les grandeurs thermodynamique liées à la goutte qui varieront le plus lors de nos essais, les grandeurs liées au gaz présentant lors de nos essais de très faibles variations.

Il conviendra donc de mesurer la taille des gouttes avec une précision de l'ordre de quelques microns (car l'étude de sensibilité réalisée avec ACACIA 2 montre qu'une goutte de 500 μm ne grossit que de 25 μm lors de sa chute) et leur température avec une précision de l'ordre de dix degrés (car les gouttes s'échauffent d'environ 100 K pendant leur chute).

Pour réaliser ces essais nous disposons du dispositif expérimental TOSQAN (fig. 4). Ce dispositif expérimental se compose d'une cuve cylindrique de 4 mètres de hauteur et 1,5 mètres de diamètre dans laquelle une canne centrale et verticale permet l'injection de vapeur surchauffée ainsi que divers mélanges gazeux. L'enceinte est formée de double paroi dans laquelle circule un fluide caloporteur dont la température est régulée par un groupe réchauffeur-refroidisseur. L'ensemble dispose de 14 accès optiques, chacun étant constitué de 2 hublots traités anti- reflets pour les longueurs d'onde comprises entre 450 et 750 nm qui sont les longueurs d'onde de nos lasers.

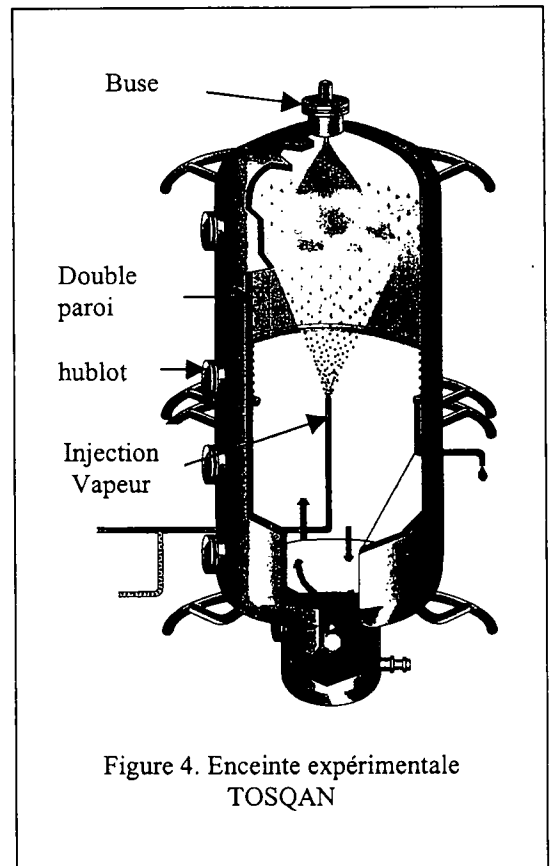


Figure 4. Enceinte expérimentale TOSQAN

5. ETUDE DES TECHNIQUES NON INTRUSIVES PERMETTANT DE CARACTERISER LES GOUTTES D'ASPERSION.

Comme nous l'avons montré dans l'étude précédente les paramètres importants à mesurer sont la température et la taille des gouttes. Afin d'être capable de mesurer la température des gouttes de façon non intrusive, nous nous sommes intéressés à la technique arc-en-ciel global. Cette technique développée par van Beeck [11] permet de mesurer la température d'un nuage de gouttes. Les travaux de van Beeck montrent qu'il est possible de mesurer la température d'un nuage de gouttes de même température à partir de l'analyse de l'arc-en-ciel global. Or comme dans TOSQAN nous injecterons des gouttes de différentes tailles, le volume de mesure contiendra des gouttes de différentes températures, il s'agira donc de vérifier que la température déduite correspond bien à la température moyenne des gouttes dans le volume de mesure.

Nous allons rappeler brièvement le principe de la technique. Lorsqu'un faisceau laser intercepte un nuage de gouttes, ce faisceau va être diffusé par chaque goutte présente dans le volume de mesure (fig. 5). Chaque goutte va diffuser un signal que l'on appelle un arc-en-ciel (fig. 6).

Grâce à un programme que nous avons développé sur la base des études de van Beeck, nous sommes en mesure de calculer « l'arc-en-ciel global », c'est à dire la figure issue de la superposition des arcs en ciel élémentaires formés par chaque goutte (fig. 7).

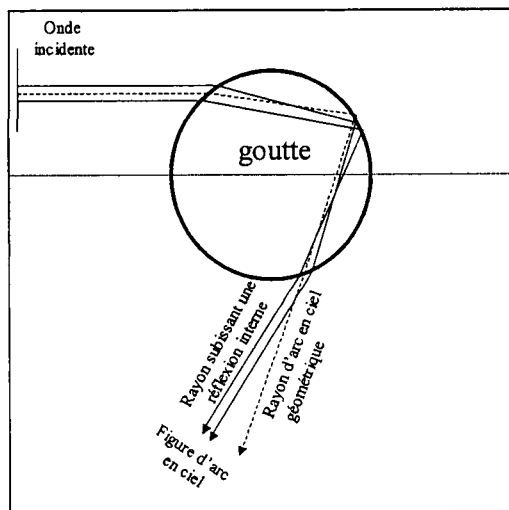


Fig.5 interception d'un faisceau par une goutte

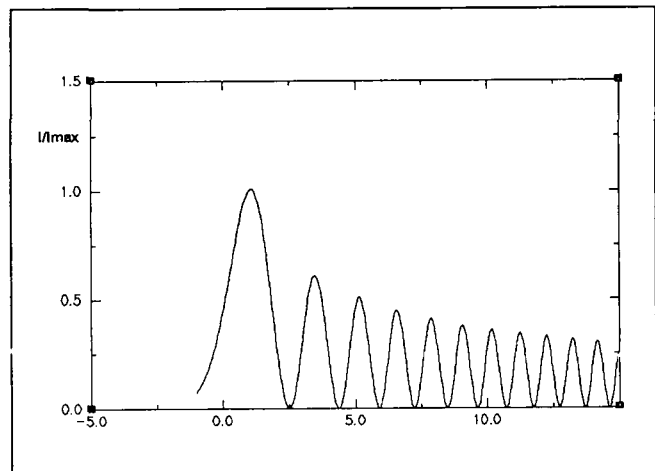


Fig.6 Arc-en-ciel diffusé par une goutte unique (théorie d'Airy)

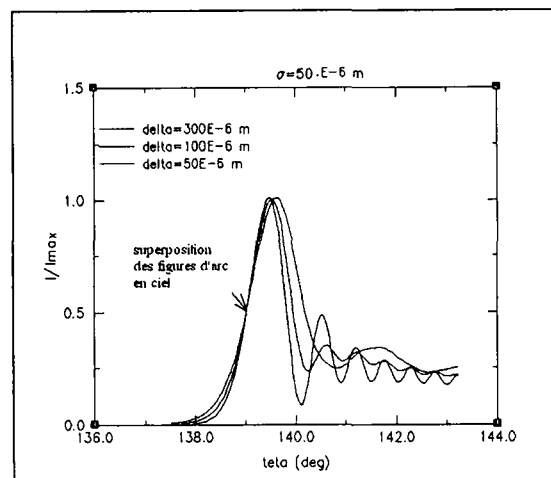


Fig.7 Arc-en-ciel global issu de différentes granulométries de spray

L'analyse des signaux d'arc-en-ciel global montre que quelle que soit la granulométrie du spray les figures d'arc-en-ciel se superposent en un point proche du point d'inflexion de la courbe (figure 7). Cela signifie que la position de ce point d'inflexion ne dépend que de la température de la goutte. Nous utilisons ce résultat pour effectuer l'inversion. Pour nous assurer de la précision de la technique nous procédons en quatre étapes. Premièrement on impose une granulométrie et une température de goutte, puis on calcule la figure d'arc-en-ciel. Grâce à notre procédure d'inversion on déduit la température des gouttes et enfin on compare cette température déduite à celle imposée en entrée du programme. La différence entre la température imposée en entrée et celle déduite en sortie n'excède jamais un degré, cette technique est donc adaptée à notre expérience.

Cette étude nous a donc permis de mettre en évidence le fait que la température des gouttes mesurée dans le volume de mesure correspond bien à la température moyenne des gouttes présentes dans ce volume (10^{-5} m^3) lorsque celles-ci ont des températures différentes.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Notre travail a tout d'abord consisté à réaliser une étude bibliographique sur les transferts entre un nuage de gouttes et l'atmosphère environnante. Cette étude bibliographique nous a permis de trouver les modèles permettant de caractériser le plus finement possible ces transferts. Ces modèles ont été implantés dans le code ACACIA de sorte à être en mesure d'établir une grille d'essais à réaliser dans TOSQAN. Il apparaît à l'issue de notre étude de sensibilité de la condensation, que la température de goutte est une caractéristique pertinente à mesurer. Ainsi nous avons développé un programme permettant de simuler l'arc-en-ciel global. L'analyse des résultats issus de ce programme nous incite à penser que la technique est adaptée à la mesure des températures des gouttes dans TOSQAN. Les étapes suivantes consisteront à trouver et caractériser des buses (grâce à la technique PDA) générant des pulvérisations répondant à nos besoins expérimentaux. Puis, il s'agira d'intégrer la technique arc-en-ciel global à TOSQAN de façon à mesurer la température des gouttes.

Références bibliographique

- [1] B. Abramzon and W.A. Sirignano. Approximate theory of a single droplet vaporization in a convective field: effect of variable properties, Stefan flow and transient liquid heating. ASME/JSME Thermal Engineering Joint Conference Proceeding, Vol.1: pp11-18, 1987.
- [2] P. Armand. Analyse physique et modélisation du transport d'aérosols. Intégration dans un programme aux éléments finis. Validation expérimentale en écoulements laminaires et turbulents. Thèse de Doctorat de l'université Paris 6. Rapport CEA-R-5715, 1996.
- [3] C. Caroli, J.C. Coche, P. Cornet, J.P. Magnaud. Numerical and experimental study of spray dynamics. DYNASP programme. 8th int. conference on Nuclear Reactor Thermal-Hydraulics, NURETH-8, Kyoto, Japan, Vol. 3, pp 1491-1499, September 30-october 4, 1997.

- [4] N. Gauchet. Influence de la densité spectrale de gouttes d'aspersion sur l'efficacité de collecte des produits de fission.- Thèse de Doctorat de l'université Paris 12. Rapport CEA-R-5898, 2000.
- [5] H. Leborgne. Modélisation de l'évaporation a haute pression de gouttes multicomposants dans le code KIVA II, Thèse de Doctorat de l'université de Rouen. Laboratoire CORIA, 1999.
- [6] J. Malet, E. Porcheron, P. Cornet, P. Brun, J. Vendel Thermodynamic characteristics of a water steam-air mixture in a large enclosure with wall condensation. 4th International Conference on Multiphase Flow, ICMF, New Orleans, Louisiana, USA, may 27-june 1, 2001.
- [7] W. Plumecocq. Etude de l'interaction d'un système d'aspersion liquide avec l'atmosphère environnante. Thèse de Doctorat de l'université de Provence, 1997.
- [8] M. St Georges. Etude hydrodynamique des pulvérisations liquides pour application aux rideaux d'eau. Thèse de Doctorat. Institut von Karman de dynamique des fluides, 1993.
- [9] E. Porcheron, L. Thause, J. Malet, P. Cornet, P. Brun, J. Vendel. Simultaneous application of spontaneous Raman scattering and LDV, PIV for steam-air flow characterization. 10th Int. Symposium on Flow Visualization, ISFV, Kyoto, Japan, august 26-29,2002.
- [10] Sommerfeld. Analysis of isothermal and evaporating turbulent sprays by phases-Doppler anemometry and numerical calculations. International journal of Heat and Fluid Flow 19, 173-186, 1997.
- [11] J.P.A.P. van Beeck , D. Giannoulis, L. Zimmer, M.L. Riethmuller. Global rainbow thermometry for droplet temperature measurement. 10th International Symposium on Applications of Laser Techniques to Fluid Mechanics. Lisbon, 2002.
- [12] J. Vendel. Spray system efficiency experiments and their applications to PWR containment safety analysis. GRS/IPSN Fachgespräch, Berlin, Germany, November 9-104, 1998.

EVALUATION DU FACTEUR DE MISE EN SUSPENSION DE CONTAMINANTS RADIOLOGIQUES DANS LES CONDITIONS DE TRANSPORT DE COMBUSTIBLE IRRADIE DE CENTRALE NUCLEAIRE

A. Douce, D. Hameau, C. Létouffé, G. Morel, F. Saintamon
EDF R&D 78401 Chatou
fabrice.saintamon@edf.fr

TITLE

Evaluation of resuspension factor for radiological contaminants in conditions of spent nuclear fuel transports from nuclear plants

ABSTRACT

Inhalation of resuspended particles is the major hazard linked to non-fixed surface contamination. A windtunnel called Ermitage has been designed by EDF R&D in order to test resuspension in representative conditions of spent nuclear fuel transports. That means :

- representative particles of the contamination possibly present on this transport,
- various surfaces: stainless steel of roughness 1,6 μm , and of 0,02 μm ; elastomer ; these surfaces have not been cleaned after the realization of the deposits in order to obtain penalizing conditions of resuspension,
- a duration of 30 minutes of air sweeping;
- two different surface temperatures: ambient and 80°C,
- different speeds of wind, 3 m/s, 10 m/s and 30 m/s.

This report sets out the technical choices made for the windtunnel creation, the process of the 20 experiments carried out on this one, and the experimental resuspension results.

RESUME

Les contaminants mis en suspension entraînent un risque d'atteinte des voies respiratoires par inhalation. EDF R&D a mené une étude expérimentale pour évaluer la mise en suspension dans l'environnement des contaminants présents sur les transports de combustible irradié, grâce à la conception d'une soufflerie en boucle fermée appelée ERMITAGE.

L'objectif de l'étude a été d'expérimenter la mise en suspension par le vent, dans des conditions de transport et d'étudier l'effet des variations de ces conditions :

- particules radioactives représentatives des particules présentes sur les transports (Co60, granulométrie comprise entre 1 μm et 100 μm , AMAD théorique entre 3 et 8 μm),
- vitesse de balayage calée à 3, 10 ou 30 /s,
- type de surface : acier inoxydable de rugosité Ra 1,6 μm , acier inoxydable de rugosité Ra 0,02 μm , élastomère , ces surfaces n'ayant fait l'objet d'aucun nettoyage après réalisation des dépôts de particules afin d'obtenir des conditions pénalisantes de mise en suspension,
- température de surface : ambiante ou 80°C,
- durée de balayage : 30 minutes.

Les résultats obtenus sont présentés au moyen du facteur de mise en suspension, ratio entre l'activité volumique au-dessus d'une surface contaminée et l'activité surfacique de cette même surface.

Objectif de l'étude et principe de l'expérimentation

Les risques sanitaires liés à la contamination surfacique radiologique non fixée ont été quantifiés par l'AIEA (Agence Internationale pour l'Energie Atomique) au moyen du modèle dit de Fairbairn, datant de 1961. Selon ce modèle, le risque majeur lié à la contamination surfacique est le **risque d'inhalation d'aérosols contaminants** [1], l'évaluation de ce risque étant réalisée au moyen d'un **facteur de mise en suspension** de la contamination.

Aujourd'hui, l'AIEA revoit le modèle qui a conduit à l'évaluation des risques. Un groupe de travail ou CRP (Committee research programm), dont fait partie EDF, a donc été monté par l'AIEA, afin de revoir notamment la mise en suspension de particules non fixées.

EDF a proposé au CRP d'évaluer de façon **expérimentale** la mise en suspension des contaminations non fixées présentes sur les transports de combustible irradié. Dans cet objectif, le présent document fait la synthèse de la démarche et des résultats expérimentaux obtenus.

Descriptif de la boucle d'essais Ermitage

La boucle d'essai construite, ERMITAGE (pour : Essais de ReMise en suspension pour le Transports des Assemblages irradiés), est une **soufflerie en boucle fermée**, qui permet la mise en suspension, par balayage d'air, de particules radioactives déposées sur une surface plane, en fonction de paramètres variables :

- vitesse de balayage de l'air, en écoulement turbulent : 3 m/s, 10 m/s, 30 m/s
- nature des surfaces de dépôt : en acier de différente rugosité (acier inoxydable 0,02 µm ou 1,6 µm) ou en élastomère
- température de la plaque de dépôt : ambiante ou 80°C
- durée de chaque essai : 30 mn, sauf deux de 2 mn + 30 mn qui ont permis de tester l'influence des premières minutes

Les choix techniques aérologiques ont été faits pour conduire à une **évaluation conservatrice** de la mise en suspension des particules déposées sur les emballages de combustible usagé.

Principaux composants

- une cellule d'essais dans laquelle les dépôts des particules sont soumis à un flux d'air. La section de la cellule est définie pour maintenir un écoulement turbulent sur toute la gamme de vitesse d'air (3 à 30 m/s),
- deux plaques, sur lesquelles sont déposées les particules, sont encastrées dans les parois supérieure et inférieure de la cellule.
- un filtre THE (Très Haute Efficacité) destiné à collecter les particules entraînées par le flux d'air,
- un ventilateur centrifuge à débit variable,
- plusieurs dispositifs de tranquillisation assurant un écoulement stabilisé à l'entrée de la cellule,
- des capteurs de mesures de températures, humidité, pressions et vitesse d'air.

Principe d'obtention d'une contamination représentative

Afin d'obtenir une contamination représentative de celle éventuellement présente sur les transports de combustible irradié, le choix a été fait de travailler avec les particules à l'origine de cette contamination, particules présentes dans l'eau de piscine de désactivation des assemblages de combustible irradié.

Les particules ont donc été prélevées au moyen d'une unité de **filtration tangentielle** permettant :

- de concentrer les particules dans l'eau ;
- d'en enlever l'acide borique, afin d'éviter la cristallisation lors de la réalisation des dépôts de contaminants, qui aurait piégé les particules et empêché leur mise en suspension.

Particules obtenues

Les particules obtenues par cette méthode présentaient les caractéristiques suivantes :

- spectre radiologique : Co60 (1800 kBq/l) et Mn54 (80 kBq/l) ;
- teneur en bore : inférieure à 2 ppb ;
- granulométrie : > 0.2 µm.

Remarque : ces particules sont polydispersées autour d'un diamètre médian de 3 à 8 µm. La loi de dispersion des diamètres est classiquement une loi lognormale.

Dans le cas particulier de l'expérimentation, les particules utilisées avaient un diamètre supérieur à 0.2 µm, en raison du diamètre de coupure de la membrane de filtration tangentielle utilisée. Nous n'avons pas sélectionné les particules de diamètre inférieur à

10 μm (seuil de coupure des particules inhalables [2]), ce qui place cette étude dans des conditions majorantes compte tenu de son objectif.

Méthode de mise en dépôt des particules sur les plaques

Le dépôt sur les plaques est préparé à partir d'une suspension aqueuse évaporée sur leur surface à une température de 80°C. Une mesure d'activité globale est ensuite réalisée pour connaître l'activité réellement déposée.

Après cette mesure, les plaques sont immédiatement insérées dans deux évidements pratiqués au travers des parois supérieure et inférieures de la cellule d'essais. Elles ne font l'objet **d'aucun nettoyage ou balayage** avant le démarrage de l'essai **et la mise en suspension est donc évaluée sur cette contamination déposée sans action ultérieure.**

Mise en suspension

Les particules mises en suspension sont récupérées sur le filtre THE de collecte ; ce filtre est changé à chaque essai.

Mesures sur plaques

Chaque plaque est soumise à une mesure d'activité

- après le dépôt,
- après l'essai,
- après le nettoyage.

Ces mesures ont permis de mettre en évidence que le nettoyage des plaques n'était pas totalement efficace. L'activité résiduelle mesurée après nettoyage est alors considérée comme fixée et est soustraite de l'activité déposée pour évaluer **la contamination radiologique surfacique non fixée réellement déposée.**

Mesures sur filtre

Après l'essai de mise en suspension, le filtre est enlevé de la boucle dans un sac vinyle étanche. Il est ensuite préparé pour être mesuré, la mesure étant effectuée sur le média filtrant et sur le sac vinyle d'emballage.

L'activité présente sur le filtre est mesurée par deux moyens :

- mesure d'activité globale par compteur gamma,
- comptage fin par spectrométrie gamma sur des échantillons de filtre.

Exploitation des résultats

En raison des principes de fonctionnement de la boucle ERMITAGE, les grandeurs accessibles pour chaque essai de mise en suspension sont :

- l'activité totale non fixée déposée ;
- l'activité totale mise en suspension ;
- ainsi que tous les paramètres physiques enregistrés relatifs à l'essai : températures, humidité, pression, débit d'air, durée, type de plaque....

L'objectif est de tirer de ces grandeurs une valeur représentative de la mise en suspension. La seule grandeur exacte dans ce contexte est la **fraction mise en suspension** (rapport entre l'activité totale mise en suspension et l'activité totale déposée). Mais le but de notre étude est d'apporter des éléments de réflexion sur le risque d'inhalation de particules contaminantes dont l'évaluation est basée sur le **facteur de mise en suspension** ([1]). Ces contraintes nous ont donc conduits à faire une moyenne dans le temps et l'espace de l'activité suspendue pour calculer une activité volumique moyenne représentative sur la hauteur de la veine d'essai. C'est cette grandeur qui permettra d'accéder directement au facteur de mise en suspension pour présenter nos résultats d'essais.

L'activité volumique moyenne à 10 cm maximum de la paroi est donnée par :

$$A_{vol,erm} = \frac{A_{tot,erm}}{V \times S_{erm} \times D}$$

avec : $A_{tot,erm}$: activité totale mise en suspension lors de l'essai considéré (Bq)

V : vitesse débitante de balayage de l'air (m/s)

S_{erm} : section de la veine d'essais d'Ermitage (m²)

D : durée de l'essai (s)

Par conséquent, nous proposons une évaluation conservatrice des facteurs de mise en suspension valables dans les conditions majorantes de mise en suspension d'ERMITAGE, c'est-à-dire :

- au **voisinage de la paroi**, la hauteur de la veine d'essai étant de 10 cm ;
- pour **les durées d'étude** (30 minutes) ;

Dans ce cas, le facteur de mise en suspension est extrait simplement des activités mesurées, par :

$$F_{susp,erm} = \frac{A_{vol,erm}}{A_{surf,erm}}$$

avec : $F_{susp,erm}$: facteur de mise en suspension (m⁻¹)

$A_{surf,erm}$: activité surfacique déposée sur les plaques (Bq/m²)

Résultats et paramètres d'influence

Evaluation de l'incertitude sur les résultats de mise en suspension

Les résultats de mise en suspension ont une incertitude liée à la mesure d'activité sur la plaque de dépôt, à la mesure d'activité sur le filtre, au mode opératoire (perte de contamination – contamination croisée d'un essai à l'autre).

L'aérodynamisme de la boucle ERMITAGE a été conçu pour limiter le dépôt de particules entre la veine d'essai et le filtre de collecte des particules mises en suspension, limitant ainsi le risque de contamination croisée d'un essai à l'autre. Pendant les essais, des prélèvements par frottis ont été réalisés, qui ont montré l'absence de dépôts de contaminants dans cette zone. On considère donc que toute l'activité mise en suspension a été collectée par le filtre.

La perte de contamination ou la contamination croisée peuvent se passer lors de la préparation des filtres avant mesure. Afin de rester majorant, tous les vinyles d'emballage et de support de découpe ont été mesurés et leur activité intégrée à l'activité totale prise en compte dans l'évaluation du facteur de mise en suspension.

Les incertitudes de mesures ont été calculées :

- pour la mesure d'activité sur la plaque de dépôt : 12%
- pour la mesure d'activité sur le filtre : 10%

Ce qui donne une incertitude globale sur l'évaluation de l'activité mise en suspension de 16%.

Présentation des résultats de mise en suspension

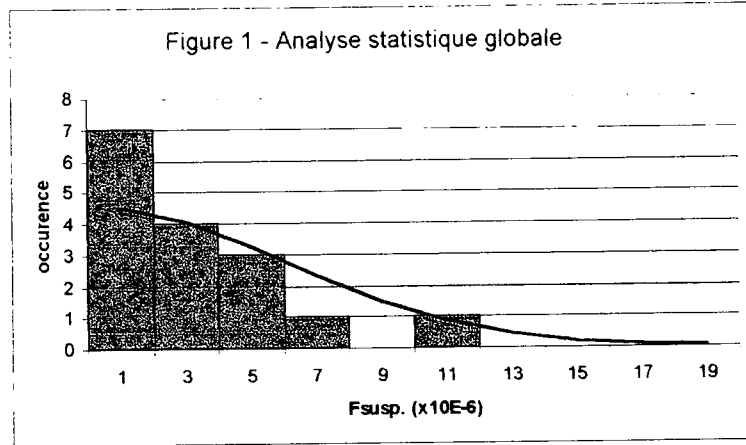
Afin de tester le facteur de mise en suspension en fonction de chacun des paramètres d'influence identifiés (vitesse de balayage de l'air, nature et rugosité des surfaces de dépôt, température des plaques), 20 essais au total ont été réalisés, dont deux à blanc.

Une analyse statistique sur la dispersion de ces résultats est illustrée dans le graphe ci-dessous :

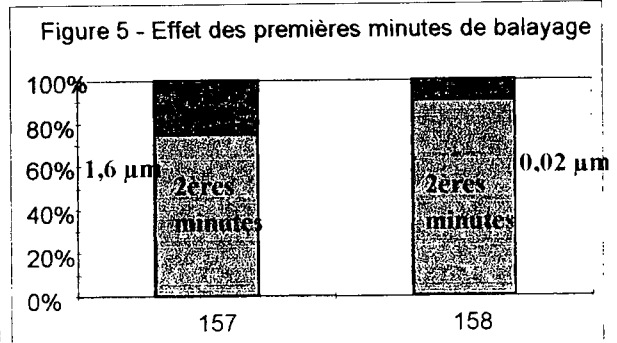
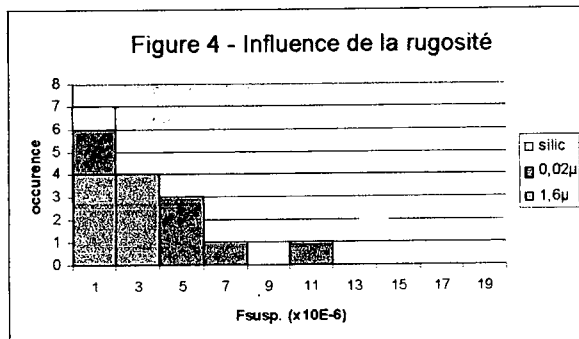
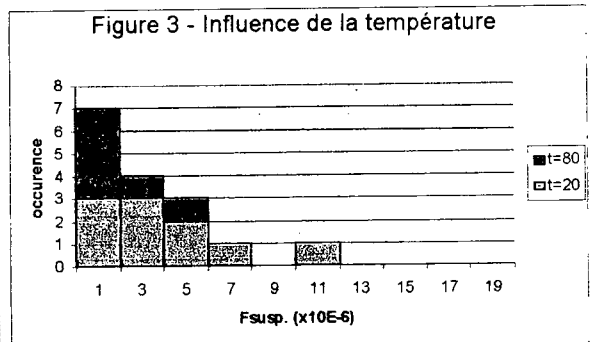
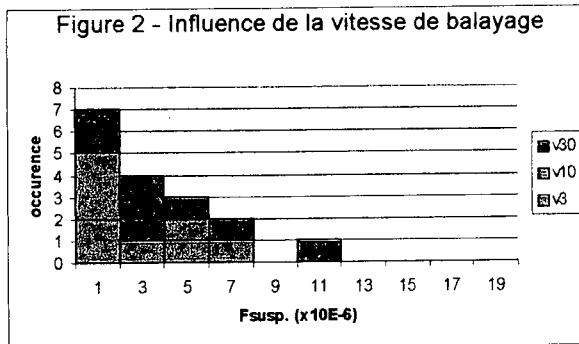
- en abscisse, les classes de valeur de facteur de mise en suspension,
- en ordonnée, le nombre de facteur pour chacune de ces classes.

Cette analyse montre que toutes les valeurs sont inférieures à 6^E-6 m⁻¹, sauf une seule, qui est nettement plus importante et se situe à $9,6^E-6$ m⁻¹. Cette dernière peut s'expliquer par la présence

d'un « point chaud » : une particule de forte activité spécifique, ou située en queue de distribution granulométrique a très probablement été mise en suspension et récoltée sur le filtre.



Influence des paramètres



Vitesse de balayage

Il n'y a pas d'influence notable de la vitesse sur le facteur de mise en suspension.

En effet, la contrainte de cisaillement exercée sur les particules est une fonction croissante du gradient de vitesse normal à la surface et donc de la vitesse de balayage, à paramètres identiques. La fraction totale mise en suspension lors d'un essai est donc une fonction croissante de la vitesse débitante, là encore à autres paramètres d'influence identiques. Dans le cas des essais menés sur Ermitage, nous avons effectivement constaté une fraction mise en suspension croissante avec la vitesse de balayage (la vitesse de frottement ayant été mesurée et étant une fonction croissante de la vitesse de balayage).

Mais de façon mathématique, le facteur de mise en suspension est inversement proportionnel au débit d'air qui l'occasionne, ce qui s'explique de façon physique par une plus grande dilution de la quantité mise en suspension.

Dans le cas d'Ermitage, ces deux effets inverses ont annulé leur influence réciproque, ce qui se traduit par un facteur de mise en suspension quasiment identique quelle que soit la vitesse.

Température

La variabilité avec la température paraît faible dans la plage étudiée. En effet, la température a une double influence :

- la première est liée aux forces d'adhésion de Van der Waals qui sont d'autant plus faibles que la température est élevée. Ceci peut conduire à une mise en suspension plus élevée ;
- mais l'augmentation de température conduit à une diminution de la viscosité dynamique de l'air, donc à une diminution de la contrainte de cisaillement, effet contraire au premier.

Seule une modélisation plus fine des forces nous aurait permis de comparer nos résultats à la théorie. Cette modélisation n'a pas été réalisée.

Nature de la surface

L'effet de la rugosité est net ; il s'explique par l'augmentation d'une partie des forces d'adhésion (les forces d'accrochage rugueux) avec la rugosité dans la plage étudiée.

Effet des premières minutes de balayage

Deux essais permettant d'étudier la mise en suspension pendant les premières minutes de balayage ont montré que sur 2 minutes + 30 minutes de balayage, **70 à 90% de l'activité totale mise en suspension l'est pendant les deux premières minutes** de balayage.

Ceci est à rapprocher avec le fait que les particules déposées sur les plaques n'ont fait l'objet d'aucun traitement avant mise en suspension, et est confirmé dans les expérimentations comme dans les modèles de mise en suspension, dont le modèle d'accumulation d'énergie de Reeks. Le phénomène de mise en suspension par balayage d'air de particules comporte en effet deux parties [3] :

- pendant les premières secondes de balayage, les particules très faiblement adhérentes se mettent immédiatement en suspension ;
- ensuite, on assiste à une mise en suspension statistique de particules plus adhérentes, qui est un phénomène constant dans le temps.

Conclusions sur l'évaluation du facteur de mise en suspension

L'expérimentation menée sur Ermitage a permis d'évaluer un facteur de mise en suspension due au balayage par le vent dans des conditions conservatives par rapport aux conditions de transport de combustible usagé. La grandeur choisie pour représenter la mise en suspension est le facteur de mise en suspension, afin de faciliter la comparaison avec le modèle de Fairbairn. Ce facteur de mise en suspension ainsi obtenu est valable pour les conditions d'obtention dans Ermitage :

- au **voisinage de la paroi**, la hauteur de la veine d'essai étant de 10 cm ;
- pour les **durées d'étude** (30 minutes) ;

son extrapolation à d'autres conditions nécessitant des facteurs de correction (en particulier un facteur de dilution pour évaluer la concentration dans l'air à une distance donnée de la paroi).

Dans ces conditions, les essais ont montré après analyse statistique que :

- le facteur de mise en suspension trouvé varie globalement entre 1^E-6 et 5^E-6 m^{-1} ,
- sa moyenne est de 2^E-6 m^{-1} , moyenne incluant l'ensemble des valeurs expérimentales ;

Ces résultats, approuvés par l'AIEA, doivent intervenir dans les prochains modèles officiels de calcul risque sanitaire lié à la contamination surfacique des transports de combustible usagé [4] et par extension dans les prochaines recommandations internationales sur ce sujet.

Références

- [1] IAEA (1961), Regulations for safe transport of radioactive materials : Notes on certain aspects of the regulation, IAEA Safety Series No7
- [2] ICRP Publication 66 (1994), Human respiratory tract model for radiological protection, Annals of the ICRP Vol.24 No 1-3
- [3] Fromentin, A. (1989), Particles resuspension from a multi-layer deposit by turbulent flow. Paul Scherrer Institut - Bericht Nr. 38
- [4] IAEA (2002) - Report of the modelling group (version 1.1), IAEA CRP Meeting, Williamsburg VA. (document de travail – publication restreinte aux membres du CRP - Co-ordinated Research Project on surface contamination for transport)

Modélisation de la dynamique des aérosols atmosphériques: Couplage à la Thermodynamique et insertion dans un modèle de dispersion

Debry Edouard, Sartelet Karine et Sportisse Bruno *
Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, CERREVE, Pôle Air

CFA02, 11-12 décembre 2002

RESUME Le rôle des aérosols dans la pollution atmosphérique et leur impact sur des sujets de préoccupation actuels tels que changement climatique ou santé publique rendent de plus en plus nécessaire l'insertion d'un modèle d'aérosols dans les modèles de dispersion 3D.

Tout d'abord, nous présentons le modèle 0D d'aérosols, les schémas numériques mis en oeuvre et leur couplage à la Thermodynamique. Puis nous exposons l'insertion du module 0D d'aérosol dans le modèle de dispersion 3D POLAIR ainsi que les premiers cas tests.

Ce travail s'effectue dans le cadre du projet PAM (Pollution Atmosphérique Multiphasique).

1 Modèle résolu d'aérosols

Equations La densité de concentration m_i ($q_i(m, t)$ en espèce X_i) dans les aérosols de masse m évolue localement en temps t selon l'équation de dynamique des aérosols multi composés ([1]) :

$$i = 1, \dots, n : \quad \frac{\partial q_i}{\partial t} = L_{\text{cong}}(q_i, q, m, t) + L_{\text{c/g}}^i(q_i, q, c_i(t) - c_i^s, m, t) \\ + \delta(m_0, m)L_{\text{nucl}}^i(t) + L_{\text{chim}}^i(q_1, \dots, q_n, t) \quad (1) \\ \triangleq \text{GDE}_i(q_1, \dots, q_n, c_i(t) - c_i^s, m, t)$$

où

- n est le nombre d'espèces physico-chimiques des aérosols,

$q = \sum_{i=1}^n q_i$ est la densité de concentration totale dans les aérosols,

* debry@maroc.cnpq.fr, sportisse@maroc.cnpq.fr

- L_{coag} est l'opérateur de coagulation,
- $L_{\text{c/e}}^i$ est l'opérateur de condensation/évaporation, proportionnel à la différence entre la concentration gazeuse en X_i loin de l'aérosol, c_i , et à sa surface, $c_i^s(q_1, \dots, q_n, i)$.
- L_{nucl}^i le terme de nucléation, où m_0 est la masse de nucléation des aérosols,
- L_{chim}^i la production de i par les réactions chimiques réversibles ou non dans l'aérosol.

Les Eqs. (1) sont couplées à la phase gaz par la c/e et la nucléation, les espèces X_i semi-volatiles vérifient localement (hors cinétique gazeuse) :

$$\frac{dc_i}{dt} = - \int_{m_0}^{\infty} L_{\text{c/e}}^i(q_i, q, c_i(t) - c_i^s, m, t) dm - L_{\text{nucl}}^i \quad (2)$$

Nous renvoyons à [2, 3] pour une présentation plus détaillée des Eqs. (1) ainsi que des différentes méthodes numériques ("size-bining", multimodal, stochastique, ...) employées.

Dans la suite nous présentons les deux méthodes numériques résolues en taille développées au CEREVE afin de résoudre de manière couplée la dynamique des aérosols multi-composés.

Résolution numérique La résolution des Eqs. (1) nécessite de discrétiser en taille d'aérosols m et en temps t . On obtient différents schémas suivant l'ordre de discrétisation :

- *Méthode spectrale* : les densités de concentration q_i sont approchées par leur polynôme d'interpolation de Lagrange en s points du spectre d'aérosols, on résout ensuite un système en temps d'ordre 1 :

$$i = 1, \dots, n, \quad \frac{d\vec{q}_i}{dt} = F^i(\vec{q}_i, \vec{q}, t), \quad \vec{q}_i = (q_i^1, \dots, q_i^s)^T \quad (3)$$

où \vec{q}_i est le vecteur des valeurs de la densité q_i aux points de discrétisation, et F^i un opérateur de taille $s \times s$. Les Eqs. (3) sont ensuite résolues en temps par un schéma de Rosenbrock.

- *Méthode de collocation* : les Eqs. (1) sont d'abord discrétisées en temps, la coagulation étant semi-implicite et la condensation/évaporation explicite, les densités q_i sont alors solutions des Eqs. de Volterra suivantes :

$$i = 1, \dots, n, \quad q_i(m) = g_i(m) + \int_{m_0}^{m} k(m, \tilde{m}) q_i(\tilde{m}) d\tilde{m} \quad (4)$$

où g_i et k sont deux fonctions obtenues d'après la discrétisation en temps. Les Eqs. (4) sont ensuite résolues par collocation en s points, les densités étant approchées sur chaque intervalle par des splines linéaires ou cubiques.

On démontre que ce dernier schéma est conservatif et défini positif.

Validation Ces algorithmes sont validés en multi-composé, à partir des solutions analytiques existantes pour la coagulation condensation couplées dans le cas mono-composé. Celles-ci peuvent en effet être étendues au cas multi-composé pourvu que les noyaux de c/e des différentes espèces soient dans le même rapport, noté α_i , que leur conditions initiales. Les solutions analytiques q_i^{th} se déduisent alors simplement de la solution mono-composé par $q_i^{th} = \alpha_i q^{th}$.

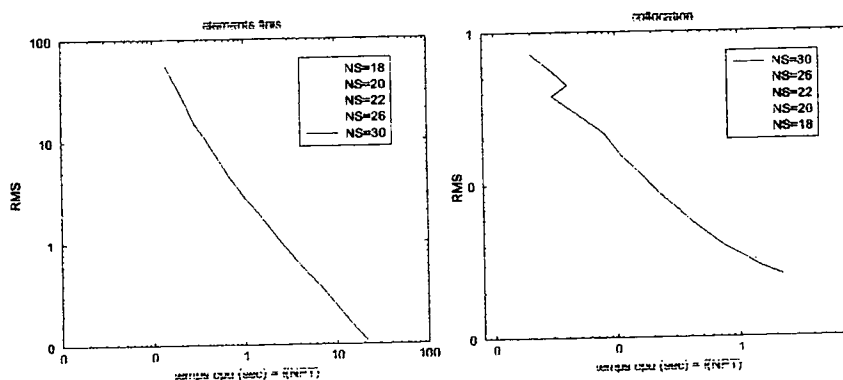


FIG. 1 – Erreur quadratique moyenne suivant le temps CPU pour différents nombre d'intervalles NS

Ces premiers tests montrent que pour une erreur quadratique moyenne donné, e.g. 0.5, la méthode de collocation est la plus performante.

Couplage à un module de Thermodynamique La concentration en espèce semi-volatile X_i à la surface de l'aérosol, $c_i^s(q_1, \dots, q_n, t)$, dépend de la taille de l'aérosol via sa composition (q_1, \dots, q_n) , et évolue vers une valeur d'équilibre pilotée par la Thermodynamique (e.g. loi de Henry). Cette évolution ($\sim 10^{-5}s$) est beaucoup plus rapide que l'échelle de temps ($\sim 1s$) à laquelle on souhaite résoudre la dynamique.

Aussi cette concentration est-elle remplacée par sa valeur d'équilibre c_i^{eq} , calculée au moyen d'un module de Thermodynamique (ISORROPIA [4]).

Le module de Thermodynamique calcule également la composition interne de l'aérosol en espèces dissoutes, ioniques ou solides. Cet équilibre étant de même très rapide, on "lump" la chimie interne inorganique de l'aérosol.

Une première réduction des Eqs. (1) consiste alors à regrouper les espèces X_i par famille, par exemple la famille des sulfates :

$$q_{SO_4} = q_{H_2SO_4} + q_{HSO_4^-} + q_{SO_4^{2-}} + \dots \quad (5)$$

Cette densité rassemble toutes les formes de sulfates dans l'aérosol : dissous,

ionique ou solide (...). Elle est donc laissée invariante par l'opérateur de chimie L_{chim}^s qui conserve la masse en chaque élément. L'opérateur de chimie disparaît donc dans l'Eq. de q_{SO_4} , sauf si l'on tient compte de réactions irréversibles, plus lentes.

Une deuxième réduction vient de la mise à l'équilibre de l'eau entre la phase gaz et aérosols. En effet du fait de sa relative abondance, le flux d'eau entre phase est beaucoup plus rapide que pour les autres espèces et le contenu en eau de l'aérosol est donc à chaque instant celui de l'équilibre.

On ne résoud donc pas d'Eq. (1) pour la densité q_{H_2O} . Il apparaît alors plus commode d'utiliser la masse sèche (i.e. sans le contenu en eau) de l'aérosol au lieu de sa masse totale. La taille m de l'aérosol désigne dorénavant sa masse sèche. Le contenu en eau est généralement approché par la relation ZSR.

2 Insertion dans un code 3D

Le code de dispersion 3D dans lequel on souhaite insérer le module d'aérosols est le code POLAIR ([5]). La concentration gazeuse en X_i évolue maintenant en espace x selon l'équation de dispersion suivante :

$$\frac{dX_i}{dt}(\vec{x}, t) = L_{advect}(c_i) + L_{diff}(c_i) + L_{chim}^g(c_i) \quad (6)$$

Cette équation prend en compte les différents processus d'advection par les champs de vent, de diffusion turbulente et de production chimique.

Les différents champs de variables météo sont des entrées du modèle (off-line). Les méthodes numériques pour chaque processus sont détaillées dans [6]. POLAIR a été validé par comparaison aux données de la seconde période intensive d'observation ESQUIF ([7]).

Les densités d'aérosols dépendent maintenant de l'espace x :

$$\frac{\partial q_i}{\partial t}(m, \mathbf{x}, t) = L_{adv}(q_i, \mathbf{x}, t) + L_{diff}(q_i, \mathbf{x}, t) + GDE_i(q_i, q, c_i - c_i^{eq}, m, \mathbf{x}, t) \quad (7)$$

où GDE_i est le terme source dû à la dynamique locale des aérosols (Eqs. 1).

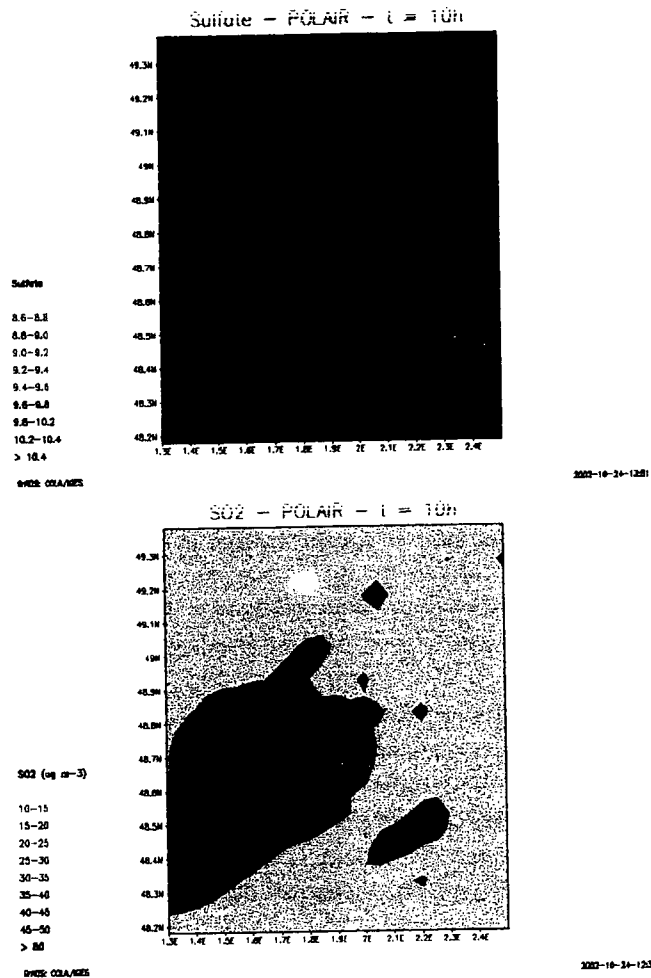
Les valeurs q_i^k de chaque densité aux s points de discrétisation sont advectées et diffusées au même titre que les concentrations gazeuses. Le terme source GDE_i , quant à lui, est résolu dans chaque maille du domaine 3D par les méthodes numériques 0D précédentes.

Il faut rajouter à l'Eq. de transport (6) le terme source (2) dû aux aérosols. La chimie gazeuse et le terme source des aérosols sont splittés. Les émissions et dépôts d'aérosols sont traitées comme des conditions aux limites au sol.

Premier cas test Une première expérience ([8]) a été menée avec un modèle d'aérosols bimodal développé au CERREVE. La durée du test est de 3 jours, le pas de temps pris est $dt = 100$ sec, le schéma chimique gazeux utilisé est MOCA, la condition initiale d'aérosols est une densité bimodale composée de 95% sulfate et 5% nitrate.

La résolution se fait de manière couplée avec les processus de coagulation, c/e et nucléation. Les émissions et dépôts ne sont actuellement pas pris en compte, du fait d'un manque d'inventaire.

On présente l'évolution spatiale au sol à $t = 10$ h de la concentration en sulfate dans les aérosols et de la concentration gazeuse en SO_2 . On remarque



que la concentration en sulfate dans les aérosols est assez logiquement corrélée à celle du SO_2 dans le gaz.

Conclusion

Nous disposons donc aujourd'hui de plusieurs modèles d'aérosols inorganiques de type modal ou résolus en taille, ainsi que d'une première expérience 3D d'aérosols.

Nous souhaitons dans la suite compléter nos modèles résolus avec la partie organique des aérosols (SOA) et insérer les modèles résolus dans POLAIR3D.

Une validation du modèle 3D d'aérosols est prévue par comparaison à la mesure dans le cadre du projet PAM (campagne de mesures sur Paris).

Références

- [1] C. Filinis. Derivation and numerical solution of the species mass distribution equations for multicomponent particulate systems. *Atmospheric Environment*, 24A(7) :1923–1928, 1990.
- [2] E. Debry and B. Sportisse. Modélisation de la dynamique des aérosols atmosphériques : un point sur la simulation numérique. In *Actes du 17^{ème} congrès de l'ASFERA.*, pages 74–80, Décembre 2001. Revue Pollution Atmosphérique. Numero 174, avril 2002, page 215.
- [3] E. Debry, B. Jourdain, and B. Sportisse. A stochastic approach for the numerical simulation of the general dynamics equation for aerosols. *Journal of computational Physics*, 2002. Accepted for publication.
- [4] A. Nenes, S.N. Pandis, and C. Filinis. Isorropia : A new thermodynamic equilibrium model for multicomponent inorganic aerosols. *Aquatic geochemistry*, 1 :123–152, 1998.
- [5] K.N. Sartelet, J. Boutahar, D. Quélo, I. Coll, P. Plion, and B. Sportisse. Development and validation of a 3d chemistry transport model, polair3d, by comparison with data from esquif campaign. In *Proceedings of the 6th Gloream workshop : Global and regional atmospheric modelling*. Aveiro, Portugal. P140–146., 2002.
- [6] B. Sportisse, J. Boutahar, E. Debry, D. Quélo, and K. Sartelet. Some tracks in air pollution modeling. *RACSAM*, 96(3), novembre 2002. In revision for RACSAM (Journal of the Spanish Science Academy, Real Academia de Ciencias de España), Preprint CEREVE 2002-4.
- [7] K. Sartelet, J. Boutahar, D. Quélo, I. Coll, P. Plion, and B. Sportisse. Validation of polair3d on the campaign of measurements esquif. Technical report, ENPC, 2002.
- [8] K.N. Sartelet, A. Aarhøim, and B. Sportisse. Modal models of atmospheric aerosols. Technical report, ENPC, 2002.

ETUDE DES RESONANCES MORPHOLOGIQUEMENT DEPENDANTES

J. Ducastel*, L. Méès, G. Gréhan, G. Gouesbet
LESP, UMR 6614/CORIA,
Site Universitaire du Madrillet
Avenue de l'université BP 12
76 801 Saint Etienne du Rouvray Cedex
ducastel@coria.fr

Les méthodes de mesures optiques, non-intrusives, occupent aujourd'hui une place primordiale en métrologie. Les approches classiques (PDA, réfractométrie d'arc-en-ciel) reposent sur des longueurs de traversée de gouttes de l'ordre du diamètre de celles-ci, trop courtes pour traiter avec précision le cas de petites particules (typiquement inférieures à 40µm). A l'opposé, les résonances morphologiquement dépendantes, également appelées MDRs, sont la manifestation de photons réalisant un grand nombre d'orbites dans la particule étudiée. Elles offrent ainsi la possibilité de franchir une nouvelle étape vers des échelles plus petites en étendant la gamme d'étude à des particules dont la taille est de l'ordre de quelques micromètres, et ce avec une précision telle que la mesure du taux d'évaporation est envisageable. Les MDRs pourront également fournir une information sur l'indice de réfraction des particules sphériques (caractéristique de la composition et de la température), mais aussi sur l'existence d'un gradient d'indice ou d'un éventuel écart à la sphéricité.

La théorie de Lorenz-Mie généralisée (TLMG) décrit parfaitement le comportement des MDRs. Néanmoins, la complexité des expressions utilisées rend très délicate et très coûteuse en temps de calcul son utilisation pour la caractérisation des particules. En 1992, C.C.Lam *et al* [1] proposent d'outrepasser le formalisme de la diffusion de Mie au moyen de formules asymptotiques relativement « simples » issues de cette dernière. Leur approche est originale en ce sens qu'elles vont directement au cœur des MDRs en capturant leurs caractéristiques principales (position, largeur, écart ...).

L'objectif de nos travaux est triple. Il s'agit tout d'abord de comprendre et de maîtriser le comportement des MDRs, condition nécessaire à leur utilisation en métrologie. Il s'agit ensuite de quantifier les erreurs commises par les formules asymptotiques et de définir leur domaine de validité. Ces deux premières étapes vont permettre de mettre au point une stratégie d'utilisation lors d'un travail d'inversion.

INTRODUCTION

Les résonances morphologiquement dépendantes peuvent être considérées comme une sorte d'empreinte de la particule étudiée. Leur mesure expérimentale laisse donc envisager la possibilité de reconnaître les caractéristiques principales de la particule par un travail d'inversion.

D'un point de vue historique, les MDRs ont été mises en évidence pour la première fois en 1977 lors d'expériences de lévitation optique menées par Ashkin et Dziedzic. Ils ont alors observé, au fur et à mesure que la goutte en suspension s'évaporaient, que la puissance laser nécessaire à la lévitation subissait de fortes décroissances très localisées. Ceci correspondait en fait à la « traversée » d'une résonance.

La présentation de nos travaux s'organise de la façon suivante. Un premier chapitre est consacré à la compréhension de la physique des MDRs. Une seconde partie va présenter une étude générale de leur comportement. Enfin, nous nous attacherons à définir une première stratégie d'utilisation et à présenter nos premiers résultats. L'objectif avoué est de mettre au point une méthode suffisamment automatique pour être applicable dans des expériences classiques de métrologie.

LE CONCEPT DE MDR

On considère une onde circulant dans une particule de forme sphérique au-delà de l'angle limite de réfraction (fig.1). Elle subit alors des réflexions totales au sens de l'optique géométrique. Elle est ainsi piégée à l'intérieur de la particule, les pertes se produisant uniquement par diffraction. Parmi les différents trajets possibles, certains se referment et sont multiples d'une longueur d'onde. On parle alors de résonances morphologiquement dépendantes. Plusieurs milliers d'orbites peuvent être réalisées par une même onde, ce nombre étant limité par les fuites diffractives, l'absorption du milieu ainsi que par l'apparition progressive d'un déphasage (essentiellement responsable de l'intensité décroissante de la résonance lorsque l'on s'éloigne de son sommet (fig.2)). En général, la qualité d'une MDR (intensité, faible largeur spectrale) est directement liée au nombre d'orbites réalisées. On définit le facteur de qualité comme étant le rapport de l'énergie piégée sur l'énergie perdue sur une orbite. Si l'on considère une sphère de taille différente (fig.1), l'accord de phase devant être conservé, la résonance décrite précédemment se produira pour une longueur d'onde adaptée au nouveau trajet. La position spectrale d'une MDR est donc fonction de la particule étudiée. Elle peut ainsi être considérée comme une sorte de signature.

Nous travaillons avec un paramètre adimensionnel, le paramètre de taille : $x = \frac{2\pi r}{\lambda}$

L'énergie piégée peut directement provenir d'un faisceau incident (interaction élastique). Dans ce cas, l'optique géométrique prévoit une réfraction selon une direction comprise entre la normale à la surface

et l'angle limite (pour des rayons incidents allant du centre au bord de la particule). L'approche ondulatoire met en évidence l'apparition d'ondes couplées diffractivement et dépassant cette limite c'est-à-dire voyageant au-delà de l'angle limite de réfraction. Ces ondes peuvent donc subir des réflexions totales au sens de l'optique géométrique, autrement dit, elles ne peuvent fuir que par effets ondulatoires. Les MDRs peuvent également être observées sur des spectres de fluorescence. L'énergie émise lors de la désexcitation d'un atome n'a pas de direction privilégiée. Les trajets décrits précédemment ne sont donc pas exclus.

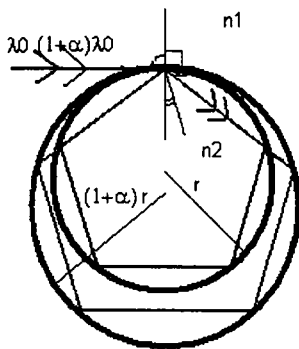


Fig 1 : Schéma de principe d'une MDR
Cas d'un rayon incident rasant

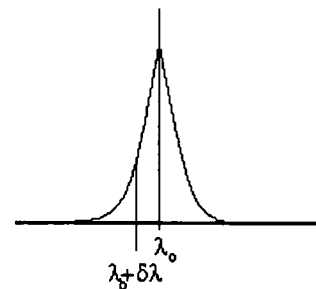


Fig 2 : Pic de résonance

La nomenclature des MDRs repose sur quatre termes. Les résonances sont soit transversales électriques (TE), soit transversales magnétiques (TM), selon la polarisation. Elles sont ensuite décrites par trois indices. Le premier, souvent noté l , correspond au mode angulaire, égal au nombre d'oscillations visibles sur une demi-circonférence (fig.3) en champ interne. Le second, généralement noté i , est l'ordre de la résonance, c'est-à-dire le nombre de lobes le long d'un rayon. Le troisième est le mode azimutal (noté m). Pour une sphère parfaite, chaque mode m est $(2l+1)$ fois dégénéré. En théorie de Lorenz-Mie généralisée, le mode angulaire est associé aux fonctions de Legendre variant avec l'angle θ , tandis que l'ordre fait intervenir les fonctions de Bessel dont la variable est le rayon.

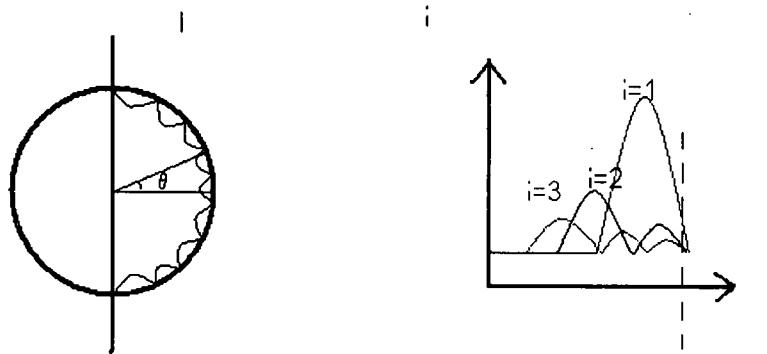


Fig 3 : Mode et ordre d'une MDR

Ces fonctions pondèrent des coefficients a_n et b_n en champ diffusé (respectivement c_n et d_n en champ interne), appelés coefficients de Mie. La traversée d'une résonance correspond à l'apparition d'un terme dominant (b_n et d_n pour une résonance TE, a_n et c_n pour une résonance TM), dont l'indice correspond au mode angulaire. La figure 4 présente la contribution du terme c_{57} dans le champ interne d'une sphère d'eau. Le calcul de l'intensité n'a pas de réel sens physique puisqu'il ne peut être fait qu'après la prise en compte de tous les termes. Il apparaît ici pour illustrer nos propos. Nous sommes en présence d'une résonance de mode 57 et d'ordre 5. Nous observons bien cinq maxima le long d'un rayon et 57 lobes sur une demi-circonférence.

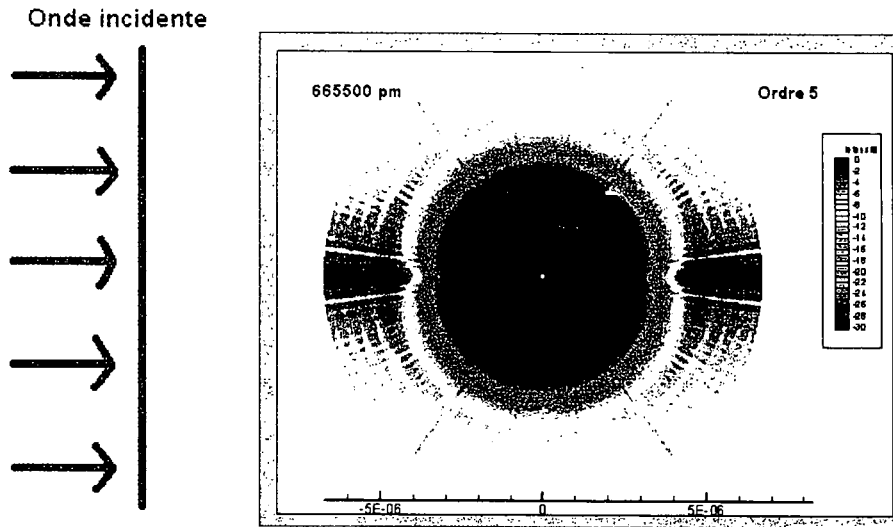


Fig 4 : Comportement du terme c_{57} à 655,5nm pour une sphère d'eau (indice de réfraction 1,33) de diamètre $13,5\mu\text{m}$

ETUDE DES MDRS

La TLMG propose de régler le problème de diffusion par séparation des variables de l'équation d'onde. Elle résout les équations de Maxwell ou plutôt des équations différentielles associées dans un système de coordonnées adapté à la géométrie de la particule. La solution générale pour des champs internes est de la forme :

$$E = E_0 \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^{+n} [g_{n, TM}^m \xi_n'(kr) c_n \tau_n(\cos\vartheta) + g_{n, TE}^m \xi_n(kr) d_n \pi_n(\cos\vartheta)] e^{im\varphi}$$

Nous reconnaissons bien les termes décrits précédemment, c_n et d_n étant les coefficients de Mie, ξ_n et ξ_n' les fonctions sphériques de Bessel et leurs dérivées, τ_n et π_n des fonctions de Legendre.

$g_{n, TM}^m$ et $g_{n, TE}^m$ sont des coefficients appelés coefficients de forme du faisceau. Nous remarquons la complexité des expressions sommatoires, ce qui rend leur utilisation délicate et coûteuse en temps de calcul pour la réalisation d'un travail inverse. En 1992, C.C.Lam *et al* [1] ont proposé des formules asymptotiques issues de la TLM dont l'originalité vient du fait qu'elles vont directement capturer les caractéristiques principales d'une MDR tout en les identifiant. Nous présentons ici deux formules :

Position des pics :

$$nx_{i,i} = v + 2^{-1/3} \alpha_i v^{1/3} - \frac{P}{(n^2 - 1)^{1/2}} + \frac{3}{10} 2^{-2/3} \alpha_i^2 v^{-1/3} - \frac{2^{-1/3} P(n^2 - 2P^2/3)}{(n^2 - 1)^{3/2}} \alpha_i v^{-2/3} + O(v^{-1})$$

n est l'indice réel de la sphère, α_i la i -ème racine de la fonction de Airy $\text{Ai}(-z)$, v défini tel que $v = l + 0.5$, et P un paramètre prenant deux valeurs : $P = n$ en mode TE et $P = 1/n$ en mode TM.

Largeur des pics :

$$\Gamma_{i,i} = \frac{2}{Nx^2 n_i(x)^2}$$

n_i est la fonction sphérique de Neumann.

x est pris au centre du pic.

N est un paramètre qui, comme P , prend deux valeurs :

$N = n^2 - 1$ en mode TE et $N = (n^2 - 1)[\mu^2 + \mu^2/(n^2 - 1)]$ en mode TM, avec $\mu = v/x$.

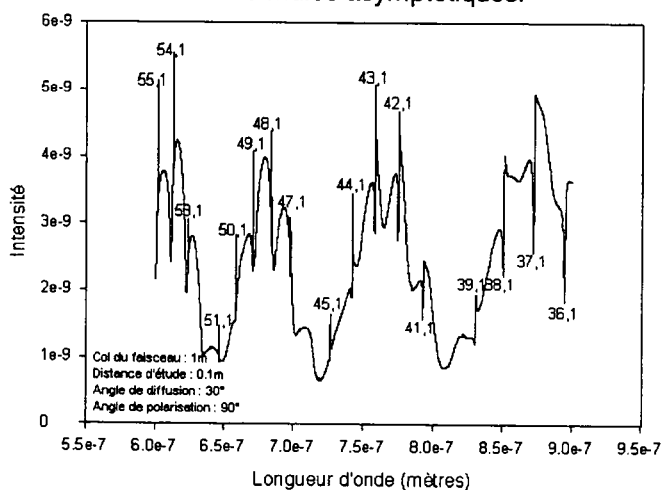
Nous avons effectué quelques calculs afin d'observer le comportement des MDRs. Par souci de clarté, nous ne présentons que les conclusions tirées. Il apparaît que la position des MDRs dans le domaine des paramètres de taille croît avec le mode. Leur largeur est d'autant plus grande que ce dernier est faible ou que l'ordre de la résonance est élevé. Les ordres sur lesquels nous travaillerons seront judicieusement choisis en fonction de la gamme de paramètres de taille considérée, les résonances les plus larges étant d'intensité trop faible et les plus fines étant associées à une énergie

trop petite pour être détectées. Rappelons qu'un spectromètre réalise un travail de détection par intégration de l'énergie qu'il reçoit sur une fenêtre spectrale. Sa largeur est fonction de la sensibilité. Nous avons réalisé un calcul de l'erreur commise par les formules asymptotiques. Elle est très faible pour les MDRs qui nous intéressent. Nous présentons ci-après quelques résultats.

	Théorie de Mie	Résultat asymptotique	Erreur relative
TE			
X _{50,1}	38.194757	38.2037790	0,024%
X _{51,1}	38.905705	38.9144273	0,022%
X _{52,1}	39.616241	39.6246814	0,021%
X _{53,1}	40.326381	40.3345538	0,020%
X _{46,2}	39.052	39.0945965	0,11%
X _{47,2}	39.788	39.8291750	0,10%
X _{49,2}	41.259	41.2961348	0,090%
X _{51,2}	42.7262	42.7603262	0,080%
X _{53,2}	44.1903	44.2219248	0,072%
X _{45,3}	41.45	41.5650405	0,28%
X _{46,3}	42.21	42.3176302	0,26%
X _{47,3}	42.96	43.0692419	0,26%
X _{48,3}	43.71	43.8199086	0,25%
X _{49,3}	44.47	44.5696616	0,22%
TM			
X _{50,1}	38.663506	38.6875215	0,062%
X _{51,1}	39.375079	39.3983629	0,059%
X _{50,2}	42.412	42.5011793	0,21%
X _{51,2}	43.1474	43.2332780	0,20%

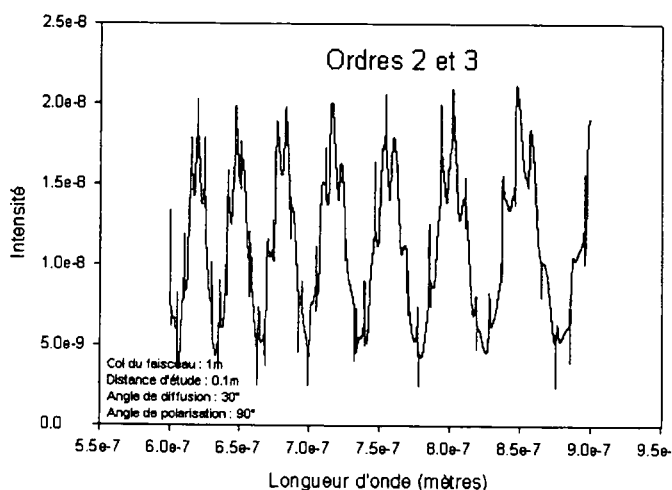
Le nombre de chiffres significatifs croît avec la nécessité de situer avec précision les résonances les plus fines.

Observons à présent les champs lointains diffusés de deux sphères d'indice de réfraction 1,3 et de rayons 4,5µm et 10µm. Le champ a été calculé à partir de la TLMG et les résonances identifiées à l'aide des formules asymptotiques.



CHAMP DIFFUSE (RESONANCES TE)

Fig 5 : Sphère d'indice 1,3 et de rayon 4,5µm



CHAMP DIFFUSE (RESONANCES TE)

Fig 6 : Sphère d'indice 1,3 et de rayon 10µm

L'espace entre deux modes successifs (du même ordre) apparaît comme étant fonction de la taille de la particule étudiée et il ne présente pas de saut lorsque l'on franchit un ordre sur un même domaine spectral. Nous n'avons pris ici que deux exemples, mais ceci se généralise. On peut donc penser que sa seule mesure peut permettre de remonter à la connaissance de la taille de la particule sphérique.

UTILISATION DES MDRS

A partir des observations précédemment réalisées, nous avons écrit un premier algorithme utilisant pour seules données l'indice réel de réfraction ainsi que la position de deux des résonances observées en champ diffusé. Le programme se déroule en deux étapes. La première consiste à utiliser les formules asymptotiques afin de déterminer la gamme de pics potentiellement candidats. Une fois ce travail fait, l'algorithme fait intervenir les coefficients de Mie pour l'obtention d'un résultat beaucoup plus fin. Leur intervention directe est cette fois-ci rendue possible par l'utilisation préalable

des formules asymptotiques pour identifier et avoir une première estimation de la position des MDRs. Nous présentons ci-après nos résultats pour deux exemples. Les champs ont été calculés à partir de la TLMG et les pics identifiés par les formules asymptotiques. Cette identification est bien sûr inutile pour notre algorithme dont le but est de traiter des résultats expérimentaux. Elle va cependant permettre de valider son fonctionnement.

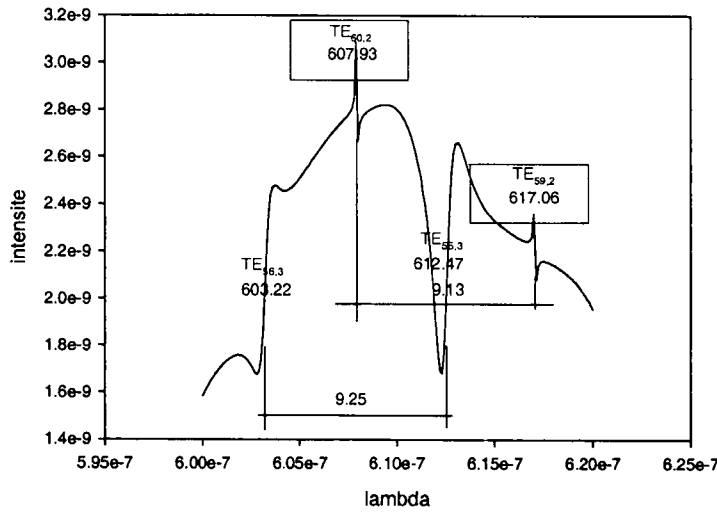


Fig 7 : Champ diffusé lointain calculé pour une sphère de $10\mu\text{m}$ et d'indice 1,4

Nous traitons ici le cas d'une sphère de $10\mu\text{m}$. Nous travaillons sur les ordres 2, les ordres 3 étant trop larges pour être exploitables. Notons que l'algorithme utilise la largeur des pics comme critère pour le choix de l'ordre. Les formules asymptotiques identifient les MDRs $TE_{59,2}$ et $TE_{60,2}$ et elles calculent un diamètre de $10,008\mu\text{m}$ (erreur 0,08%). Pour cette taille, la première étape de calcul donne donc déjà un résultat très précis. La seconde étape l'affine encore en estimant cette fois la valeur du diamètre à $9,99997\mu\text{m}$ (erreur 0,0003%).

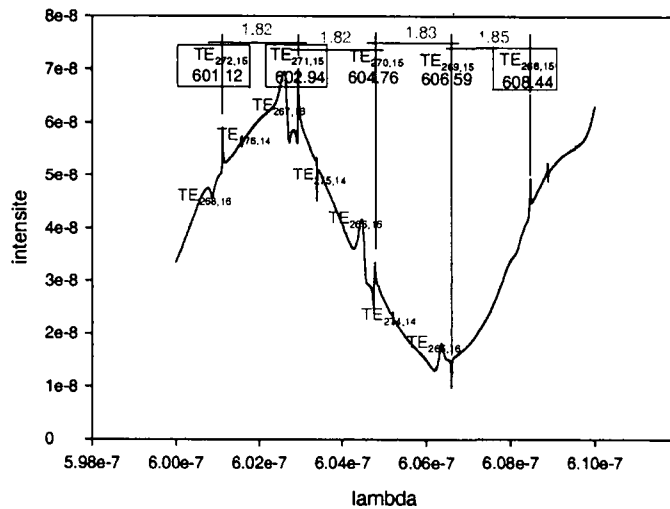


Fig 8 : Champ diffusé lointain calculé pour une sphère de $50\mu\text{m}$ et d'indice 1,4

Nous testons maintenant l'algorithme avec une sphère plus grosse de $50\mu\text{m}$. Nous travaillons avec les ordres 15 (les ordres 16 sont trop larges et les ordres 14 trop fins pour être visibles en conditions expérimentales). Outre l'indice de réfraction, nous entrons comme positions celles des pics $TE_{271,15}$ et $TE_{272,15}$. Les formules asymptotiques identifient comme premiers candidats potentiels les pics $TE_{264,15}$ et $TE_{265,15}$ et calculent un diamètre de $48,98\mu\text{m}$ (erreur 2,0%). Nous obtenons un résultat semblable en ajoutant les coefficients de Mie. L'algorithme identifie les pics $TE_{267,15}$ et $TE_{268,15}$ avec un diamètre de $49,40\mu\text{m}$ (erreur 1,2%). L'incertitude est cette fois-ci beaucoup plus grande. Ceci s'explique par le fait que les pics sont beaucoup plus rapprochés. L'évolution de la distance entre les modes successifs est également plus faible (pour une sensibilité de l'ordre de l'Angström). Le choix de pics plus espacés peut donc sembler pertinent, une erreur du mode engendrant alors un écart plus significatif. Nous avons relancé le calcul avec les pics $TE_{268,15}$ et $TE_{272,15}$, en précisant que 3 MDRs les séparent. Les formules asymptotiques identifient maintenant comme premiers candidats les MDRs $TE_{266,15}$ et

$TE_{270,15}$ et calculent un diamètre de $49,73\mu\text{m}$ (erreur 0,5%). Avec les coefficients de Mie, l'identification des MDRs est correcte et l'algorithme reconnaît un diamètre de $50,0005\mu\text{m}$ (erreur 0,001%).

Sensibilité des MDRs à une variation de taille :

La première propriété des MDRs est qu'elles mettent en jeu des longueurs de parcours très importantes. Ainsi, une faible modification de la taille de la particule (citons le cas de l'évaporation) va engendrer un déplacement des résonances mesurable dans le domaine spectral. Nous illustrons nos propos par l'observation des cartes de résonances à partir des formules asymptotiques pour trois tailles de sphères dans la fenêtre [625nm ; 650nm]. Les variations de tailles représentent respectivement 1% et 2,5% du diamètre initial. Le shift des résonances en longueur d'onde, égal à la variation relative du diamètre, est très visible.

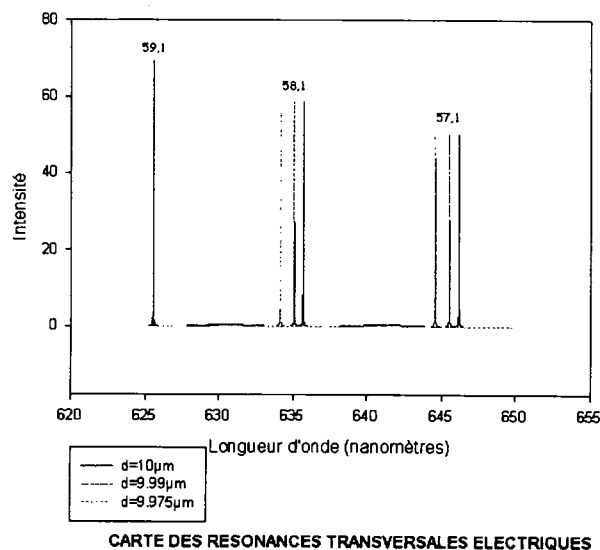


Fig 9 : Les MDRs face à une variation de taille (indice de réfraction 1,3)

En 1996, R.K. Chang *et al* [2] ont appliqué ce principe à la mesure de l'évolution du taux d'évaporation dans un train de gouttes. Ils ont atteint une sensibilité de 1nm pour des gouttes de $40\mu\text{m}$ de rayon.

CONCLUSION

Les résonances morphologiquement dépendantes apparaissent comme étant le moyen de franchir une nouvelle étape vers des échelles de travail plus petites. La mise au point d'une mesure automatique constitue notre but. Notre travail immédiat est de traiter l'aspect expérimental par la mesure de résonances apparaissant sur un spectre de fluorescence. L'étape suivante consistera à mesurer l'indice de réfraction de la particule puis à mettre en évidence l'existence d'un gradient d'indice. Enfin, nous essaierons de prendre en compte l'existence d'un écart à la sphéricité. Dans ce cas, les m modes dégénérés pour la sphère parfaite se divisent en $(2l+1)$ modes non dégénérés, chacun correspondant à la description d'une ellipse inclinée d'un angle θ . Si la dégénérescence n'est pas spectralement résolue, chaque MDR apparaît élargie.

REFERENCES

- [1] C.C.LAM, P.T.LEUNG, K.YOUNG. *Explicit asymptotic formulas for the positions, widths, and strengths of resonances in Mie scattering*. J. Opt Soc. Am. B Vol. 9, No.9 / 1992.
- [2] J.C.SWINDAL, G.CHEN, K. SCHESCHAK, R.K.CHANG, T.JACKSON. *Measurement of the evaporation rates of closely spaced flowing droplets by optical cavity resonances*. Atomization and Sprays, vol.6, 1996.

FILTRATION D'AEROSOL SUBMICRONIQUE PAR COAGULATION BIPOLAIRE

L. UNGER*, P. EHOARN et J.-P. BORRA

Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas, UMR 8578.
Equipe Décharges Electriques et Environnement,
Ecole Supélec, Plateau de Moulon, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

INTRODUCTION

La filtration d'effluents particulaires implique de séparer les particules du fluide porteur. Les méthodes de filtration diffèrent essentiellement par la nature des forces utilisées pour réaliser cette séparation. Quelle que soit la méthode, il existe une taille de particules pour laquelle l'efficacité est minimale (elle se situe pour la plupart des mécanismes entre $0.1\mu\text{m}$ et $1\mu\text{m}$). Si les particules sont chargées électriquement, la force électrique coulombienne est une force efficace pour réaliser la séparation particules-fluide, surtout dans le domaine de taille submicronique.

La coagulation bipolaire est le processus de captation - sous l'effet des forces électriques coulombiennes - de particules polluantes chargées par des particules collectrices chargées de la polarité opposée. Le manque de données expérimentales sur la coagulation bipolaire est une des limites à la compréhension de ce processus, par ailleurs identifié comme permettant de filtrer efficacement les particules polluantes. L'utilisation d'un système original de production de gouttes d'eau fortement chargées (Pulvérisation Electro-HydroDynamique), et la caractérisation précise des populations de particules mises en présence, permettent d'envisager l'amélioration de l'efficacité de ce type de procédé, ainsi que l'étude plus précise du processus de coagulation. Dans ce but, un filtre électrostatique a été conçu et testé (débits de gaz traités de l'ordre de 20 L/min , concentration de polluants de l'ordre de 10^5 p.cm^{-3}). Le principe de ce filtre est de (i) charger électriquement les polluants par décharge électrique (ii) produire des collecteurs liquides chargés électriquement de la polarité opposée et (iii) mélanger les deux populations dans des conditions permettant la captation des polluants sur les collecteurs liquides.

MONTAGE EXPERIMENTAL & METHODES DE CARACTERISATION

1. montage général

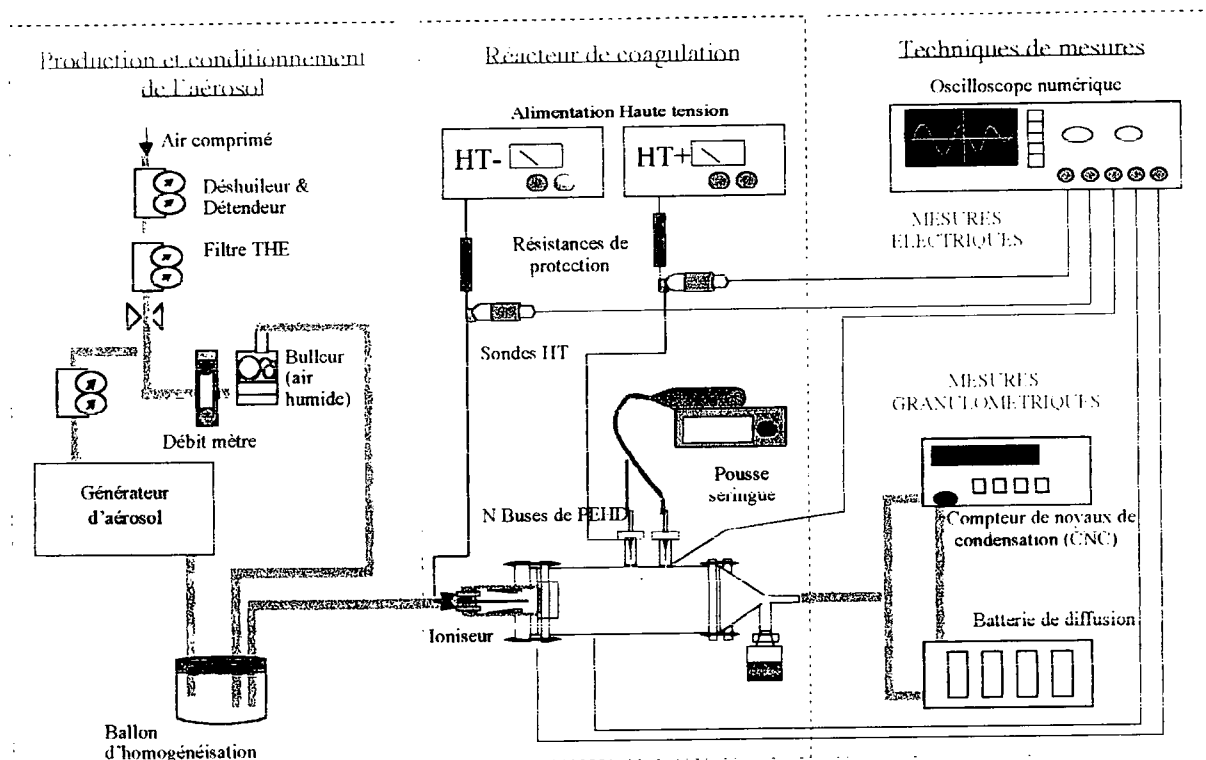


Figure 1 : Schéma du montage expérimental

Le montage expérimental est découpé en plusieurs parties : (i) production de l'aérosol neutre, (ii) charge de l'aérosol neutre dans une décharge électrique de polarité négative, (iii) production de gouttelettes collectrices d'eau chargées positivement, (iv) injection des polluants dans le réacteur de coagulation (zone où sont produites les gouttes d'eau), (v) caractérisation du laveur par la mesure de la concentration de polluant à différents niveaux.

2. Production de l'aérosol neutre

L'aérosol neutre de départ est produit à l'aide d'un générateur Sinclair-Lamer (production de gouttelettes de DiEthylHexylSebaçat par condensation hétérogène). Cet aérosol est unimodal, monodispersé, et le diamètre des particules varie entre $0.44\mu\text{m}$ et $1.13\mu\text{m}$ dans cette étude. Cet aérosol est mélangé avec un débit d'air dont l'humidité est contrôlée et est nécessaire au bon contrôle du fonctionnement de la décharge.

3. Charge des particules polluantes

Le chargeur utilisé est une décharge électrique à pression atmosphérique (décharge couronne ou glow), dans lequel le polluant neutre est injecté et chargé. La décharge électrique est produite en appliquant une différence de potentiel entre un fil et un cylindre, grâce à une alimentation haute tension. Le fil est polarisé, et le cylindre de masse est utilisé pour collecter le courant électrique du aux ions gazeux créés dans l'espace inter électrodes. Le contrôle du régime de décharge est essentiel pour maîtriser le niveau de charge acquis par les particules pendant leur passage dans la décharge (qui dépend du diamètre des particules, du champ électrique E dans l'espace inter électrodes et du produit $Ni \times \tau$ de la densité d'ions gazeux par le temps passé par les particules dans cette densité d'ions).

Ce chargeur a été caractérisé (cf. Unger *et al.* 2001), ce qui permet de connaître précisément le niveau de charge et la concentration des particules polluantes qui sont injectées dans le coagulateur. Les niveaux de charge obtenus dans ce chargeur sont cohérents avec ceux donnés par la loi de charge par champ lorsque les particules polluantes sont sphériques, ce qui est le cas ici. La Figure 2 montre le schéma du chargeur utilisé.

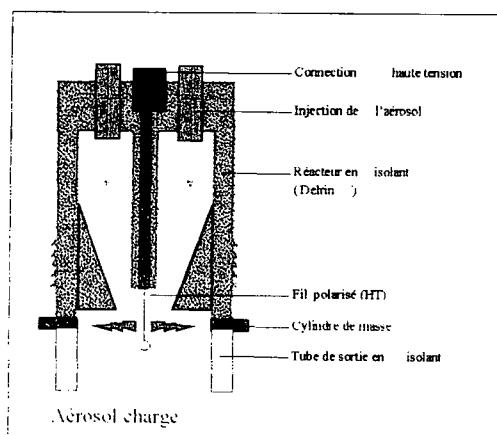


Figure 2 : Schéma du chargeur par décharge couronne

4. Production des collecteurs liquides par Pulvérisation Electro-Hydrodynamique

Le procédé de production des particules collectrices d'eau utilisé est la pulvérisation électrohydrodynamique (Ehouarn *et al.* 1999). Une buse alimentée en eau, et polarisée à la haute-tension, permet de produire un cône de liquide qui se fragmente en un spray de gouttelettes chargées. Ce procédé permet d'obtenir des gouttelettes dont la taille est, dans nos conditions, de l'ordre de $100\mu\text{m}$ et dont la charge électrique est très élevée ($\approx 50\%$ de la charge limite de Rayleigh, soit de l'ordre de $25 \cdot 10^6$ charges par goutte). L'intérêt de ce système pour la coagulation électrique est donc de disposer de collecteurs liquides très fortement chargés, de taille contrôlée. Par ailleurs, les débits d'eau utilisés sont faibles (de l'ordre de 100mL/h par buse), ce qui est un atout important en termes d'application du procédé. La Figure 3 montre le schéma de principe du système de pulvérisation électrohydrodynamique.

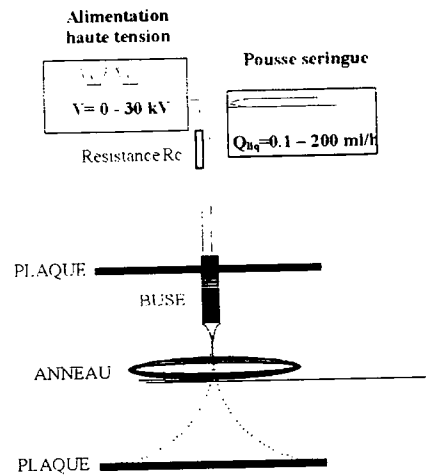


Figure 3 : Schéma du système de pulvérisation électro-hydrodynamique

Des mesures tant granulométriques (à l'aide d'un PDA) qu'électriques (mesures de courants) ont permis de caractériser précisément les gouttelettes produites par ce procédé.

5. Réacteur de coagulation - Méthodes de mesure

Afin de mélanger les polluants chargés négativement avec les collecteurs liquides chargés positivement, plusieurs sprays sont mis en place dans un réacteur de géométrie cylindrique, et les polluants sont injectés dans cette zone le long de l'axe du cylindre.

Les deux systèmes de production (chargeur par décharge d'une part, et buses de PEHD d'autre part) ont déjà été calibrés dans les études précédentes. Les caractéristiques physiques (diamètre, charge, concentration) des polluants que l'on injecte dans le réacteur de coagulation sont donc connues, ainsi que celles des gouttes collectrices.

La détermination de l'efficacité de coagulation implique de caractériser les concentrations de polluants à tous les niveaux du système : amont et aval du chargeur, amont et aval des buses de coagulation.

Les concentrations aux différents niveaux sont appelées comme suit :

- C_0 est la concentration de particules à l'entrée du système
- C_1^{off} est la concentration de particules en sortie de chargeur lorsque celui-ci est éteint (la différence entre C_1^{off} et C_0 permet d'estimer les pertes par impaction, interception et diffusion dans le chargeur)
- C_1 est la concentration de particules en sortie de chargeur, lorsque celui-ci fonctionne
- C_1^+ est la concentration de particules en sortie de chargeur lorsque les buses fonctionnent (en effet, la charge d'espace positive des sprays crée un champ électrique qui attire les polluants chargés négativement, et C_1^+ est donc différent de C_1)
- C_2 est la concentration de particules en sortie de réacteur (après passage des polluants dans les sprays d'eau) lorsque le chargeur est éteint (injection de polluants neutre dans le réacteur)
- C_{lavage} est la concentration de particules en sortie de réacteur lorsque le chargeur fonctionne (injection de polluants chargés dans le réacteur).

Les efficacités de collection sont alors définies comme suit :

- L'efficacité de coagulation unipolaire (i.e. efficacité de collection de polluants neutre)

$$E_{coagunip} = 1 - C_2 / C_1^{off}$$
- L'efficacité de coagulation bipolaire (i.e. efficacité de collection de polluants chargés de la polarité opposée à celle des collecteurs)

$$E_{coagbip} = 1 - C_{lavage} / C_1^+$$

Le but de cette étude a été (i) d'une part de montrer la faisabilité d'un tel système de filtration humide (ii) d'autre part d'étudier l'influence des différents paramètres expérimentaux (caractéristiques des polluants, des collecteurs et conditions de mélange) sur l'efficacité de coagulation dans le double but (i) de mieux maîtriser le processus de coagulation et (ii) de dimensionner un prototype.

RESULTATS & DISCUSSION

Un système de filtration basé sur le même principe que celui présenté ici a été étudié par Bertinat (Bertinat, 1980). Une approche analytique simplifiée de la collection par une goutte d'eau d'une

particule polluante, et des hypothèses simplificatrices quant à la répartition des gouttes dans le réacteur de coagulation permet d'exprimer l'efficacité de coagulation bipolaire en fonction des propriétés des particules polluantes, des gouttes et de la zone de coagulation :

$$E = 1 - \exp\left(-\frac{\langle C_g t_{poll} \mu_p q_g \rangle}{\epsilon_0}\right)$$

où C_g et q_g sont respectivement la concentration (m^{-3}) et la charge (C) des gouttes collectrices, μ_p mobilité électrique des polluants ($m^2.V^{-1}.s^{-1}$), t_{poll} le temps de transit des polluants dans le réacteur, ϵ_0 la constante diélectrique du vide ($F.m^{-1}$), et où le symbole $\langle \dots \rangle$ signifie la moyenne sur le volume du réacteur. Comme μ_p et q_g sont constantes et déterminées par les points de fonctionnement du chargeur et des sprays, la moyenne $\langle C_g t_{poll} \rangle$ est donc la quantité permettant de décrire les conditions de mélanges des polluants avec les collecteurs, puisqu'elle intègre l'inhomogénéité de la concentration de collecteur ainsi que le temps passé par les polluants dans chacune des zones de différentes concentrations de collecteurs.

Les résultats présentés correspondent à l'étude paramétrique du processus de coagulation électrique, permettant de définir l'impact des différents paramètres expérimentaux (charge des polluants, temps de transit des polluants dans le réacteur, concentration du polluant, concentration de collecteurs) sur l'efficacité de collection globale (macroscopique) du réacteur.

1. Influence de la mobilité électrique – coagulation bipolaire et unipolaire

Lorsque la tension du chargeur est modifiée, la charge des polluants est modifiée de manière contrôlée, ce qui permet d'observer l'influence de la mobilité électrique sur l'efficacité de coagulation (voir Figure 4).

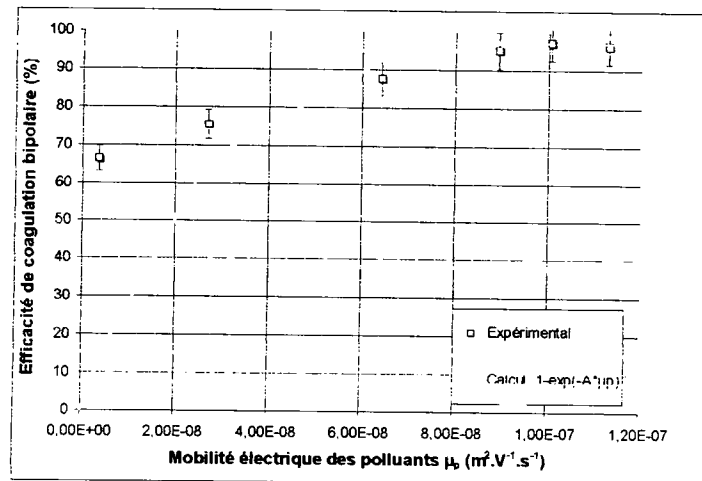


Figure 4 : Efficacité de coagulation bipolaire en fonction de la mobilité électrique des polluants (4buses, $Q_p=10L/min$, $dp=0.44\mu m$) (expérimentale=points et calculée=trait continu)

On observe que :

- L'augmentation de mobilité des polluants augmente la force de Coulomb entre les polluants et les collecteurs, ce qui induit une augmentation de l'efficacité de coagulation
- L'influence de la mobilité électrique est bien décrite par une formule de type Bertinat, lorsque les polluants sont suffisamment chargés ($\mu_p > 5.10^{-8} m^2.V^{-1}.s^{-1}$)
- Pour les faibles niveaux de charges (faible mobilité) on tend vers l'efficacité de coagulation unipolaire mesurée lorsque le chargeur est éteint ($E_{coagunip}=64\%$ dans ce cas)
- Les efficacités atteintes, pour un débit d'aérosol polluant de 10L/min et avec 4 buses en fonctionnement, sont importantes (de l'ordre de 97% en nombre)

2. Débit d'aérosol dans le réacteur – temps de transit

Une variation de débit de l'aérosol permet de jouer sur le temps de transit t_{poll} des polluants dans le réacteur. La Figure 5 montre les efficacités obtenues pour trois débits d'aérosol différents entre 5 et 15 L/min.

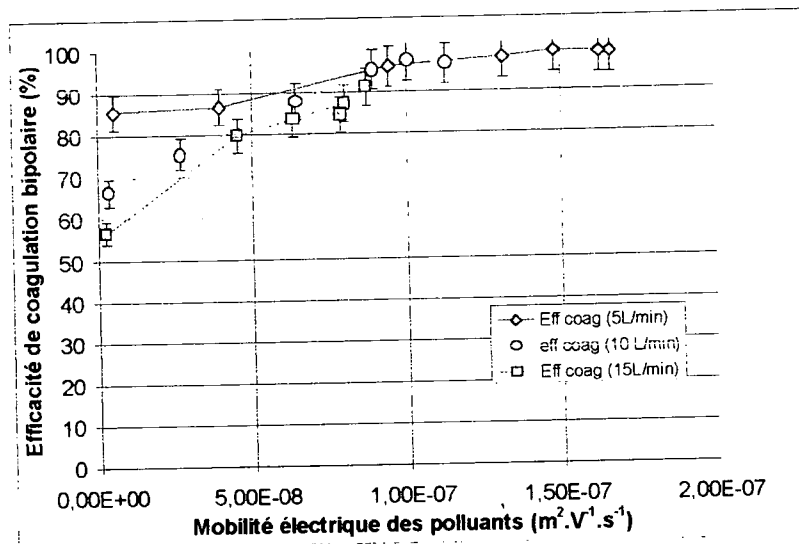


Figure 5 : Efficacité de coagulation bipolaire en fonction de la mobilité électrique du polluant, pour différents débits d'aérosol polluant (4buses, $Q_p=5-15L/min$, $d_p=0.44\mu m$)

On observe que :

- La diminution du temps de transit (par augmentation du débit) induit une réduction de l'efficacité de coagulation, et ce d'autant plus que les polluants sont peu chargés. Il semble donc que lorsque les polluants sont suffisamment chargés ($\mu_p > 1.10^{-7} m^2.V^{-1}.s^{-1}$), les forces électriques soient prépondérantes devant les forces hydrodynamiques et permettent d'arriver aux mêmes efficacités de coagulation, malgré des temps de transit plus courts
- Comme précédemment, on observe, pour les faibles mobilités, des efficacités comparables aux efficacités unipolaires mesurées lorsque le chargeur est éteint (pour 5, 10 et 15 L/min, on obtient comme efficacités unipolaires respectivement 87%, 64% et 45%). Il faut souligner que pour le débit de 5 L/min, l'efficacité de coagulation est supérieure à 99% lorsque les polluants ont des mobilités électriques supérieures ou égales à $1,5.10^{-7} m^2.V^{-1}.s^{-1}$.

3. Influence de $C_{polluant}$

L'influence de la concentration de polluant sur l'efficacité de coagulation a été quantifiée en modifiant la concentration d'aérosols injectés dans le réacteur de coagulation. Ce paramètre est très important en termes d'application du système, puisqu'il permet de quantifier la limite d'efficacité que l'on pourra obtenir en fonction de la concentration de l'aérosol à filtrer. La Figure 6 montre l'influence de la concentration de polluant sur l'efficacité de coagulation d'une buse (a), ainsi que le type d'abaque que l'on peut établir à partir de ces résultats (b).

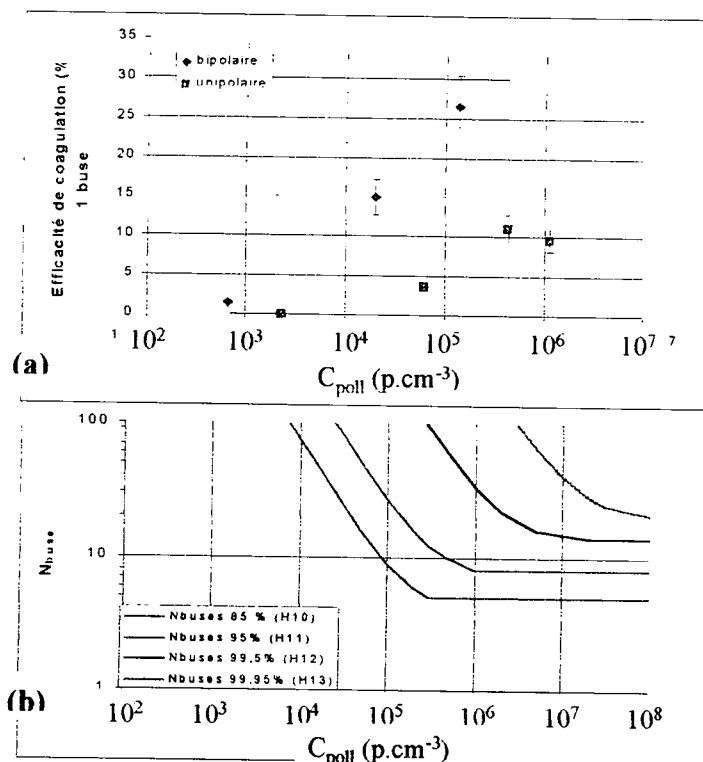


Figure 6 : (a) efficacité de coagulation d'un buse en fonction de la concentration de polluants injecté (bipolaire $\mu p=10^{-7} m^2.V^{-1}.s^{-1}$, 1 buse, $d_p=0.44\mu m$) (b) Extrapolation effectuée à partir des résultats du (a) et montrant le nombre de buses à utiliser en fonction de la concentration de polluants pour différentes efficacités bipolaire visées

On observe que :

- La diminution de concentration de polluants induit une diminution notable d'efficacité
- Ce fait expérimental est important au regard de l'application, puisqu'il permet de fixer une limite à l'efficacité maximale que l'on peut atteindre, tout en conservant un nombre de buses raisonnables (i.e. en conservant un débit d'eau par débit de gaz traité inférieur à ceux des systèmes déjà utilisés $Q_{liq}/Q_{gaz} = 10^{-3}$). Une extrapolation de ce type est montrée en (b).

CONCLUSION

La conception et le calibrage de deux sources d'aérosols chargés (par décharge couronne d'une part, et pulvérisation électro-hydrodynamique d'eau d'autre part) ont permis l'étude de la coagulation bipolaire. Les conditions de production contrôlées de chacune des populations permet en effet d'extraire des informations des mesures macroscopiques d'efficacité.

Cette étude a permis :

- d'une part de montrer la faisabilité d'un tel procédé de filtration (les efficacités obtenues – jusqu'à 99 % en nombre selon les conditions – permettent d'envisager une application du procédé), d'autant plus que les conditions de coagulation sont volontairement défavorables (gamme de taille sub-micronique, faible miscibilité des polluants huileux sur les collecteurs aqueux)
- d'autre part de préciser les conditions de mélanges optimales des polluants avec les collecteurs liquides ; ces résultats expérimentaux de coagulation bipolaire où les propriétés des particules (diamètre, charge, concentration) sont connues permettent d'envisager la comparaison avec un modèle numérique du processus de coagulation

Une étude du processus de coagulation à l'aide d'un Anémomètre à Phase Doppler est prévue, et devrait permettre d'établir une cartographie des particules polluantes et des collecteurs. La définition des conditions optimales de coagulation permettra de progresser dans la maîtrise de ce processus.

Références :

- M. P. BERTINAT, " Charged Droplet Scrubbing for Controlling Sub-micron Particle Emissions ", *Journal of Electrostatics*, Vol. 9, pp. 137-158, 1980
- P. Ehouarn, L. Unger, J.-P. Borra, « PEHD : Domaines de stabilité et lois d'échelle du mode cone-jet-glow selon la tension, le débit et la conductivité », *15^{ème} Congrès Français sur les Aérosols*, Paris, 8-9 décembre 1999
- L. Unger, J.-P. Borra, « Charge de particules submicroniques dans une décharge : conditions de fonctionnement du chargeur et effet de la forme des particules sur la loi de charge », *17^{ème} Congrès Français sur les Aérosols*, Paris, 11-12 décembre 2001

MESURAGE DE BIOAEROSOLS AU COURS DU TRAITEMENT DES EAUX USEES ET DU TRAITEMENT DES DECHETS URBAINS

P. Gömer (1), J.F. Fabriès (1), O. Witschger (1), G. Greff-Mirguet (1), L. Mathieu (2)

(1) Laboratoire de Métrologie des Aérosols, INRS, BP 27, 54501 Vandoeuvre

(2) Département Environnement et Santé Publique, Université Henri Poincaré - Nancy I, Faculté de Médecine, BP 184, 54505 Vandoeuvre

TITLE

Bioaerosol measurement during wastewater and urban waste treatment

ABSTRACT

Several methods were applied to measure bioaerosol concentration in highly contaminated areas including one wastewater treatment plant and one urban solid waste treatment plant with selective waste sorting. Bioaerosols were sampled by using 25-mm cassettes equipped with polycarbonate filters and a new prototype of CIP10 sampler. In the wastewater treatment plant where lower concentrations than expected were recorded, a single-stage biological impactor was also used for comparison purposes. Several microorganism growth media were selected for bacteria and fungi colony counting. Direct bacteria counting was also performed by using epifluorescence microscopy. In each case the detection limit of the method was evaluated, including sampling and analysis. No large differences were observed between the results corresponding to the different samplers used in this study. However, the concentrations in coliform bacteria and all culturable bacteria are only a small part of all the bacteria directly observed by epifluorescence microscopy.

RESUME

Le problème majeur auquel on se heurte en matière d'évaluation des risques biologiques liés à l'exposition aux micro-organismes dispersés dans l'air des lieux de travail est l'absence de méthode de prélèvement et d'analyse validée. Afin d'évaluer l'applicabilité de méthodes adaptées au mesurage de fortes concentrations de bioaérosols, nous avons été amenés à réaliser un certain nombre d'essais sur deux sites : une usine de traitement des eaux usées et une unité de traitement de déchets urbains incluant un poste de tri sélectif des déchets. Les prélèvements d'air ont été effectués à poste fixe à l'aide de différentes méthodes : prélèvements sur membrane filtrante en polycarbonate à l'aide de cassettes 25-mm, prélèvements à l'aide d'un prototype dérivé de l'appareil CIP10, et enfin prélèvements à l'aide d'un impacteur biologique mono-étage. Les analyses ont permis de mettre en œuvre plusieurs milieux nutritifs (gélouses) en vue de la mise en culture et du dénombrement de colonies (bactéries revivifiables, entérobactéries, moisissures). Par ailleurs le dénombrement direct des bactéries totales a été pratiqué en microscopie à épifluorescence (fluorochrome DAPI). Un accent particulier a été mis sur les limites de détection des méthodes utilisées, en incluant à la fois l'échantillonnage de l'air et l'analyse du support. On n'a pas observé de différences importantes entre les différentes techniques visant à mesurer le même paramètre. Par contre on a pu vérifier que la concentration en entérobactéries ne dépasse pas 1% de la concentration en bactéries revivifiables, et que cette dernière ne dépasse pas 10% de la concentration en bactéries totales mesurées par épifluorescence.

INTRODUCTION

La dispersion de micro-organismes dans l'air des lieux de travail peut être à l'origine de problèmes de santé pour les personnes exposées. Outre le risque infectieux d'autres risques biologiques sont possibles, comme par exemple les risques immuno-allergiques que peuvent présenter certaines bactéries ou moisissures, ou le risque toxinique dû à certains composants de la paroi des bactéries Gram négatif (endotoxines) ou à des toxines libérées par certaines moisissures (mycotoxines). L'évaluation des risques biologiques passe par une bonne connaissance des expositions aux micro-organismes, et donc par une bonne connaissance de la qualité microbiologique de l'air des lieux de travail et plus particulièrement des zones dans lesquelles évoluent les personnels concernés. Les méthodes de mesure des différents paramètres pertinents de cette qualité de l'air ne sont pas encore suffisamment développées, validées et codifiées. Pour des locaux propres ou pour des locaux où séjournent pendant un temps limité une population réduite l'usage veut que l'on mesure la concentration en micro-organismes revivifiables. Ce mesurage est généralement effectué à l'aide d'appareils autonomes permettant d'aspirer l'air à un relativement grand débit (50 à 100 l.min⁻¹) soit à travers une grille percée de nombreux orifices calibrés en vue de précipiter les particules supportant les germes sur une gélose nutritive (bioimpacteur), soit directement sur une plaque de puits de gélose par effet centrifuge. Cette technique n'est plus applicable dès lors que la concentration en micro-organismes revivifiables dépasse une valeur de l'ordre de 3000 UFC/m³ en raison de la saturation de la gélose, correspondant à la croissance de colonies après le prélèvement d'air en face de chaque orifice (bioimpacteur) ou sur chaque puit de la plaque (système centrifuge). L'objet de cette étude était de vérifier l'applicabilité d'autres méthodes en milieu a priori fortement contaminé, en incluant d'autres paramètres tels que la concentration en bactéries totales et la concentration en endotoxines. Deux sites ont été choisis pour l'étude : un centre de traitement des eaux usées et pluviales de l'agglomération lyonnaise, et un centre de tri et d'incinération des déchets ménagers urbains en région parisienne.

MATERIEL ET METHODES

Les matériels suivants ont été utilisés pour échantillonner l'air en différents points sur les sites étudiés :

- Un impacteur mono-étage MAS-100 (Merck),
- Plusieurs systèmes de filtration comprenant chacun une cassette porte-filtre en polystyrène pour filtre de diamètre 25 mm,
- Un prototype d'un nouvel échantillonneur de type CIP-10 en cours de développement.

L'efficacité physique d'échantillonnage de l'appareil MAS-100 a été mesurée récemment (Fabriès et al., 2001). Les micro-organismes en suspension dans l'air sont échantillonnés par aspiration à travers une grille composée d'un grand nombre d'orifices circulaires calibrés (400 orifices de 0,7 mm de diamètre) et collectés par impaction sur une gélose placée immédiatement en regard de la grille. Le débit de prélèvement du dispositif MAS 100 est de 100 l.min⁻¹. Différents volumes d'air peuvent être échantillonnés. Dans les zones a priori fortement contaminées un volume minimal de 100 litres d'air a été choisi. A l'extérieur des prélèvements de 250 l ont été effectués. Il s'agit donc dans tous les cas de prélèvements de relativement courte durée (1 min. ou 2,5 min.). Après chaque prélèvement la gélose est retirée du dispositif MAS 100, puis conditionnée pour le transport au laboratoire de microbiologie où elle est placée en incubateur pour la durée fixée.

En ce qui concerne la technique de filtration les micro-organismes en suspension dans l'air sont échantillonnés par aspiration à travers l'orifice de captage de la cassette et collectés sur un filtre positionné sur un support filtre en cellulose. Le débit d'air était assuré par une pompe auxiliaire de prélèvement. Deux modes d'utilisation du dispositif ont été choisis :

- mode « cassette ouverte » (orifice de captage d'environ 22 mm) à 1 l.min⁻¹ (code C25O-1)
- mode « cassette fermée » (orifice de captage d'environ 4 mm) à 1 l.min⁻¹ et à 3,5 l.min⁻¹ (uniquement pour les endotoxines) (codes C25F-1 et C25F-3,5).

Les débits de prélèvement ont été maintenus constants grâce à des cols soniques. Chacun des cols soniques (un par cassette) a été vérifié au préalable à l'aide d'un débitmètre à lame de savon de type Gilibrator (Gilian) lui-même étalonné au laboratoire. Les volumes d'air échantillonnés au cours des mesures ont été corrigés en tenant compte des conditions environnementales (température et pression).

Différents types de filtres ont été employés suivant la technique d'analyse microbiologique envisagée :

- membranes Isopore™ (Millipore) blanches en polycarbonate de diamètre de pores 0,2 µm pour les cassettes « fermées »
- membranes Isopore™ noires en polycarbonate de diamètre de pores 0,2 µm pour les cassettes « ouvertes ».

Ces dernières membranes ont été employées exclusivement pour les analyses par comptage de bactéries totales par microscopie à épifluorescence après traitement par un fluorochrome, en l'occurrence le DAPI (4'-6 diamidino-2 phénylindole), qui se fixe spécifiquement sur les séquences de trois paires de bases A-T de l'ADN des bactéries. Avant chaque prélèvement et pour chaque dispositif l'étanchéité entre les différentes pièces de la cassette a été vérifiée. Cette vérification est nécessaire pour prévenir d'éventuelles fuites pouvant modifier les concentrations en microorganismes mesurées. Après chaque prélèvement chaque cassette a été conditionnée pour le transport jusqu'au laboratoire de microbiologie où les filtres ont été alors retirés pour analyse.

Le prototype CIP10-B en cours de développement est dérivé des versions existantes qui permettent d'échantillonner suivant les cas la fraction alvéolaire, thoracique ou inhalable d'un aérosol (Courbon et al., 1988, Fabriès et al., 1998). La coupelle originale de l'appareil dans laquelle sont collectées normalement les particules a été remplacée par une autre coupelle spécifique qui permet de collecter les micro-organismes sur un film liquide. Le liquide utilisé dans ces mesures était simplement de l'eau stérile apyrogène. Le débit était fixé à 10 l.min⁻¹. Après le prélèvement le liquide est récupéré dans un flacon stérile et conditionné en glacière pour l'envoi au laboratoire.

Les analyses quantitatives effectuées sur les supports de prélèvement étaient de trois types :

- ensemencement et dénombrement des colonies formées sur différents milieux,
- comptage par épifluorescence (DAPI),
- test LAL (*Limulus Amoebocyte* Lysate) pour endotoxines.

Les échantillons collectés sur les membranes en polycarbonate ont été traités en lavant chaque membrane avec deux volumes successifs connus d'eau stérile apyrogène, qui ont été ensuite regroupés et dilués successivement au 1/10 et au 1/100. Les 3 suspensions obtenues : suspension mère de lavage et les 2 suspensions diluées ont fait l'objet de prises aliquotes qui ont été filtrées chacune sur une membrane en ester de cellulose de diamètre 47 mm et de diamètre de pores équivalents de 0,45 µm. Ces membranes ont été ensuite posées face active en haut sur une gélose de type choisi en fonction du paramètre recherché et placées en incubateur à une température déterminée. La croissance des micro-organismes a été suivie régulièrement et le dénombrement effectué à différents jours. Le nombre d'unités formant colonies (UFC) est calculé suivant la norme NF T90-400 (1987) à partir des comptages correspondant à chaque suspension. La concentration mesurée en est déduite en rapportant ce nombre au volume d'air échantillonné.

Dans le cas de l'appareil CIP10-B chaque coupelle de prélèvement était rincée avec un volume d'eau stérile apyrogène et le volume recueilli était complété jusqu'à un volume prédéterminé. Le traitement était ensuite le même que dans le cas des filtres.

Les géloses issues des prélèvements effectués avec l'impacteur monoétage MAS 100 ont été quant à elles placées directement en incubateur sans traitement particulier.

Les géloses choisies ainsi que les températures d'incubation étaient les suivantes :

- Caso-actidione (CASO) au trypticase soja à 22 et 37°C,
- TTC-tergitol (TTC) à 37°C, gélose sélective vis à vis des germes coliformes et des entérobactéries
- « Eosin Methylene Blue Agar » (EMB) à 37°C, gélose sélective pour les bactéries Gram négatif dont les entérobactéries,
- gélose à l'extrait de malt (MALT) à 30°C pour les moisissures et les levures mésophiles,
- milieu DG18 à 30°C, recommandé pour la culture des moisissures (Wu *et al.*, 2000), notamment celles qui peuvent coloniser des milieux à faible niveau d'humidité.

Les analyses en épifluorescence ont été conduites sur la base de deux méthodes. La méthode directe consiste à utiliser la membrane de prélèvement elle-même, en polycarbonate, noire, après avoir filtré grâce à celle-ci une solution de DAPI. La méthode directe a été appliquée aux prélèvements sur cassettes « ouvertes » dont le filtre présente généralement un chargement homogène. L'analyse indirecte, qui porte sur les reliquats des volumes d'ensemencement issus des prélèvements sur cassettes « fermées » ou sur CIP10-B, consiste à filtrer les échantillons liquide sur une membrane noire en polycarbonate. La concentration exprimée en cellules bactériennes totales par m³ d'air est calculée à partir des comptages en microscopie de plusieurs champs d'observation.

Les analyses quantitatives d'endotoxines bactériennes ont été réalisées par le laboratoire de microbiologie pharmaceutique de la Faculté de Médecine de l'Université Libre de Bruxelles (Belgique).

Quelques analyses qualitatives ont également été effectuées, consistant essentiellement en des identifications d'espèces bactériennes.

RESULTATS ET DISCUSSION

Les principaux résultats de concentration en micro-organismes dans l'air sont regroupés graphiquement dans les figures suivantes. Ces valeurs sont des valeurs moyennes obtenues à partir de 3 valeurs mesurées au maximum. Les valeurs moyennes sont souvent représentées avec leur intervalle correspondant à l'étendue des valeurs. Les valeurs extrêmes correspondent aux valeurs minimale et maximale des comptages.

Sur chaque figure on a également représenté une concentration limite de détection C_{LD} qui est calculée comme expliqué ci-après.

Pour les méthodes mettant en œuvre un ensemencement sur gélose on suppose qu'une seule colonie est observée sur la boîte de Pétri correspondant à la suspension mère. En supposant que le dénombrement de colonies suit une loi discrète de Poisson, on peut estimer une limite supérieure de l'intervalle de confiance à un niveau de probabilité donné. Cette limite est de 3 colonies au niveau 98% (CEA, 1978). La norme NF ISO 4833 (1991) décrivant les directives générales pour le dénombrement des micro-organismes prévoit que la limite supérieure de confiance au niveau 95% lorsque le nombre de colonies retenues vaut 1 est égale à 2, sans faire référence explicitement à la loi de Poisson. La concentration limite de détection est calculée sur cette base.

Pour les méthodes mettant en œuvre le comptage microscopique en épifluorescence on suppose que le seuil de détection correspond au comptage d'une seule cellule bactérienne pour un ensemble de 30 champs observés. Comme précédemment on adopte la valeur de 3 comme limite supérieure de l'intervalle de confiance au niveau 98%, et l'on calcule la concentration limite de détection sur cette base en prenant en compte la surface active du filtre observé et le volume d'air échantillonné.

Compte tenu des conditions de prélèvement la concentration limite détectable d'endotoxines a été estimée à 0,02 unités d'endotoxines (UE) par m³ d'air.

Station de traitement des eaux usées

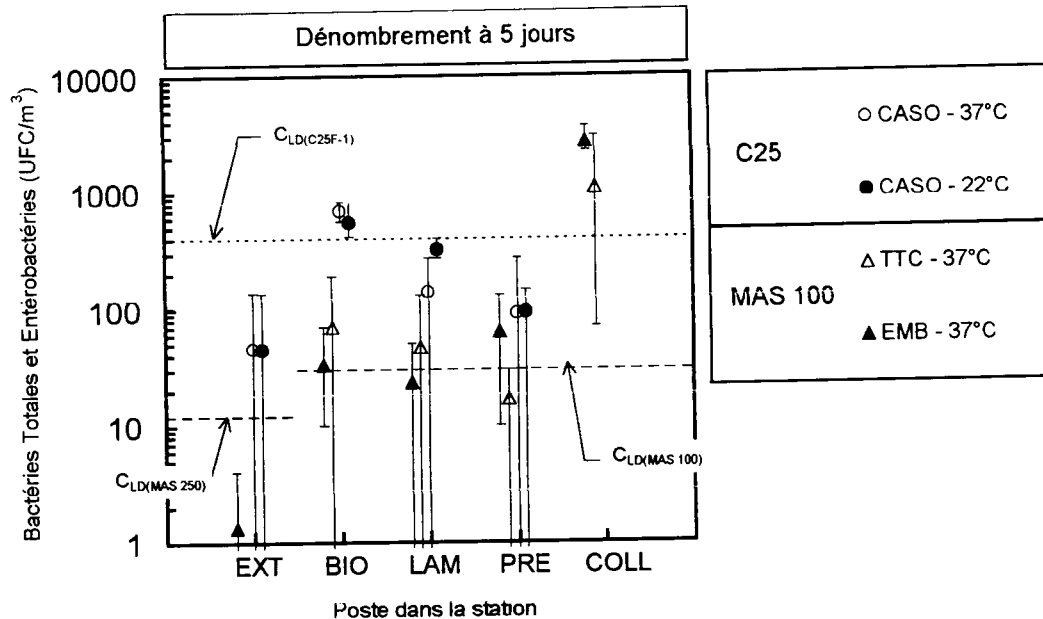


Figure 1 : Concentration en bactéries totales et en entérobactéries (UFC/m³) pour les différents postes de la station : EXT (référence extérieure), BIO (filtres biologiques), LAM (filtres lamellaires) et COLL (collecteur d'eau usée). Pour les prélèvements effectués avec la cassette C25F-1 : Ensemencement sur milieu CASO, incubation à 37°C et 22°C et dénombrement à 5 jours. Pour les prélèvements effectués avec le MAS 100 : ensemencement sur milieu TTC ou EMB, incubation à 37°C et dénombrement à 5 jours. Les symboles représentent les concentrations moyennes calculées sur trois valeurs au maximum. Les limites basse et haute des barres représentent respectivement les valeurs des concentrations minimale et maximale obtenues. Les concentrations $C_{LD(C25F-1)}$, $C_{LD(MAS 100)}$ et $C_{LD(MAS 250)}$ correspondent aux limites de détection.

Les niveaux des concentrations en entérobactéries cultivables mesurées aux différents postes à l'aide du MAS 100 sont présentés dans la figure 1. Ces niveaux sont également comparés aux niveaux mesurés pour les bactéries totales. Les concentrations moyennes mesurées varient entre ≈ 0 UFC/m³ au poste EXT et ≈ 2700 UFC/m³ au poste COLL. Ces concentrations sont relativement faibles pour ce type d'environnement et sont pratiquement inférieures ou égales aux limites de détection sauf pour le poste collecteur. Par ailleurs on n'a pas observé de différence significative entre les milieux TTC et EMB (test de Mann-Whitney Wilcoxon, $p > 0,05$). Pour les quatre postes EXT, BIO, LAM et PRE, on peut indiquer que les niveaux de concentration en entérobactéries représentent jusqu'à 10% des niveaux de concentration en bactéries totales.

Les niveaux des concentrations en moisissures cultivables mesurées aux différents postes à l'aide de la cassette C25, du MAS 100 et du CIP10-B sont présentés dans la figure 2. Les concentrations moyennes mesurées varient entre ≈ 10 UFC/m³ et ≈ 1200 UFC/m³. Elles paraissent systématiquement plus élevées avec le milieu DG18 qu'avec le milieu au lait. Cette observation est confirmée statistiquement par un test des signes portant sur les valeurs appariées ($p < 0,0001$). Ces résultats confirment ceux récemment publiés par Wu *et al.* (2000) mais qui concernaient des mesures effectuées en environnement hospitalier (niveaux de concentration en moyenne plus faibles). Le milieu DG18 a été retenu pour la suite de l'analyse statistique. Les concentrations mesurées avec la cassette C25F-1 et le MAS-100 ont été comparées. Les résultats du test de Mann-Whitney Wilcoxon sur la comparaison des valeurs médianes entre les concentrations indique qu'il existe une différence significative ($p < 0,02$) entre les deux méthodes. De plus les concentrations mesurées à l'aide de la méthode MAS-100 sont supérieures à celles obtenues avec la méthode C25F-1.

Le manque de données concernant le CIP10-B ne permet pas d'inclure ce dernier dans l'analyse statistique. Toutefois nous pouvons observer sur la figure 2 que les concentrations mesurées à l'aide de l'échantillonneur CIP10-B sont plus faibles que les concentrations moyennes mesurées avec la cassette C25F-1 ou bien le MAS-100.

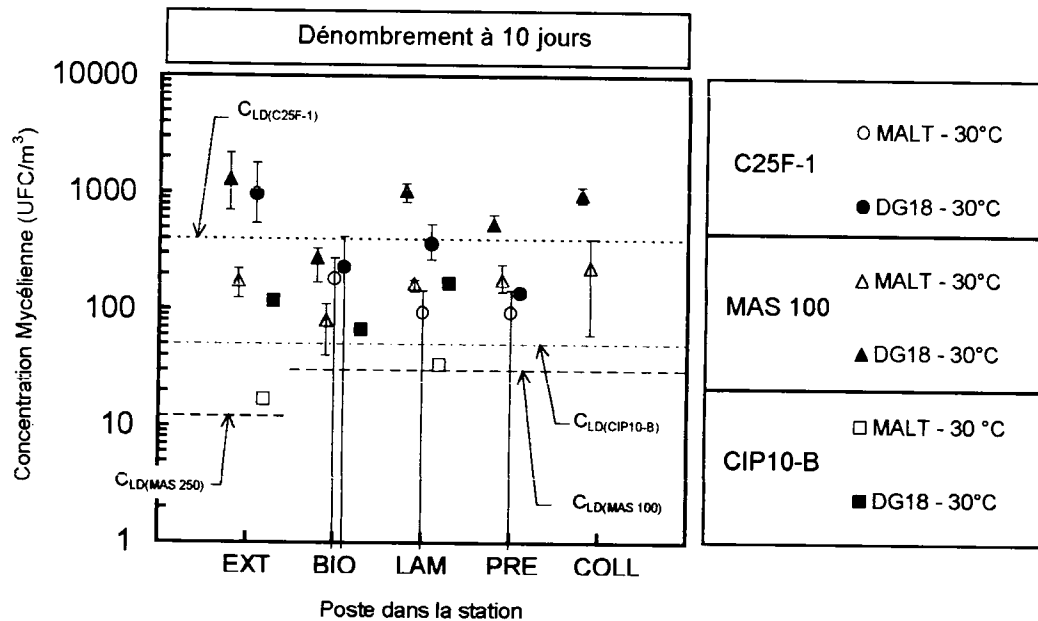


Figure 2 : Concentration mycélienne (UFC/m³) pour les différents postes de la station. Pour les prélèvements effectués avec la cassette C25F-1, l'impacteur mono étage MAS 100 et le CIP10-B : Ensemencement sur milieu MALT et DG18, incubation à 30°C et dénombrement à 10 jours. Les symboles représentent les concentrations moyennes calculées sur trois valeurs au maximum, sauf pour le CIP10-B (1 seule valeur). Les limites basse et haute des barres représentent respectivement les valeurs des concentrations minimale et maximale obtenues. Les concentrations $C_{LD(C25F-1)}$, $C_{LD(MAS 100)}$, $C_{LD(MAS 250)}$ et $C_{LD(CIP10-B)}$ correspondent aux limites de détection.

L'analyse de variance effectuée sur l'ensemble des résultats de concentration indique que la variance inter-poste n'est pas significativement différente de la variance intra-poste. Il n'existe donc pas de différence significative entre les différents postes et notamment avec la référence extérieure. Ceci est visible sur la figure 2.

Les niveaux de concentration en endotoxines varient entre ≈ 2 UE (unités d'endotoxines)/m³ (référence extérieure) et ≈ 700 UE/m³ aux filtres biologiques. A titre de comparaison Thorn et al. (2002) ont obtenus dans une étude réalisée dans plusieurs stations de traitement des eaux usées en Suède des niveaux de concentrations entre ≈ 1 UE/m³ et ≈ 1850 UE/m³. La durée des prélèvements était comprise dans leur étude entre 60 et 400 min et les mesures ont été effectuées à poste fixe avec une cassette C25O à 2 L/min. On peut également indiquer que ces auteurs ont effectué des mesures individuelles, l'échantillonneur étant porté par un opérateur. Les niveaux de concentration de ces dernières n'étaient pas significativement différentes de celles obtenues à poste fixe. Dans une étude effectuée en Finlande, Laitinen et al. (1992) indiquent des valeurs comprises entre ≈ 10 UE/m³ et ≈ 3700 UE/m³. Enfin Stetzenbach (1997) donne des valeurs de concentrations comprises entre ≈ 10 UE/m³ et ≈ 3500 UE/m³ pour les stations de traitement des eaux usées.

Unité de traitement des déchets urbains

Deux postes de travail ont été étudiés au niveau de la qualité de l'air : le premier est un hall (HALL) où les camions viennent déverser les déchets en provenance d'un site de groupage, tandis que le deuxième poste est un centre de tri sélectif des matériaux récupérables (TRI). La figure 3 montre les niveaux des concentrations moyennes en bactéries cultivables obtenus pour les deux postes à l'intérieur de l'usine (TRI et HALL) et pour les différents échantillonneurs qui ont été utilisés. Deux

analyses de variance effectuées d'une part sur l'ensemble des résultats de concentration mesurés au TRI et d'autre part mesurés au HALL indiquent que pour les deux postes la variance inter-échantillonneur n'est pas significativement différente de la variance intra-échantillonneur. On peut ainsi conclure qu'il n'existe pas de différence significative entre les niveaux des concentrations en bactéries totales cultivables mesurées à l'aide de C25F-1, C25F-3,5 et du CIP10-B.

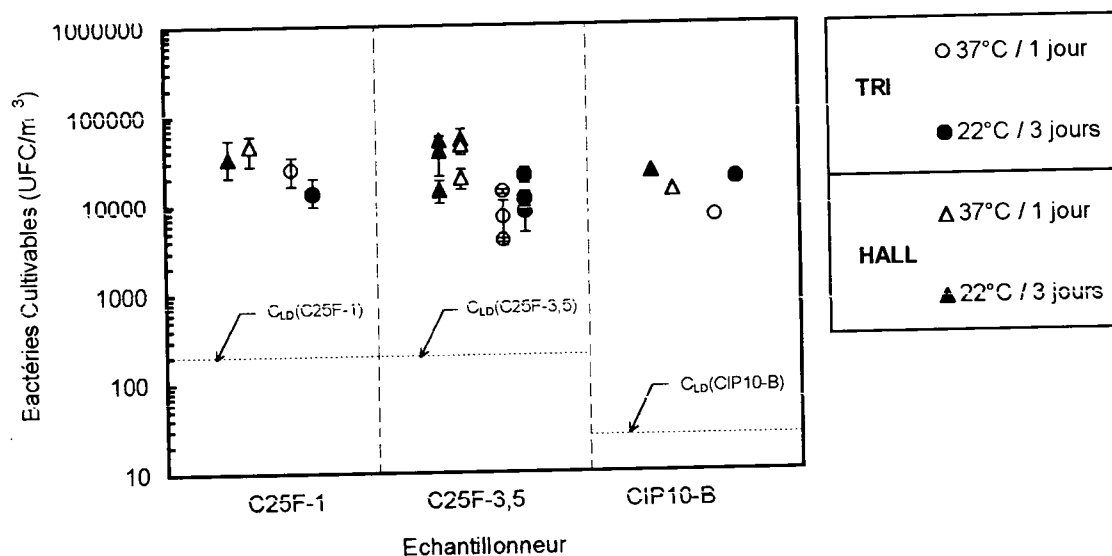


Figure 3 : Concentration en bactéries totales cultivables (UFC/m³) pour les différents échantillonneurs. Ensemencement sur milieu CASO, incubation à 37°C et dénombrement à 1 jour ou incubation à 22°C et dénombrement à 3 jours. Les symboles représentent les concentrations moyennes calculées sur trois valeurs au maximum sauf pour le CIP10-B (1 seule valeur). Les limites basse et haute des barres représentent respectivement les valeurs des concentrations minimale et maximale. Les concentrations C_{LD}(C25F-1), C_{LD}(C25F-3,5) et C_{LD}(CIP10-B) correspondent aux limites de détection.

On peut également observer visuellement sur la figure 3 que les niveaux de concentration mesurés sont nettement supérieurs (de 2 à 3 ordres de grandeur suivant la technique d'échantillonnage) aux concentrations limites de détection.

La figure 4 montre les niveaux des concentrations moyennes en entérobactéries cultivables obtenus avec le milieu EMB pour les deux postes à l'intérieur de l'usine (TRI et HALL) et pour les différents échantillonneurs qui ont été utilisés. L'analyse de variance effectuée aux postes TRI et HALL confondus indique que pour la variance inter-échantillonneurs n'est pas significativement différente de la variance intra-échantillonneur. On peut ainsi conclure qu'il n'existe pas de différence significative entre les niveaux des concentrations en entérobactéries cultivables mesurées à l'aide des trois techniques d'échantillonnage C25F-1, C25F-3,5 et CIP10-B. On peut observer cela visuellement sur la figure 4. On peut également observer sur cette même figure que pour les trois techniques d'échantillonnage C25F-1, C25F-3,5 et CIP10-B seules les concentrations issues des prélèvements effectués avec l'appareil CIP10-B sont largement supérieures à la concentration limite détectable.

La figure 5 montre les niveaux des concentrations mycéliennes moyennes obtenus avec les milieux MALT et DG18 pour les deux postes à l'intérieur de l'usine (TRI et HALL) et pour les différents échantillonneurs utilisés.

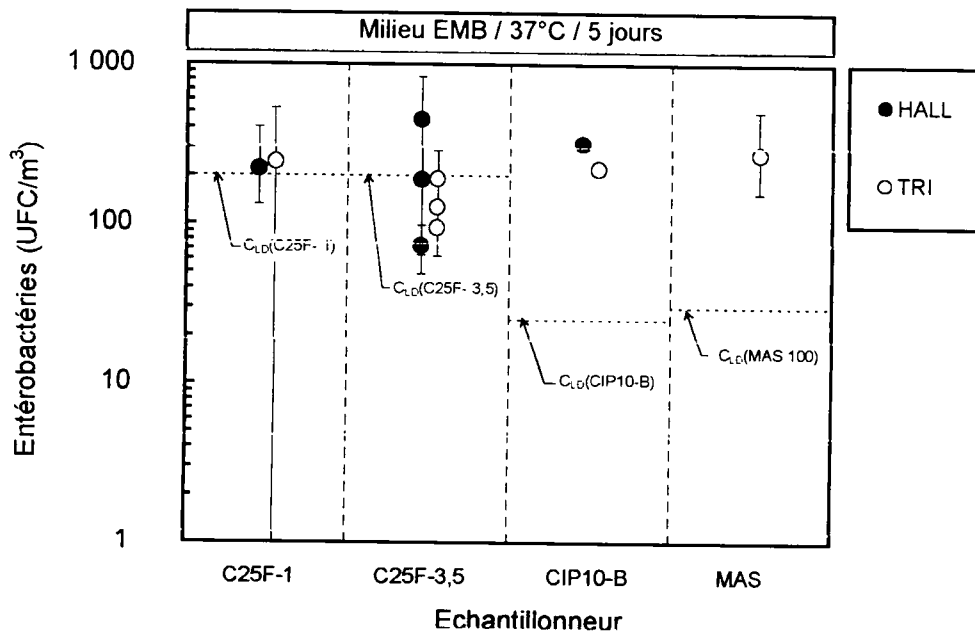


Figure 4 : Concentration en entérobactéries cultivables (UFC/m³) pour les différents échantillonneurs. Ensemencement sur le milieu EMB, incubation à 37°C et dénombrement à 5 jours. Les symboles représentent les concentrations moyennes calculées sur trois valeurs au maximum sauf pour le CIP10-B (1 seule valeur). Les limites basse et haute des barres représentent respectivement les valeurs des concentrations minimale et maximale obtenues. Les concentrations $C_{LD}(C25F-1)$, $C_{LD}(C25F-3,5)$, $C_{LD}(CIP10-B)$ et $C_{LD}(MAS100)$ correspondent aux limites de détection

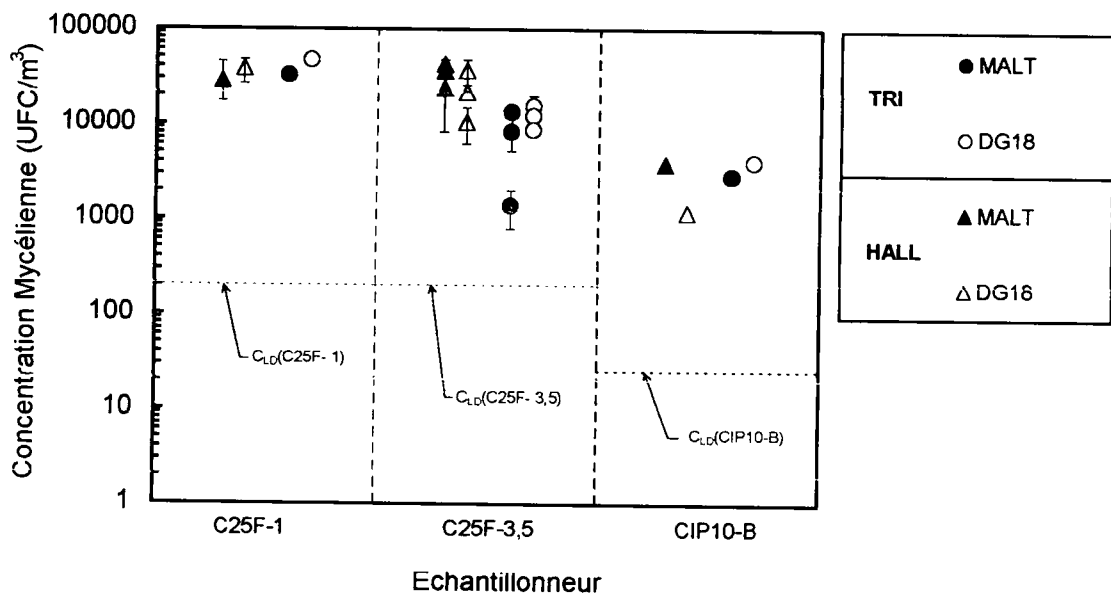


Figure 5 : Concentration mycélienne (UFC/m³) pour les différents échantillonneurs. Ensemencement sur les milieux MALT et DG18, incubation à 37°C et dénombrement à 5 jours. Les symboles représentent les concentrations moyennes calculées sur trois valeurs au maximum sauf pour le CIP10-B (1 seule valeur). Les limites basse et haute des barres représentent respectivement les valeurs des concentrations minimale et maximale obtenues. Les concentrations $C_{LD}(C25F-1)$, $C_{LD}(C25F-3,5)$, $C_{LD}(CIP10-B)$ correspondent aux limites de détection.

L'analyse de variance effectuée sur les postes TRI et HALL confondus et les deux milieux indique que la variance inter-échantillonneurs n'est pas significativement différente de la variance intra-échantillonneur. Il n'existe donc pas de différence significative entre les niveaux des concentrations en

entérobactéries cultivables mesurées à l'aide des trois techniques d'échantillonnage C25F-1, C25F-3,5 et CIP10-B. On peut cependant observer visuellement sur la figure 5 que les concentrations mesurées avec le CIP10-B semblent plus faibles que celles mesurées avec les échantillonneurs C25F-1 et C25F-3,5. Il est évident ici que le faible nombre des données disponibles ne permet pas de conclure de façon définitive quant à l'équivalence ou non des techniques d'échantillonnage pour la mesure des concentrations mycéliennes.

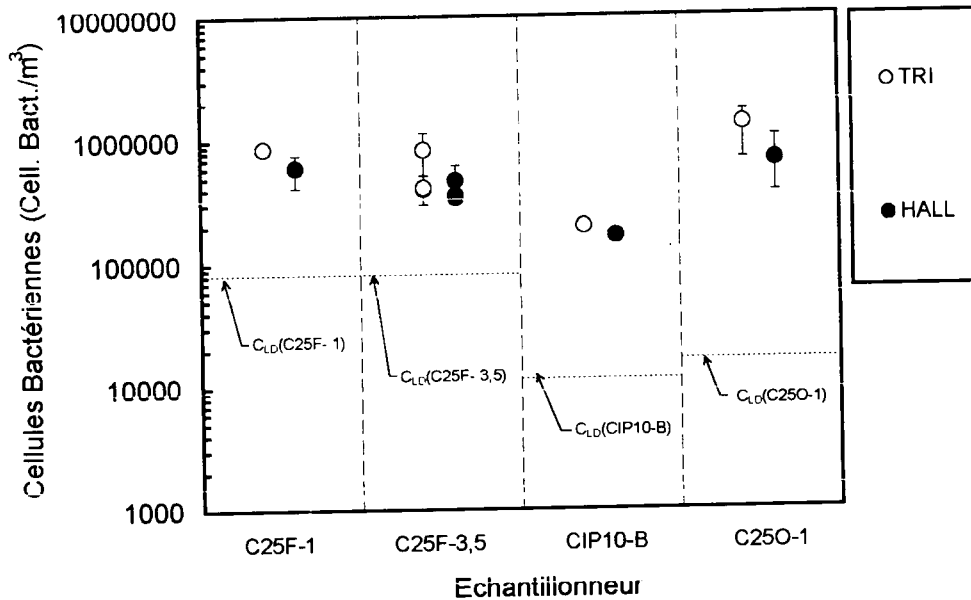


Figure 6 : Concentration en cellules bactériennes (Cell. Bact./m³) pour les différents échantillonneurs. Comptage effectué par épifluorescence. Les symboles représentent les concentrations moyennes calculées sur trois valeurs au maximum sauf pour le CIP10-B (1 seule valeur). Les limites haute et basse des barres représentent respectivement les valeurs des concentrations maximale et minimale obtenues. Les concentrations $C_{LD}(C25F-1)$, $C_{LD}(C25F-3,5)$, $C_{LD}(CIP10-B)$ et $C_{LD}(C25O-1)$ correspondent aux limites de détection.

La figure 6 montre les niveaux de concentrations en cellules bactériennes mesurés à l'intérieur de l'usine aux postes TRI et HALL à l'aide des différentes techniques C25F-1, C25F-3,5, CIP10-B et C25O-1 associées à un comptage en épifluorescence. Les niveaux de concentration mesurés sont compris entre $\approx 10^5$ et $\approx 2 \cdot 10^6$ Cell. Bact./m³. Si l'on compare ces niveaux à ceux obtenus pour les bactéries cultivables et les entérobactéries cultivables, on constate que :

- Les niveaux des concentrations en entérobactéries cultivables représentent $\approx 0,01\%$ à $\approx 1\%$ des niveaux de concentrations en cellules bactériennes.
- Les niveaux des concentrations en bactéries cultivables représentent $\approx 1\%$ à $\approx 10\%$ des niveaux de concentrations en cellules bactériennes.

Les résultats du test de Mann-Whitney Wilcoxon sur la comparaison des valeurs médianes entre les concentrations au poste TRI et au poste HALL indiquent qu'il n'y a pas de différence significative entre les deux postes ($p=0,18$). On peut également observer visuellement sur la figure 6 que ces niveaux de concentration restent relativement proches les uns des autres quelle que soit la technique d'échantillonnage qui a été employée.

L'analyse de variance effectuée sur les postes TRI et HALL confondus indique que la variance inter-échantillonneur est significativement différente de la variance intra-échantillonneur ($p=0,01$). On peut ainsi conclure qu'il existe des différences significatives entre les niveaux des concentrations en cellules bactériennes mesurées à l'aide des trois techniques d'échantillonnage C25F-1, C25F-3,5 et CIP10-B. On peut cependant observer visuellement sur la figure 6 que seul l'échantillonneur CIP10-B semble donner des résultats de concentrations différents (et plus faibles) que les autres techniques.

On peut aussi observer visuellement sur la figure 6 que la technique d'échantillonnage C25O-1 qui est associée à une méthode directe de comptage ne donne pas de résultats significativement différents de ceux issus des techniques d'échantillonnage associées à une méthode indirecte. Du fait du faible nombre de données aucun test n'a pu être utilisé pour étayer sur une base statistique ce résultat issu d'une observation. Enfin on peut également voir sur la figure 6 que les niveaux de concentration qui ont été mesurés sont bien supérieurs (jusqu'à un ordre de grandeur pour le CIP10-B) aux concentrations limites détectables.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) (1978) *Statistique appliquée à l'exploitation des mesures*. Paris : Masson.
- Courbon, P., Wrobel, R., & Fabriès, J.F. (1988) A new individual respirable dust sampler: the CIP10. *Ann. Occup. Hyg.*, 32 (1), 129-143.
- Fabriès, J.F., Görner, P., Kauffer, E., Wrobel, R., & Vigneron, J.C. (1998) Personal thoracic CIP10-T sampler and its static version CATHIA-T. *Ann. Occup. Hyg.*, 42 (7), 453-465.
- Fabriès, J.F., Wrobel, R., Görner, P., & Greff-Mirguet, G. (2001) Experimental assessment of the sampler efficiency of two bioaerosol samplers. *J. Aerosol Science*, 32 (suppl. 1), S333-S334.
- Laitinen S., Nevalainen, A., Kotimaa, M., Liesovuori, P., & Martikainen, P.J. (1992) Relationship between bacterial counts and endotoxin concentrations in the air of wastewater treatment plants. *Appl. Environ. Microbiol.* 1992, 58(11), 3774-3776.
- Lavoie, J. (2002) Evaluation de l'exposition aux bioaérosols dans les stations de traitement des eaux usées. *Vecteur Environnement - Section scientifique*, vol. 33, n°3, 43-50.
- Mulloy, K.B. (2001) Sewage workers: toxic hazards and health effects. *Occup. Med.*, Vol 16, 23-28.
- NF ISO 4833 (1991) Microbiologie – Directives générales pour le dénombrement des microorganismes – Méthode par comptage des colonies obtenues à 30°C. *AFNOR*, juillet 1991.
- Stentzenbach, L.D. (1997) Introduction to aerobiology. Dans *Dans « Manual of Environmental Microbiology »*. Edité par Christon J. Hurst. *American Society for Microbiology, Washington, DC*. pp619-628.
- Thorn, J., Beijer, L., Jonsson, T., & Rylander, R. (2002) Measurements strategies for the determination of airborne bacterial endotoxin in sewage treatment plants. *Ann. Occup. Hyg.*, 6, 549-554.
- Wu P.-C., Su, H.-J. J., & Ho, H.-M. (2000) Exposure assessment. A comparison of sampling media for environmental viable fungi collected in hospital environment. *Environ. Res.* 82(3): 253-258.

ETUDE DU DEVELOPPEMENT DES AEROSOLS FONGIQUES SUR LES PRODUITS DE CONSTRUCTION

M. Boissier* (1,2); E. Robine (1); E. Géhin (2); A. Renoux (2)

(1). Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, 77420 Champs sur Marne. m.boissier@cstb.fr

(2). Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations; Université Paris XII ; 94010 Créteil Cedex

TITLE

Study of the growth of fungal aerosols on building materials.

ABSTRACT

Buildings may constitute « ecological niches » for the development of moulds. Many studies have clearly shown that mould growth coincides with the appearance of respiratory tract diseases such as: allergies, infections and toxicological infections. In addition to the sanitary aspect, moulds damage a wide range of materials reducing their mechanical integrity. Building materials have been identified as the main source of fungi indoors.

In this context, the objective of this study is the characterization of the environmental phenomenon governing the fungal building materials colonization. We evaluated here the growth potential of *Aspergillus niger* aerosol on several building materials. For this study we developed many tools to contaminate surfaces and evaluate the fungal behaviour on substrates.

Our experiments showed the indisputable impact of materials on fungal growth and allowed the development of an evaluation procedure according to the aptitude of surfaces to favour or prevent the fungal colonization.

RESUME

Les moisissures sont des biocontaminants courants des environnements intérieurs. De nombreuses études ont démontré que leur présence coïncidait avec l'apparition de maladies chez les occupants. Outre l'aspect sanitaire, les moisissures sont capables de dégrader les supports qu'elles colonisent pouvant entraîner une perte de leur intégrité mécanique (Sand, 1997).

La survie de ces microorganismes est conditionnée par leur fixation sur les surfaces et leur capacité à s'y développer. La dispersion des spores assure la propagation de ces microorganismes dans l'ensemble du local. Les matériaux de construction et de décoration ont été identifiés comme étant des sources majeures de biocontamination fongique dans les environnements intérieurs.

Dans ce contexte, l'objectif global de notre recherche est d'étudier les phénomènes environnementaux régissant la colonisation des produits de construction par les champignons microscopiques. Dans le cadre de ce travail, nous avons évalué la croissance d'un aérosol d'*Aspergillus niger* sur plusieurs matériaux de construction. Pour réaliser cette étude, de nombreux outils ont été mis en place, tant pour contaminer les supports par un aérosol fongique, que pour suivre le comportement du microorganisme sur les substrats.

Nos essais ont démontré l'effet indéniable des matériaux sur le développement fongique et ont abouti à la mise au point d'un protocole d'évaluation hygiénique complet des produits de construction.

I. INTRODUCTION

La qualité de l'air à l'intérieur des bâtiments constitue une préoccupation croissante d'hygiène et de santé publique résultant de l'augmentation des plaintes liées à une mauvaise qualité de l'air et de l'importance désormais reconnue des facteurs environnementaux dans l'apparition de certaines maladies. Omniprésents dans les environnements intérieurs, les champignons microscopiques sont fréquemment mis en cause dans la survenue de divers troubles respiratoires tels que des allergies, des infections, et des toxi-infections (Malléa et Charpin ; 1986; Miller, 1990; Veyssier et Domart, 1996; Yang et Johanning, 1997).

Dans ces environnements, les matériaux de construction et de décoration ont été clairement identifiés comme étant la source majeure de biocontamination (Pasanen *et al.*, 2000).

Le mécanisme de colonisation de ces produits comporterait deux étapes : la fixation des microorganismes, dont nous avons démontré précédemment qu'elle dépendait essentiellement de

l'hydrophobicité des surfaces biologiques et inertes (Boissier *et al.*, 2001), et leur développement sur les supports.

Nous étudierons ici le rôle des matériaux de construction dans la prolifération des moisissures dans les environnements intérieurs.

La démarche expérimentale que nous avons adoptée consiste à simuler l'aérobiocontamination naturelle des supports par un aérosol fongique et à suivre le développement des microorganismes sur les surfaces. Nous avons, ainsi, conçu un montage expérimental permettant d'aérosoliser des particules biologiques (Boissier *et al.*, 2000 ; 2001) et utilisé diverses techniques d'observation macro et microscopiques pour évaluer le comportement fongique. Nous avons également employé une technique biochimique pour quantifier le degré de colonisation globale des produits.

II. MATÉRIEL ET MÉTHODE

A. LES MICRO-ORGANISMES

Cette étude a été réalisée avec une espèce couramment isolée dans les environnements intérieurs et mise en cause dans la survenue de maladies : *Aspergillus niger* ($d_{ae}=3.31$, $\sigma_g=1,35$) (Figure 1). Les valeurs de d_{ae} et σ_g ont été mesurées à l'aide d'un compteur aérodynamique de particule (APS 3320, ITS).

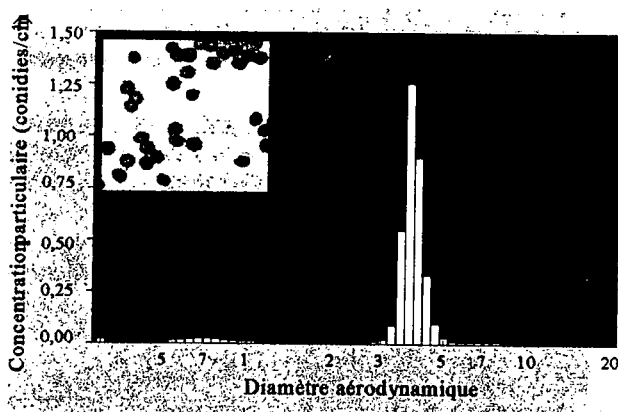


Figure 1 : Profil granulométrique de l'aérosol d'*Aspergillus niger* et photographie de ses conidies (microscope optique x400)

B. PRODUITS DE CONSTRUCTION

Ces matériaux sont découpés en carré de 1,5 cm de côté puis stérilisés en chaleur humide (20 minutes à 121°C).

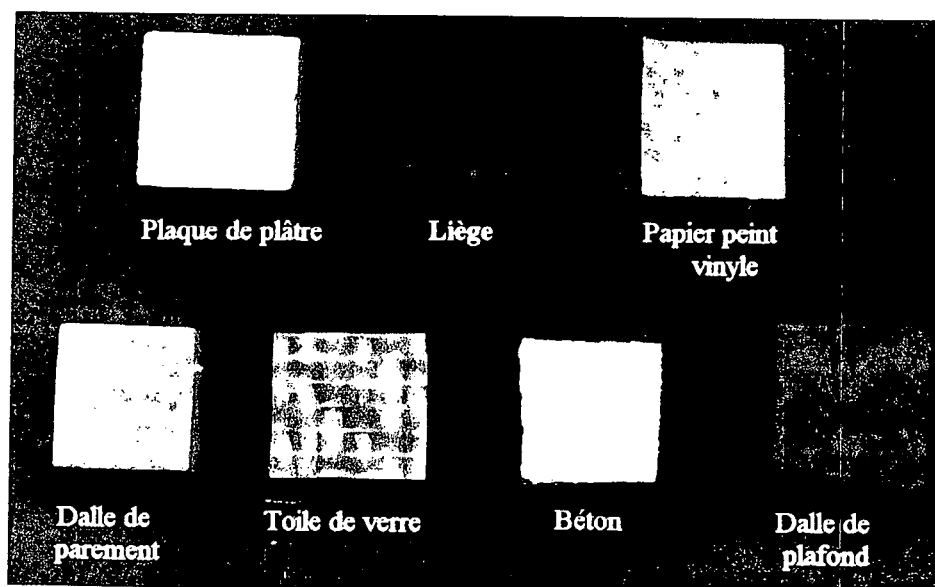


Figure 2 : Matériaux de construction employés

C. MONTAGE EXPERIMENTAL

Ce montage (Figure 3) est composé de deux parties :

- la première partie concerne la production de l'aérosol fongique par un générateur rotatif spécifiquement développé pour cette étude
- la deuxième partie s'intéresse à la contamination du matériau par l'aérosol fongique préalablement caractérisé à l'aide d'un compteur aérodynamique de particules (APS 3320).

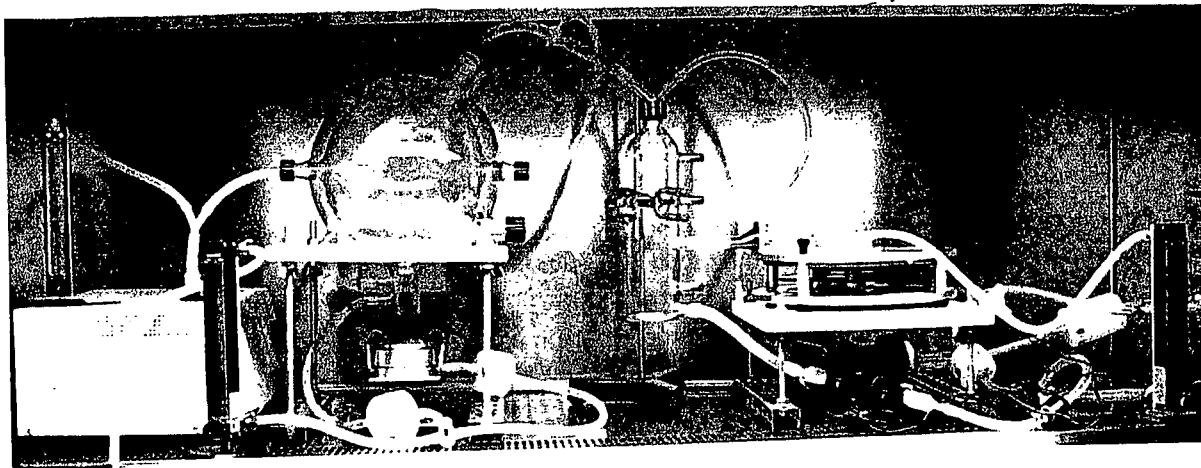


Figure 3 : Photographie du montage d'aérobiocontamination

D. OBSERVATIONS MICROSCOPIQUES

Nous utilisons un microscope électronique à balayage de marque JEOL 5600 LV (Low Vacuum) couplé à une microanalyse Oxford (détecteur 133 eV). Ce microscope fonctionne en pression variable et permet une observation directe des échantillons en vide primaire (non poussé) ou en vide secondaire après métallisation au platine (1 minute à 20 mA) des surfaces (métalliseur Jeol JFC-1300 auto fine coater, JEOL). Cet outil permet l'observation des échantillons à un grossissement allant de 50 à 300 000.

E. DOSAGE CHROMATOGRAPHIQUE DE L'ERGOSTEROL

Les champignons contiennent dans leur membrane cytoplasmique une molécule spécifique, l'ergostérol, dont le dosage, après extraction des structures fongiques (spores et hyphes), permet la détection et la quantification des moisissures contaminant le substrat. Le protocole d'extraction consiste à placer les supports contaminés dans 2 ml de méthanol, puis à les soumettre aux ultrasons (Branson 2510, Branson). L'extrait est récupéré puis centrifugé à 6000 tours/minute pendant 15 minutes (EBA 8 S, Hettich). Le surnageant est filtré (inorganic membrane filter Anotop, 0,2 μ m, Whatman) puis dosé en Chromatographie Liquide Haute Performance (HPLC).

Le système est étalonné à l'aide d'un extrait commercial d'ergostérol pur à 99,4% (Fluka). Le système Waters utilisé est muni d'une colonne Lichrospher RP18 de 100 Å (Merck). La détection est assurée par un détecteur UV (Waters 996 Photodiode Array Detector). L'ensemble de l'appareillage est piloté par le Logiciel Millennium 32.

Nous utilisons une phase mobile composée exclusivement de méthanol (méthanol rectapur, Fisher) en mode isocratique. Le débit de cette phase lors de l'utilisation est égal à 1,5 l/min avec une pression résultante de 1400-1500 PSI. Hors utilisation, la colonne est conservée dans un mélange méthanol/eau (40/60). L'eau évite l'assèchement et le méthanol la prolifération des micro-organismes dans la colonne.

III. RESULTATS ET DISCUSSION

A. PROPRIETES DU MONTAGE D'AEROBIOCONTAMINATION

La caractérisation, selon divers paramètres physiques et biologiques, de notre système a mis en évidence la possibilité d'obtenir, dans des conditions de fonctionnement adaptées :

- une aérobiocontamination contrôlable et reproductible des surfaces (Boissier *et al.*, 2000 ; 2001)
- un aérosol dont la proportion de spores capables de se développer, après contamination des supports, dépend de l'âge de la culture dont elles sont issues (Figure 4).

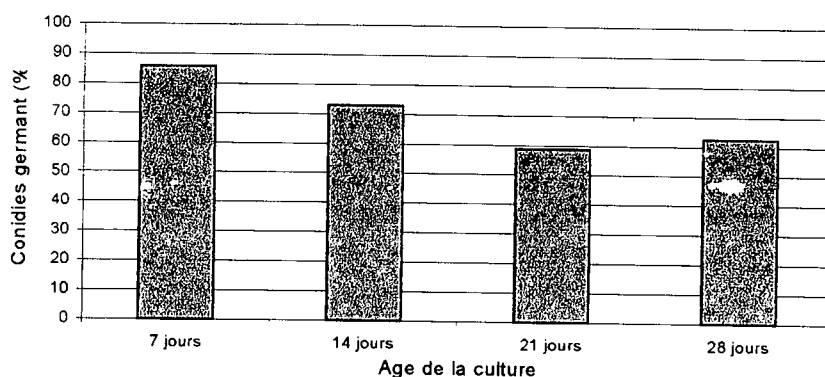


Figure 4 : Proportion de spores capables de germer selon l'âge de la culture fongique

Nous constatons une baisse de la capacité à se développer pour les cultures les plus âgées : après 7 jours d'incubation, la biomasse active est proche de 85% et n'est plus que de 60% après 28 jours.

B. EVALUATION DU DEVELOPPEMENT FONGIQUE

Les éprouvettes sont contaminées simultanément par un aérosol de spores d'*Aspergillus niger* issues d'une culture de 7 jours. Après 34 jours d'incubation (25°C, humidité relative proche de 100 %), nous extrayons puis dosons l'ergostérol contenu dans chaque échantillon (Figure 5).

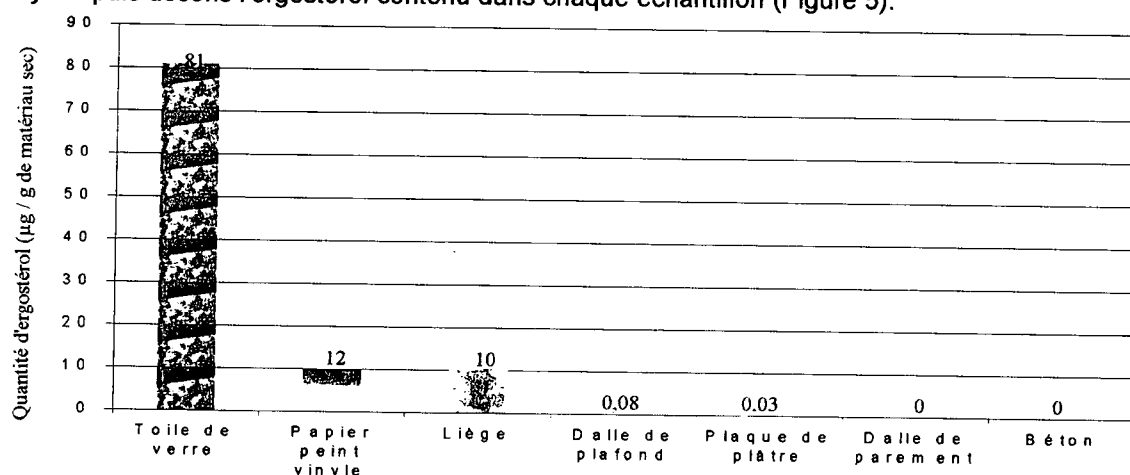


Figure 5 : Concentration d'ergostérol selon les matériaux de construction

D'après nos résultats, les matériaux se comportent différemment vis-à-vis d'une même contamination fongique. Ainsi la toile de verre apparaît comme le produit le plus colonisé alors que la dalle de parement et le béton semblent inhiber la croissance fongique. L'observation des éprouvettes, réalisée au microscope électronique à balayage, corrobore nos résultats (Figure 6).

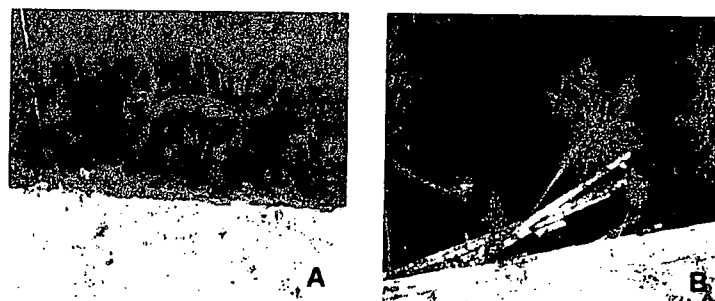


Figure 6 : Photographies des éprouvettes de papier peint vinyle (A) (X90) et de toile de verre (B) (X180) réalisée au MEB

Pour éprouver la significativité de nos résultats, nous avons déterminé, à partir de 12 essais, le coefficient de dispersion de notre technique. Les expériences ont été réalisées sur le matériau le plus propice au microorganisme : la toile de verre. Les éprouvettes sont contaminées séparément par un aérosol d'*Aspergillus niger*. Le coefficient ainsi calculé est égal à 16,5 %. Il tient compte des

incertitudes liées à la technique de contamination, au matériel biologique, ainsi qu'aux erreurs relatives au protocole d'extraction et à la technique de dosage.

D'après nos essais, l'emploi de béton et de dalle de parement semble être un moyen efficace pour limiter le développement fongique. Toutefois, dans les environnements intérieurs, les matériaux de construction et de décoration sont susceptibles d'être encrassés par des poussières ou des dépôts organiques. Outre de modifier les propriétés de surfaces de ces produits (hygroscopicité, hydrophobicité), l'encrassement peut constituer une source de nutriments pour les microorganismes.

C. INFLUENCE DE L'ENCRASSEMENT

Nous avons testé, dans les mêmes conditions d'essais que précédemment, l'effet de matériaux encrassés artificiellement, sur le développement fongique: toile de verre, papier peint vinyle, dalle de parement minérale et béton. Les éprouvettes sont immergées dans une solution nutritive favorable au développement des moisissures (C/N=30 et pH=7). Après 15 jours d'incubation, la biomasse produite au sein des matériaux propres et encrassés est évaluée par dosage de l'ergostérol (Figure 7).

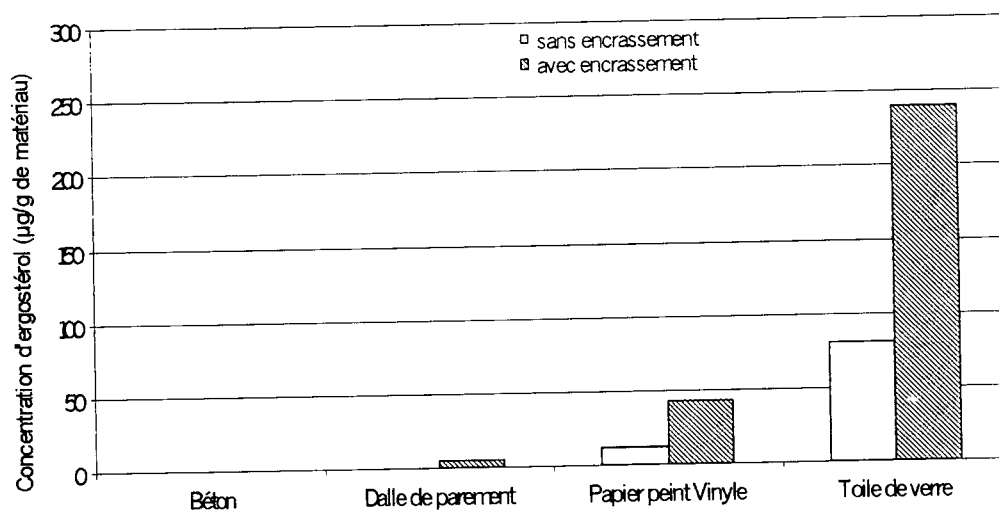


Figure 7 : Concentration d'ergostérol sur 3 supports neufs et encrassés après 15 jours d'incubation et quantité de nutriments absorbée selon le support

Nous constatons que l'apport de nutriments favorise, dans tous les cas, le développement fongique, excepté pour le béton, dont le pH fortement alcalin (pH=9,7) est probablement à l'origine de cette absence de croissance. Ainsi, pour le papier peint vinyle et la toile de verre, l'encrassement multiplie par 3 la biomasse produite sur des matériaux propres. La quantité de biomasse semble, de plus, dépendre de la teneur en solution encrassante des produits, sans qu'il existe de relation proportionnelle entre les deux paramètres.

Par ailleurs, l'observation macroscopique a révélé l'apparition simultanée de la croissance fongique sur les 3 supports, apparition qui était différée pour les matériaux non encrassés.

Compte tenu de la coïncidence de la sporulation, nous pouvons supposer que les microorganismes disposent initialement des mêmes conditions nutritives. Comme attendu, les moisissures utilisent principalement les nutriments les plus simples à assimiler, c'est-à-dire le glucose contenue dans la solution encrassante.

L'observation du développement fongique sur des matériaux propres permet d'établir un premier classement des supports selon leur aptitude à favoriser le développement fongique. Toutefois, l'encrassement s'avère nécessaire pour différencier des supports, tels que le béton et la dalle de parement, qui, propres, affectent de la même manière la croissance des moisissures. Ces essais nous ont permis d'établir une première hiérarchisation des produits de construction selon qu'ils favorisent ou limitent le développement fongique (Tableau I).

Classification	Résultats
CF (-)	Absence de croissance fongique sur le support propre et encrassé. ⇒ Le produit est considéré comme fongistatique
CF (0)	Absence de développement fongique sur le support propre mais croissance sur l'échantillon encrassé. ⇒ Le matériau est inerte
CF (+)	Croissance fongique sur le produit propre: le matériau contient des substances nutritives permettant le développement fongique. ⇒ Le matériau est vulnérable

Tableau I : Classification des matériaux selon leur vulnérabilité vis-à-vis d'une contamination fongique

Ainsi, parmi les matériaux que nous avons utilisés le béton est CF (-), la dalle de parement CF (0), les cinq autres produits sont plus ou moins vulnérables aux microorganismes fongiques, la toile de verre étant le produit le plus propice au développement des moisissures.

IV. CONCLUSION

Les essais réalisés pour cette étude ont permis de démontrer clairement l'impact significatif, sur le développement fongique, des produits de construction. Nous avons également mis au point un protocole reproductible et des outils quantitatifs permettant de réaliser une évaluation hygiénique complète des produits de construction.

Aujourd'hui, pour limiter le développement fongique sur les produits, la maîtrise de la teneur en humidité est préconisée mais reste difficile à mettre en œuvre. Par ailleurs, on assiste à la commercialisation de nouveaux matériaux synthétiques incorporant, dans leur formulation, des substances "fongicides", dont on ne connaît, actuellement ni les performances, ni l'innocuité. De plus, on peut craindre que ces produits soient à l'origine de l'apparition, chez les espèces visées, de caractères de résistance aux molécules chimiques. D'après nos résultats, le choix raisonné de matériaux moins vulnérables aux moisissures, avec une prise en compte de leurs propriétés hygiéniques, et de leur maintien, en fonction des opérations de nettoyage qui leur sont appliquées apparaît comme un moyen efficace pour maîtriser la qualité hygiénique des environnements intérieurs.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Boissier, M.; Robine, E.; Lacaze, I.; Moularat, S.; Renoux, A. and Moreau, R. (2001) Etude de la bioadhésion d'un aérosol d'*Aspergillus niger* sur trois supports inertes. *17ème Congrès Français sur les Aérosols*, Paris.
- Boissier, M.; Robine, E.; Moreau, R. and Renoux, A. (2000) Mise au point d'un montage expérimental destiné à l'aérobiocontamination de produits de construction par un aérosol fongique. *16ème Congrès Français sur les Aérosols*, Paris.
- Malléa, M. and Charpin, J. (1986) Moisissures. in *Allergologie*, Flammarion - Médecine - Sciences, 242-253.
- Miller, J.D., (1990) Fungi as contaminants in indoor air. *Indoor Air*, 5, 51-64.
- Pasanen, A.L.; Kasanen, J.-P.; Rautiala, S.; Ikäheimo, M.; Rantamäki, J.; Kääriäinen, H. and Kalliokoski, P., (2000) Fungal growth and survival in building materials under fluctuating moisture and temperature conditions. *International biodeterioration & biodegradation*, 46, 117-127.
- Sand, W., (1997) Microbial mechanisms of deterioration of inorganic substrates - a general mechanistic overview. *International biodeterioration & biodegradation*, 40, 183-190.
- Veyssier, P. and Domart, Y. (1996) Infections nosocomiales. Masson, Paris.
- Yang, C.S. and Johanning, E. (1997) Airborne fungi and mycotoxins. in *Manual of environmental microbiology*, ASM Press, 656.

MISE AU POINT ET VALIDATION D'UNE METHODE GRAVIMETRIQUE POUR MESURER LA MASSE INHALABLE DES AEROSOLS MEDICAMENTEUX PRODUITS PAR NEBULISATION

L. Vecellio None(1), D. Grimbert(1), J. Bordenave(2), G. Benoit(2), Y. Furet(3), B. Fauroux(4), E. Boissinot(1), E. Lemarié(1), P. Diot(1)

- (1) INSERM EMI-U 00-10, Groupe de Pneumologie et Imagerie de Ciblage, IFR 120, CHU Bretonneau, 37044 Tours Cedex
- (2) Service Pharmacie, Hôpital Armand Trousseau, 75072 Paris Cedex 12
- (3) Service de Pharmacologie, CHU Bretonneau, 37044 Tours Cedex
- (4) INSERM EMI-U 02-13, Département de Pneumologie Pédiatrique, Hôpital Armand Trousseau, 75571 PARIS Cedex 12

INTRODUCTION

Le dépôt d'un aérosol médicamenteux dans l'appareil respiratoire est principalement fonction de la quantité d'aérosol et de la taille des particules que le patient est susceptible d'inhaler. La masse inhalable est définie comme la masse de principe actif du médicament qu'un patient serait susceptible d'inhaler dans des conditions expérimentales données.

Différentes méthodes sont utilisées pour mesurer la masse inhalable des aérosols médicamenteux produits par nébulisation. La méthode gravimétrique classique consiste à peser le nébuliseur avant et après nébulisation pour déterminer la masse de médicament nébulisé, puis par calcul, la masse de principe actif nébulisé. Cette méthode n'est valable que pour faire une étude rapide de la performance des nébuliseurs à l'air libre (Tandon et al, 1997) car elle surestime la masse de principe actif nébulisé jusqu'à un facteur 2 (Coates et al, 1998). La méthode reconnue comme la plus précise est basée sur la filtration de l'aérosol (Smaldone, 1994). Elle consiste à collecter sur filtres les gouttelettes produites par le nébuliseur puis à doser le substrat collecté. Cette méthode permet de connaître la masse d'aérosol produit à un endroit donné.

L'extraction est généralement délicate et le dosage nécessite un matériel sophistiqué pour la mesure du principe actif du médicament (spectrophotométrie, Chromatographie Liquide à Haute Performance (HPLC)).

L'objectif de cette étude était de vérifier l'hypothèse selon laquelle la méthode de gravimétrie sèche appliquée sur des filtres dans des conditions standardisées pouvait être une méthode précise pour la mesure de la masse inhalable des nébuliseurs. Pour calculer la masse de principe actif collectée sur les filtres, nous avons fait l'hypothèse que le principe actif du médicament n'avait pas été altéré durant la nébulisation et que la masse relative de principe actif (masse de principe actif / [masse du principe actif + masse des excipients]) était constante durant toute la nébulisation. Cette méthode gravimétrique était comparée aux méthodes de dosage des médicaments basées sur la mesure par spectrophotométrie (terbutaline), la mesure par HPLC (tobramycine) et la mesure électrochimique (fluorure de sodium) (NFEN13544-1, 2001)

MATERIEL ET METHODES

Montage expérimental pour la mesure de la masse inhalable

Les nébuliseurs étaient connectés à un respirateur (Harvard, U.S.A.) réglé pour la tobramycine à une fréquence de 20 cycles/min, un volume courant de 400 ml, et un rapport inspiration/expiration de 35/65. Pour la nébulisation de la terbutaline et du NaF le respirateur était utilisé avec une fréquence de 15 cycles/min, un volume courant de 500 ml, et un rapport inspiration/expiration de 1 (Figure 1). Un porte filtre contenant un filtre Pari non absorbant (Pari, Starnberg, Germany) était utilisé pour la filtration de la terbutaline et du NaF, un autre type de porte filtre contenant un filtre Gelman absorbant

(Pari, Starnberg, Germany) était utilisé pour la filtration de la tobramycine. Les porte-filtres étaient interposés entre le nébuliseur et la pompe respiratoire. Les filtres étaient changés toutes les 5 minutes jusqu'à une minute après le début du désamorçage du nébuliseur.

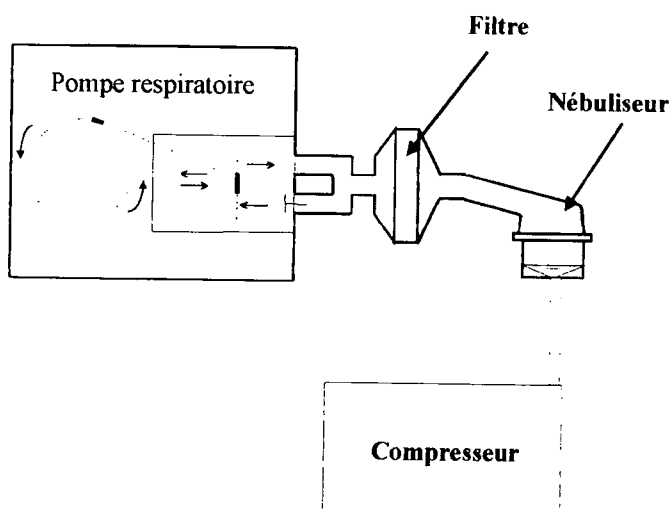


Figure 1 : Schéma du montage expérimental pour la mesure de la masse inhalable par filtration pour un modèle de séance d'inhalation par embout buccal

Nébuliseurs

3 nébuliseurs à venturi actif Pari LC+® (Pari, Stanberg, Germany) connectés à un compresseur Pulmo Aide 5650D® (Devilbiss, U.S.A) et 3 nébuliseurs à venturi actif Atomisor NL9M® (DTF, Saint Etienne, France) connectés à un compresseur Abox+® (DTF, Saint Etienne, France) étaient testés avec une solution de NaF (25mg de NaF/2.5 ml), une solution de terbutaline (Bricanyl®, Astra Zeneca, France; 10mg de terbutaline/4ml) et une solution de tobramycine (Tobi™, Chiron, U.S.A.; 300mg de tobramycine/5ml).

3 nébuliseurs pneumatiques classiques Microneb® (Europe Medical, Bourg-en-Bresse, France) utilisés avec de l'air comprimé à 8 lmin^{-1} étaient testés avec une solution de NaF (25mg de NaF/2.5 ml) et une solution de terbutaline (Bricanyl®, Astra Zeneca, France, 10mg de terbutaline/4ml).

3 nébuliseurs ultrasoniques LS2000® (Syst'am, France) avec le système Control'dose® (Syst'am, France) étaient testés avec une solution de terbutaline (Bricanyl®, Astra Zeneca France, 10mg de terbutaline/4ml).

Méthode Gravimétrique

Toutes les mesures étaient réalisées à une hygrométrie comprise entre 35% et 55%. La balance de mesure avait une précision de 0.01mg (Precisa 40SM-200A, Sartorius, Bradford, U.K.). La masse inhalable était déterminée par la différence de poids des filtres secs avant et après nébulisation corrigée de la masse relative de principe actif contenue dans le résidu sec collectée sur le filtre.

Une étape préliminaire à cette méthode était de vérifier le séchage total des filtres dans des conditions données. Pour cela nous avons pesé 9 filtres propres avec la balance de précision (7 filtres Pari et 2 Gelman) puis nous avons nébulisé de l'eau pure (2 ml à 5 ml de charge dans les nébuliseurs) dans les conditions expérimentales décrites auparavant en utilisant tous les nébuliseurs. Les filtres étaient alors séchés à l'air ambiant durant 24 heures puis à nouveau pesés. Les résultats ont montré qu'il n'y avait pas de différence de poids entre les filtres avant nébulisation et après séchage de l'eau distillée collectée (différences inférieures à la précision de la balance). Ces résultats confirment l'évaporation totale en 24h et à l'air ambiant de l'eau collectée sur les filtres.

La masse relative de principe actif (τ) contenue dans la masse totale de soluté du médicament (principe actif + excipients) collectée sur les filtres était déterminée avec six filtres Pari et trois filtres Gelman. 2.5 mg de terbutaline (1 ml de solution à une concentration de 2.5 mg/ml) était déposé par

pipetage sur chacun des 3 filtres Pari ; 60 mg de tobramycine (1 ml de solution à une concentration de 60 mg/ml) était déposé par pipetage sur chacun des 3 filtres Gelman ; et 10 mg de NaF (1 ml de solution à une concentration de 10 mg/ml) était déposé par pipetage sur chacun des 3 autres filtres Pari. Tous les filtres étaient séchés à l'air ambiant durant 24 heures. La différence entre le poids de chacun des filtres après séchage de la solution déposée et le poids des filtres avant dépôt de solution était calculé pour la terbutaline (Δ_{terb}), la tobramycine (Δ_{tobr}) et le NaF (Δ_{NaF}). τ était calculé (τ_{terb} pour la terbutaline, τ_{tobr} pour la tobramycine, et τ_{NaF} pour le NaF) par le ratio entre la masse de principe actif déposé sur les filtres (2.5 mg pour la terbutaline, 60 mg pour la tobramycine, et 10 mg pour le NaF) et Δ ($\tau_{\text{terb}} = 2.5 \text{ mg} / \Delta_{\text{terb}}$; $\tau_{\text{tobr}} = 60 \text{ mg} / \Delta_{\text{tobr}}$; $\tau_{\text{NaF}} = 10 \text{ mg} / \Delta_{\text{NaF}}$). La masse inhalable de soluté nébulisée était calculée par la différence de poids entre les filtres après séchage de l'aérosol collecté durant la nébulisation et le poids des filtres propres avant la nébulisation (Δ_{output}). La masse inhalable de principe actif était calculée par le produit entre la masse inhalable de soluté et la masse relative de principe actif (masse inhalable de principe actif = $\Delta_{\text{output}} \tau$).

Méthodes de dosage

Méthode spectrophotométrique (dosage de la terbutaline)

Des filtres Pari étaient placés dans 30 ml de NaOH à 0.1N et centrifugés pendant 15 minutes à 4500g. La terbutaline extraite était mesurée en utilisant un spectrophotomètre préalablement calibré. La méthode de dosage par spectrophotométrie étant basée sur la mesure de la terbutaline extraite du filtre, il était nécessaire de vérifier la qualité du processus d'extraction de la terbutaline contenue dans les filtres. La relation entre la quantité de principe actif contenue dans les filtres et la quantité de principe actif extraite des filtres est définie par l'équation de l'efficacité de l'extraction et est calculée par la méthode décrite ci après.

L'équation de l'efficacité de l'extraction était établie par dosage de quantités connues de terbutaline comprises entre 0.5mg et 12.5mg déposées par pipetage sur les filtres. L'extraction des filtres était réalisée comme expliqué ci dessus et la concentration en terbutaline mesurée par spectrophotométrie à 243nm. Les résultats obtenus par extraction des filtres étaient comparés aux résultats obtenus avec un dépôt direct des mêmes quantités de terbutaline dans 30 ml de NaOH. Les résultats étaient analysés statistiquement par une régression linéaire et confirmaient l'extraction totale de la terbutaline ($y=1.01x + 0.00$, $r=0.99$, $n=21$).

Méthode HPLC (Dosage de la tobramycine)

Les filtres étaient broyés dans 50 ml d'eau distillée et centrifugés à 4500g durant 15 minutes. La tobramycine extraite était déterminée en utilisant une méthode HPLC. Les dosages HPLC étaient effectués à l'hôpital Armand Trousseau dans le laboratoire du Pr Benoit par J. Bordenave selon la méthode dérivée de Barends et al (Barends et al., 1981). La terbutaline contenue dans les filtres était alors calculée par l'équation de l'efficacité de l'extraction.

L'équation de l'efficacité de l'extraction était établie par dosage de quantités connues de tobramycine comprises entre 0.72mg et 180mg déposées par pipetage sur les filtres. L'extraction des filtres était réalisée comme expliqué ci-dessus et la concentration en tobramycine mesurée par HPLC. Les résultats obtenus par extraction des filtres étaient comparés aux résultats obtenus avec un dépôt direct des mêmes quantités de tobramycine dans 50 ml d'eau pure. Les résultats étaient analysés statistiquement par une régression linéaire et montraient l'extraction partielle de la tobramycine ($y=1.20x - 0.18$ $r=0.98$, $n=89$). L'extraction de la tobramycine n'étant pas complète, un facteur correctif de 20% était appliqué pour toutes les mesures par HPLC de la masse inhalable de tobramycine.

Méthode électrochimique (Dosage du NaF)

Les filtres Pari étaient immergés durant 12 heures dans 20ml du solution de TISAB à 25% (Reagecon, Shannon, Ireland). Le NaF extrait était ensuite dosé par une électrode à fluorure (Combinaison fluorure electrode, Orion, Beverly Hills, U.S.A.).

Analyse statistique

L'analyse statistique était basée sur les hypothèses que la masse relative de principe actif contenu dans le médicament (τ) était constante durant toute la nébulisation pour chaque solution et que le principe actif n'était pas altéré durant la nébulisation.

La corrélation entre la méthode gravimétrique et les méthodes de dosage en terme de masse inhalable de principe actif était obtenue par régression linéaire. Une corrélation entre la méthode gravimétrique et les méthodes de dosage en terme de fraction inhalable était également obtenue par régression linéaire. Un test Bland - Altman (Bland et al., 1999) (Bland et al, 1986) était utilisé pour comparer la méthode gravimétrique aux méthodes de dosages.

RESULTATS

Les masses relatives de principes actifs (τ) étaient de 23 % pour la terbutaline, 55% pour la tobramycine et 100% pour le NaF.

La masse inhalable de soluté (Δ output) avec le Brycanil® était en moyenne de 14.3 mg pour le Pari LC+® et l'Atomisor NL9M®), 11.7mg pour le Microneb ®, et 16.1mg pour le LS2000®. Avec la Tobit™, elle était en moyenne de 154.2 mg pour le Pari LC+® et de 160.2mg pour l'Atomisor NL9M®; avec le NaF, elle était en moyenne de 6.7 mg pour le Pari LC+®, 6.9 mg pour l'Atomisor NL9M® et de 5.2 mg pour le Microneb ®.

Il y avait une très bonne corrélation entre la méthode gravimétrique (en abscisse) et les méthodes de dosage (en ordonnée) en terme de masse inhalable de principe actif, et ceci pour l'ensemble des données acquises ($y = 1.00x - 0.02$, $r^2 = 0.99$, $n = 27$, figure 2).

La figure 3 démontre également la corrélation entre la méthode gravimétrique (en abscisse) et les méthodes de dosage (en ordonnée) en terme de fraction inhalable ($y = 1.02x - 0.01$, $r = 0.97$, $n = 27$). La figure 4 représente le test Bland - Altman qui montre l'équivalence entre la méthode gravimétrique et les autres méthodes de dosage. Dans cette figure, les différences (moyenne plus ou moins deux écarts types) entre la méthode gravimétrique et les méthodes de dosage sont proches de 10%, ceci démontrait l'équivalence de la méthode gravimétrique par rapport aux méthodes de dosages.

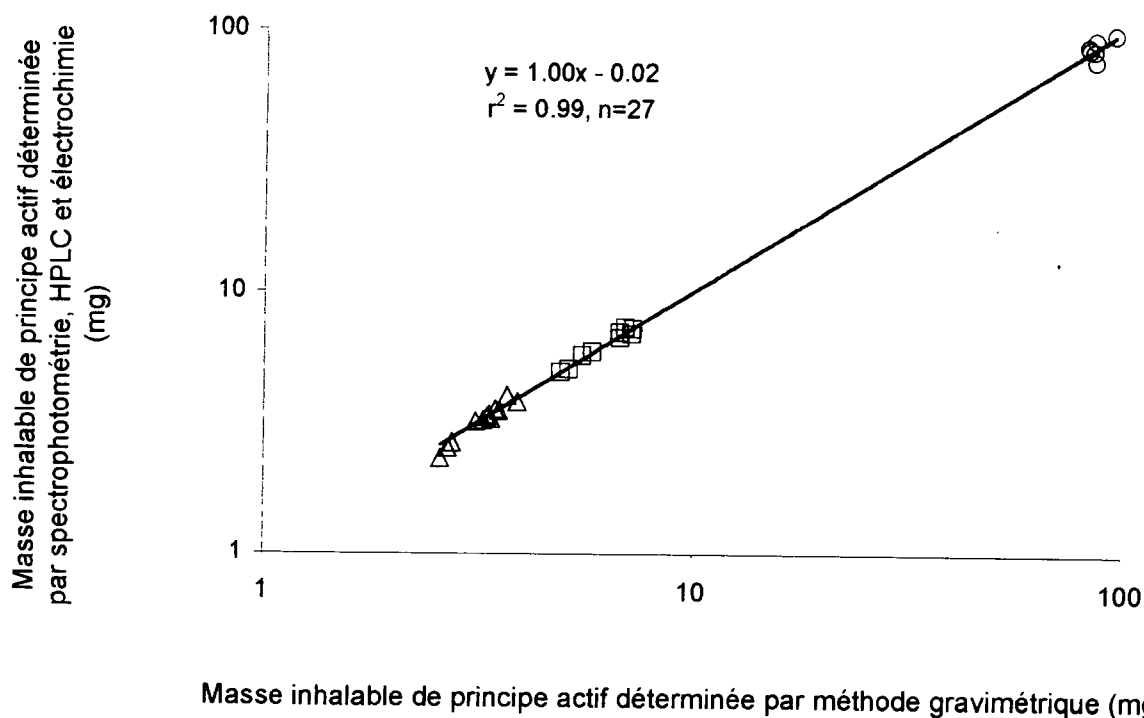


Figure 3.2: Corrélation entre la méthode gravimétrique et les méthodes de dosage en terme de mesure de masse inhalable de principe actif (triangles : terbutaline, cercles : tobramycine, carrés : NaF)

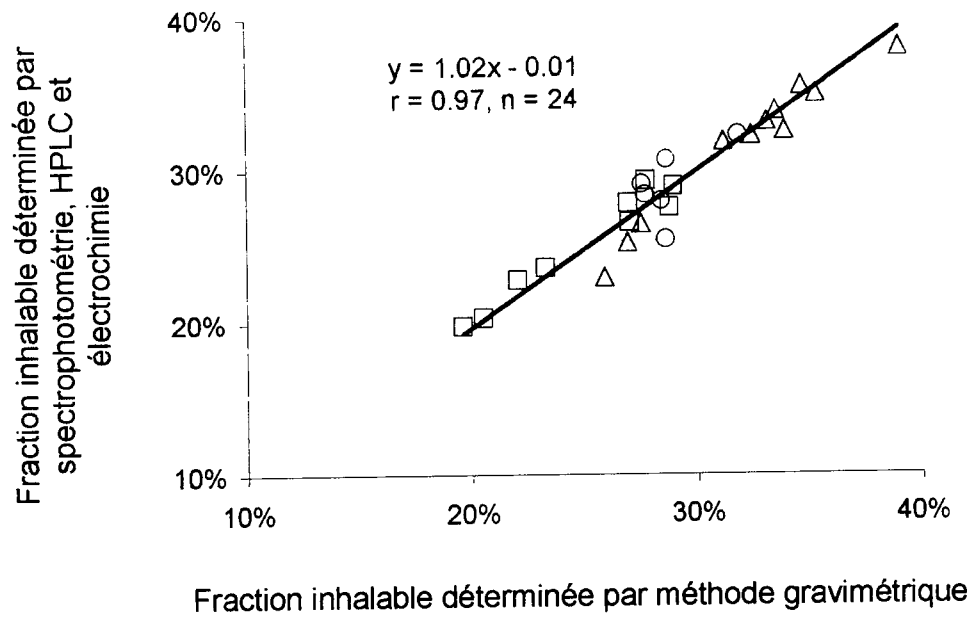


Figure 3.3: Corrélation entre la méthode gravimétrique et les méthodes de dosage en terme de mesure de fraction inhalable (triangles : terbutaline, cercles : tobramycine, carrés : NaF)

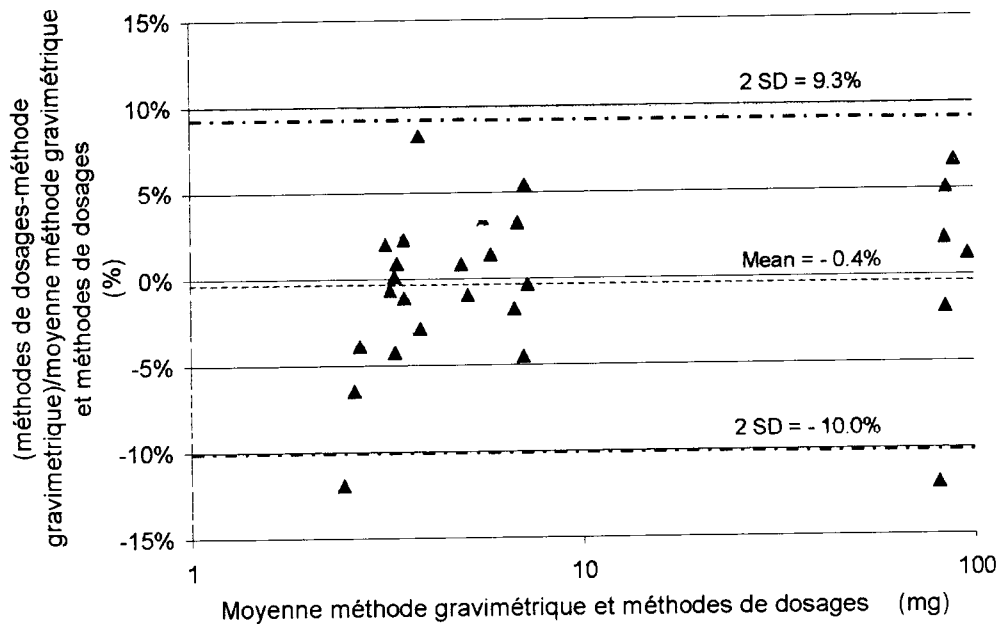


Figure 3.4: Test Bland - Altman permettant de comparer la méthode gravimétrique aux méthodes de dosages

CONCLUSION

Cette étude montre la validité de la méthode gravimétrique pour la mesure de la masse inhalable lorsqu'elle est utilisée sur des filtres dans des conditions standardisées et contrôlées.

Pour montrer la robustesse de cette méthode nous avons utilisé 2 types de filtres (un absorbant et un non absorbant), 2 solutions médicamenteuses (terbutaline et tobramycine), une solution de référence (NaF) et 4 nébuliseurs différents (2 pneumatiques à venturi actifs, 1 pneumatique classique, un ultrasonique).

La première étape de notre étude a été de démontrer qu'à l'air ambiant et en 24h, l'évaporation de l'eau pure collectée sur filtre était totale et que par conséquent, il n'y avait pas de variation de poids du filtre (inférieure à 0.01mg) pour différentes conditions d'air ambiant (humidité comprise entre 35% et 55%).

La masse inhalable de soluté mesurée par le poids des filtres avant nébulisation et après séchage des filtres ayant collecté l'aérosol (Δ_{output}) permet pour un type de solution de déterminer les performances des nébuliseurs entre eux. Par contre elle ne permet pas de connaître la masse de principe actif inhalable.

Pour calculer la masse de principe actif contenue dans la masse de soluté collectée, nous avons fait l'hypothèse que τ était constant durant toute la nébulisation et que le principe actif n'était pas altéré pendant la nébulisation. La corrélation en terme de masse inhalable de principe actif ($y = 1.00x - 0.02$, $r^2=0.99$, $n=27$) et le test de Bland - Altman entre la méthode gravimétrique et les autres méthodes confirment ces hypothèses avec les 3 solutions testées (NaF, terbutaline et tobramycine). Dans une étude précédente, il a été montré que la colimycine n'était pas altérée par le processus de nébulisation pneumatique et ultrasonique avec interface d'eau (Diot et al., 1997.). Or, de part sa structure moléculaire, ce principe actif semble être un des plus fragiles actuellement commercialisés, par conséquent nos résultats suggèrent que la méthode gravimétrique peut être appliquée sans vérification préalable pour la mesure de la masse inhalable des médicaments commercialisés pour la nébulisation. Par contre, dans le cadre d'un développement d'un nouveau médicament contenant une structure spécifique, il est nécessaire de vérifier la stabilité après nébulisation.

La limitation de la méthode gravimétrique réside dans la masse de soluté collecté sur filtre. Cette masse doit être suffisante pour permettre une mesure précise de la différence du poids des filtres. Pour augmenter la masse collectée, il est alors recommandé d'augmenter la durée de collection de l'aérosol tout en contrôlant la saturation des filtres.

Nous concluons que la méthode gravimétrique basée sur le séchage des filtres est une méthode précise permettant la mesure de la masse inhalable. Cette méthode facile et rapide est particulièrement intéressante pour les applications industrielles.

REFERENCES

- Barends, D., Zwaan, C., Hulshoff, A., 1981, Micro-determination of tobramycin in serum by high-performance liquid chromatography with ultraviolet detection, *Journal of Chromatographic Science*, 225: 417-426
- Bland, J.M., Altman, D.G., 1986, Statistical method for assessing agreement between two methods of clinical measurement, *The Lancet*, 1: 307-310
- Bland, J.M., Altman, D.G., 1999, Measuring agreement in method comparison studies. *Statistical methods in medical research*, 8: 135-160
- Coates, A., Macneish, C.F., Lands, L.C., Smountas, A., Meisner, D., Kelemen, S., Vadas, E. B., 1998, Factor influencing the rate of solute output during the course of weigh nebulization, *J Aerosol Med*, 11 : 101-102
- Diot, P., Gagnadoux, F., Martin, C., Ellataoui, H., Furet, Y., Breteau, M., Boissinot, E., Lemarié, E., 1997, Nebulization and anti-Pseudomonas aeruginosa activity of colistin, *Eur Respir J*, 10 : 1995-1998
- NFEN13544-1, 2002, Matériel respiratoire thérapeutique
- Smaldone, G.C., 1994, Solute Delivery by nebulization : "Reality testing ", *J Aerosol Med*, 7: 213-216
- Tandon, R., McPeck, M., Smaldone, G.C., 1997, Measuring Nebulizer Output, *Chest*, 111: 1361-1395

MISE AU POINT D'UN MODELE EXPERIMENTAL DE CHARBON D'INHALATION POUR L'EVALUATION DE PROTOCOLES PROPHYLACTIQUES ET THERAPEUTIQUES

J.C. PAUCOD (1), T. GAUMIER(1), F. RAMISSE(2), C. LOUVEAU(2), F. GOUSSENS(3),
MA. LABARRE(2), M. LEVY(3), M. MOCK(3) et D. VIDAL(1) .

(1) Département de Biologie des Agents Transmissibles, Centre de recherches du Service de Santé des Armées "Emile PARDE", 38702 La Tronche. jcpaucod@crssa.net

(2) Laboratoire de Microbiologie, Centre d'Etudes du Bouclier 91170 Vert-le-Petit.

(3) Unité des Toxines et Pathogénie Bactérienne. Institut Pasteur. 75725 Paris.

TITLE

Assessment of an experimental model of inhalation anthrax for the evaluation of prophylactic and therapeutic protocols

ABSTRACT

The respiratory route is a natural way of infection. The aim of this study was to compare two airborne experimental infection methods. Anthrax spores were used as challenge agent. On a SWISS mice model, we compared the theoretical inhaled dose (TID), the actual inhaled dose (AID) and the lethal dose 50% (LD₅₀) between an aerosol and an intranasal inoculation. Results showed a better linear relation between the theoretical inhaled dose and the actual inhaled dose in the case of an aerosol than in the case of an intranasal inoculation. A greater number of spores reached the lower respiratory tract (bronchioles, alveolar ducts and alveoli) with a medium ratio AID/TID at 24%. On the contrary the intranasal inoculation medium ratio AID/TID was only 4%. However, there was only a slight difference between aerosol LD₅₀ ($3,05 \times 10^4$ spores) and intranasal inoculation LD₅₀ ($6,62 \times 10^4$ spores).

RESUME

La voie respiratoire est une voie naturelle d'infection d'un organisme. L'objet de cette étude est de comparer deux méthodes d'infection expérimentale par voie respiratoire. Ces modèles doivent servir à l'élaboration de nouveaux schémas de prévention et/ou de traitement. L'agent utilisé est la spore du bacille du charbon *Bacillus anthracis*. Nous avons comparé l'aérosolisation et l'instillation nasale de spores sur des souris SWISS et déterminé pour celles-ci les doses théoriques inhalées (DTI), les doses réelles inhalées (DRI) et la dose létale 50 (DL₅₀). Les résultats montrent une meilleure linéarité entre la DTI et la DRI lors de l'aérosolisation par rapport à l'instillation nasale. Vraisemblablement, une plus grande partie de l'aérosol atteint les voies aériennes profondes : bronchioles respiratoires, canaux et sacs alvéolaires avec un ratio DRI/DTI variant de 44% à 15% (rendement moyen 24%). Dans le cas de l'instillation nasale, on observe une grande variabilité de l'inoculum réellement absorbé au niveau pulmonaire. Une grande partie de l'inoculum ne doit probablement pas dépasser les voies aériennes supérieures voire la sphère oro-pharyngée, le ratio DRI/DTI varie de 0,5% à 13% (rendement moyen 4%). Il n'y a pas de différence significative entre la DL₅₀ par aérosol et par instillation nasale. Cet écart peut cependant atteindre un facteur 10 suivant les expérimentations, la DL₅₀ par aérosol étant systématiquement plus basse que par instillation nasale. L'aérosol est le modèle qui mime le mieux une infection par voie respiratoire, mais il nécessite l'utilisation de matériels spécifiques et une certaine technicité. Ces modèles seront par la suite utilisés pour l'étude des autres bactéries présentant un risque analogue.

INTRODUCTION



Les événements de la fin de l'année 2001 ont mis en évidence les problèmes liés au risque biologique terroriste réel ou supposé. Dans ce cadre, la dispersion d'aérosols infectieux représente un des risques les plus probables. Depuis un certain temps, il y a de fait un regain d'intérêt pour les modèles expérimentaux d'infection par voie respiratoire. D'autre part, un certain nombre de problèmes de santé publique, comme celui des légionelloses, recourent cette thématique. La mise au point de modèles expérimentaux d'infections par voie aérienne est cruciale. Ces modèles doivent servir à l'élaboration de nouveaux schémas de prévention et/ou de traitement. Ils seront par la suite utilisés pour l'étude des autres bactéries présentant un risque analogue.

Si on connaît la capacité d'un organisme, protégé ou non, à répondre à une infection à des doses infectantes faibles, la question reste posée en cas d'inhalation de doses massives d'un agent infectieux, quant à l'efficacité d'une vaccination ou d'un traitement par antibiothérapie. L'objet de cette étude est de comparer deux méthodes d'infection expérimentale. La bactérie utilisée est le bacille du charbon *Bacillus anthracis* sous sa forme sporale, qui est considérée comme l'un des principaux agents susceptibles d'être utilisés en tant qu'arme biologique.

Pour que les spores jouent un rôle infectieux, elles doivent pénétrer profondément dans le tractus respiratoire, du fait de la présence de mécanismes de défense non spécifiques dans les voies aériennes supérieures (muqueuses) et dans la zone de conduction (cils, mucus) qui permettent leur élimination lors de la remontée vers la région bucco-pharyngée, par déglutition, sternutation ou expectoration. Suite à leur dépôt au niveau de la zone respiratoire, les spores sont phagocytées par les macrophages alvéolaires et sont, soit éliminées lorsque le macrophage regagne les bronchioles et est évacué par l'appareil muco-ciliaire, soit libérées lors de la dégénérescence du macrophage dans l'alvéole pulmonaire, soit transportées dans les nodules lymphatiques du système trachéo-bronchique en environ 4 heures, où elles peuvent germer à l'intérieur des macrophages, se multiplier et en environ 18 heures produire les toxines (PA, LF, EF) qui causeront une toxémie et participeront à la septicémie (Ross, 1957). Le dépôt dans les voies aériennes supérieures ne déclenche pas automatiquement un charbon, mais peut provoquer des oedèmes massifs de la face et de la tête du fait de la sécrétion de la toxine oedémateuse, cet état peut persister un ou deux jours après la mort (Druett et col., 1953). La déglutition de spores non protégées est peu susceptible d'entraîner un charbon intestinal comme l'ont montré Druett et col. (1953) en faisant ingérer 1×10^8 spores à des cobayes ou des lapins sans parvenir à déclencher la maladie.

MATERIELS ET METHODES

Les expériences ont été conduites dans un laboratoire de sécurité biologique de niveau 3 (NSB3) (Biosafety Level 3 : BSL3).

Souche bactérienne

Tous les essais ont été réalisés avec des spores de la souche 9602 de *B. anthracis*. Les suspensions bactériennes dispersées ou instillées de $7,5 \times 10^4$ à $1,5 \times 10^9$ spores/mL sont préparées en eau distillée stérile à partir d'un stock conservé en milieu liquide à 4°C.

Animaux

Les animaux utilisés dans cette étude sont des souris femelles SWISS (lignée non consanguine) (R. Janvier). Les lots sont composés respectivement de 10 souris pour les aérosols et 8 souris pour les instillations nasales et comportent en sus 2 animaux servant à déterminer les doses réelles inhalées. Les animaux sont suivis pendant 20 jours avant d'être euthanasiés et certains paramètres biologiques contrôlés (séroconversion, persistance des bactéries dans les poumons, ...).

Aérosol – Dose théorique inhalée

Les aérosols humides sont réalisés dans un caisson de 80 litres en légère dépression dans lequel les animaux sont maintenus en contention à l'aide d'un système où seul le museau est en contact avec l'aérosol. L'ensemble se trouve localisé dans une boîte à gant elle-même maintenue en dépression. L'extraction pour les deux systèmes est réalisée à travers un double étage de filtration HEPA (YSEBAERT). Les suspensions de spores bactériennes de concentrations croissantes sont dispersées grâce à deux mini-

nébuliseurs (particules de 0,1 à 6 µm) avec un débit unitaire de 12 litres par minute pendant 45 minutes. Durant l'aérosol, la concentration de celui-ci est évaluée par un prélèvement pendant une minute de 11 litres d'air à l'aide d'un Impinger contenant 20 millilitres d'eau distillée stérile. Le dénombrement des spores dans ce prélèvement permet d'estimer la dose théorique inhalée (DTI) en utilisant la formule de Guyton (1947) (volume respiratoire en millilitres/minute = $2,1 \times (\text{poids en gramme})^{3/4}$) et la durée de l'aérosol.

Instillation nasale -- Dose théorique inhalée

L'instillation nasale est réalisée en déposant bilatéralement 50 µL d'une suspension de spores sur les orifices nasaux des souris préalablement soumises à une légère anesthésie. La dose théorique inhalée (DTI) correspond à la quantité de spores contenue dans l'inoculum.

Dose réelle inhalée

Dans les deux cas, à la fin de chaque aérosolisation et de chaque instillation nasale (temps T_0), deux souris de chaque lot sont sacrifiées, leurs poumons prélevés, broyés et mis en culture pour numération afin de déterminer les doses réelles inhalées (DRI).

Dose létale 50

La dose létale 50 (DL_{50}) pour les deux expériences est calculée à J+20 en utilisant la méthode de Reed et Muench (1938).

RESULTATS

Génération de l'aérosol

Lors de l'aérosolisation des suspensions de densité croissante, la relation linéaire entre la concentration du nébuliseur en spores par millilitre et celle de l'aérosol correspondant en spores par litre est restée stable ($R^2=0,99$), quelle que soit la concentration initiale en spores. On constate un écart d'un facteur de dilution 1×10^3 entre la concentration en spores par millilitre de solution et la concentration en spore par litre d'air. En l'absence d'une étude fine sur la granulométrie de l'aérosol pour ces expériences, il n'apparaît pas d'effet notable sur la génération de celui-ci.

Dose théorique inhalée - dose réelle inhalée

Le calcul de la dose théorique inhalée repose sur l'utilisation de la formule de Guyton (1947), le volume respiratoire en millilitres par minute = $2,1 \times (\text{poids en gramme})^{3/4}$. Le poids moyen des souris était de $29,4 \pm 1,8$ g et le volume inhalé moyen pendant les 45 minutes de l'aérosol a été de 1192 ± 56 mL. La DRI correspond à ce volume multiplié par la concentration en spores/mL de l'aérosol. Dans le cas de l'instillation nasale, il correspond au nombre de spores contenu dans les 50 µL du dépôt intra nasal.

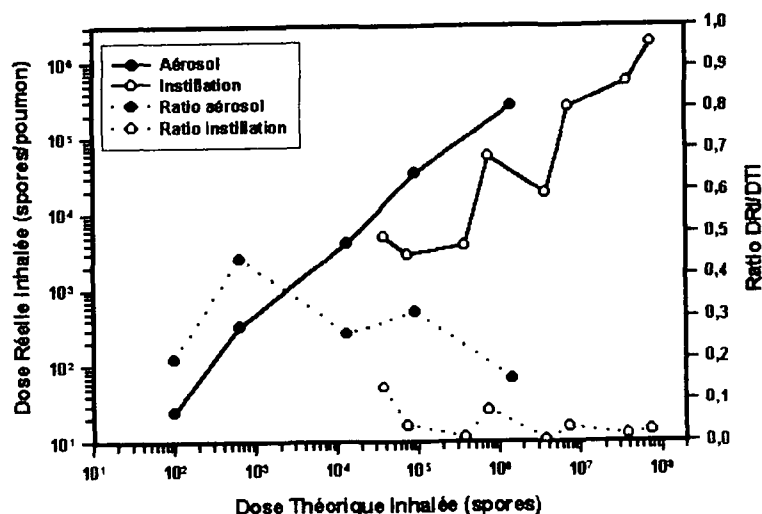


Figure 1 : Relation entre la dose réelle inhalée (DRI) et la dose théorique inhalée (DTI) pour l'aérosol (—●—) et l'instillation nasale (—○—) et le rendement DRI/DTI en fonction de la DTI pour l'aérosol (···●···) et l'instillation nasale (···○···).

La dose réelle inhalée a été calculée pour chaque lot par prélèvement des poumons sur 2 souris, suivie d'un broyage, d'une mise en culture et d'une numération.

Il existe une quasi-linéarité entre la DRI et la DTI lors de l'aérosol (Fig. 1) et le coefficient de corrélation est de 99%. Le rendement entre la DRI et la DTI varie 15 à 44% et semble décroître au fur et à mesure que la concentration de la suspension aérosolisée augmente. Si la taille moyenne des particules augmente avec la viscosité de la solution, il est possible qu'un plus grand nombre d'entre elles n'atteigne pas les zones respiratoires. Dans le cas de l'instillation nasale, la relation linéaire est plus chaotique, surtout pour les doses les plus faibles et le coefficient de corrélation n'est plus que de 85%. Quant au rendement, il oscille entre 0,5 et 13% avec une moyenne à 4%. Il est probable qu'une grande partie de l'inoculum ne dépasse pas les voies aériennes supérieures. Ce rendement ne semble pas lié à la concentration de la suspension utilisée pour l'instillation, mais peut-être plus au niveau d'anesthésie et au réflexe de déglutition de la souris, ainsi qu'à l'état liquide de la suspension instillée.

Dose létale 50%

Les lots de souris ont été suivis pendant 20 jours, la survie a été notée (Fig. 2 et 3) et la DL₅₀ a été calculée selon la méthode de Reed et Muench (1938). Malgré la diversité des résultats sur les DRI, le calcul de la DL₅₀ ne montre pas de différence notable, 3,65x10⁴ spores pour l'aérosol et 6,62x10⁴ spores pour l'instillation nasale. Cet écart peut cependant atteindre un facteur 10 suivant les expérimentations, la DL₅₀ par aérosol étant systématiquement plus basse que par instillation nasale.

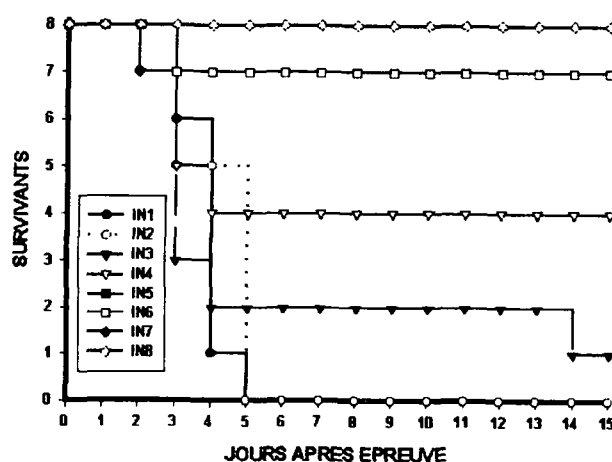
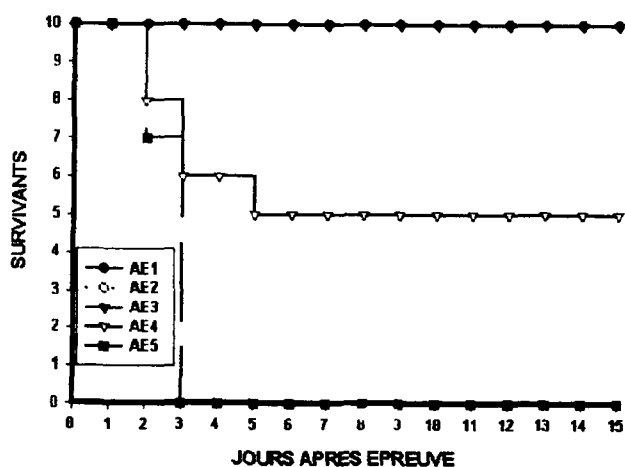


Figure 2 : Courbes de survie des souris ayant reçu des spores par aérosol. Dose réelle inhalée (DRI) en spores après numération AE1 : 24, AE2 : 3,33x10², AE3 : 4,08x10³, AE4 : 3,45x10⁴, AE5 : 2,62x10⁵.

Figure 3 : Courbes de survie des souris ayant reçu des spores par instillation nasale. Dose réelle inhalée (DRI) en spores après numération IN1 : 1,77x10⁶, IN2 : 5,52x10⁵, IN3 : 2,56x10⁵, IN4 : 1,83x10⁴, IN5 : 5,6x10⁴, IN6 : 3,77x10³, IN7 : 2,86x10³, IN8 : 4,95x10³.

DISCUSSION

Les études antérieures menées sur *Legionella pneumophila* avec le même type d'aérosoliseur (Nowicki et col, 1987), ont permis de mettre en évidence l'existence dans l'aérosol humide de classes de particules pouvant abriter ou être constituées de bactéries viables. La fraction granulométrique comprise entre 1 et 6 µm correspond à la taille des particules infectieuses pouvant pénétrer profondément dans le tractus respiratoire de petits animaux de laboratoire, dont les dimensions des alvéoles et des sacs pulmonaires sont plus faibles que celui de l'homme. Cette répartition, ainsi que le volume total des particules ne subissent pas de modifications importantes (+14% sur le volume) entre une nébulisation d'eau et celle d'une suspension de bactéries. Si l'on reprend les données de Druett et col. (1953), on peut estimer qu'un aérosol de même répartition est susceptible de contenir au maximum environ 2x10⁷ spores par litre d'air. Les données de Harper et Morton (1953) comme celles de Druett et col. (1953) sur la déposition des particules dans les voies respiratoires concernent des aérosols secs, dont le comportement n'est peut-être pas tout à fait identique à celui d'un aérosol humide. Le recoupement des données semble cependant montrer qu'il n'y a pas de différences majeures. Les particules se déposent dans les voies aériennes selon des mécanismes d'impaction, d'interception, de sédimentation, de diffusion brownienne ou de dépôt électrostatique. Pour des

particules d'une taille supérieure à $0,5 \mu\text{m}$, l'impaction est le phénomène de dépôt le plus important dans les voies aériennes supérieures jusqu'aux environs de la sixième bifurcation et la sédimentation gagne en importance dans les petites bronches et les bronchioles surtout lorsque la vitesse est assez faible. Cette probabilité de dépôt augmente avec la durée du temps de présence (Schlesinger, 1955).

Lors de la génération de l'aérosol, il est possible que pour les solutions les plus concentrées, on assiste à une augmentation du diamètre moyen des particules ou de leur densité et donc de la modification du site de dépôt (voies aériennes supérieures versus bronchioles). Ceci peut expliquer pourquoi le rendement observé (DRI/DTI) dans nos expériences a tendance à diminuer vers les plus fortes concentrations.

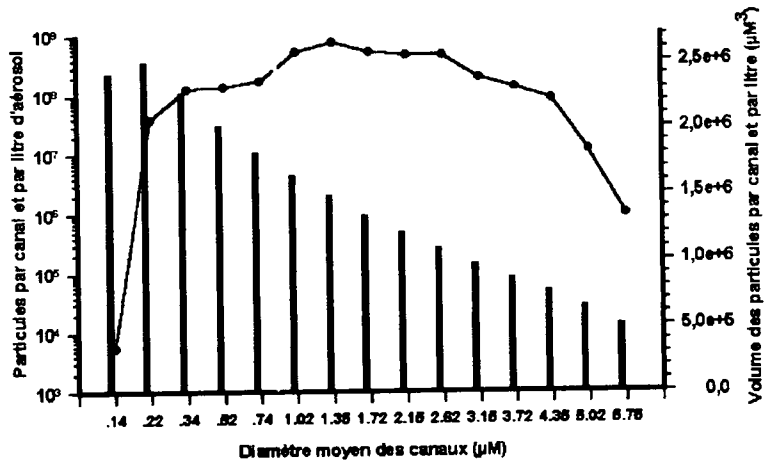
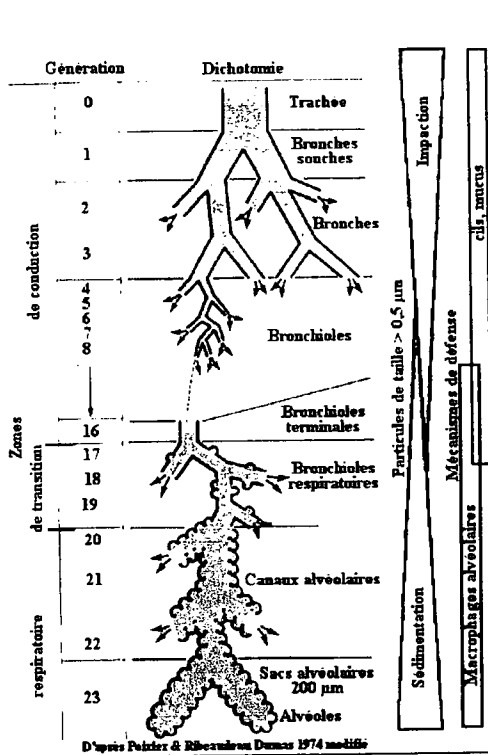


Figure 4 : Répartition granulométrique (■) et volume cumulé (—●—) des particules dans un aérosol d'eau effectué avec une buse de nébulisation identique à celle des expériences. Limite de répartition (trait gris) et nombre total théorique de spores pouvant être contenues dans les particules (Druett et col, 1953).

Figure 5 : Schéma simplifié de l'arborescence pulmonaire : zone d'impaction et de sédimentation pour des particules d'une taille > $0,5 \mu\text{m}$, répartition schématisée des divers mécanismes de défense d'après Poirier & Ribeau-deau-Dumas 1974 modifié

Dans le cas de l'instillation nasale, il existe une variabilité dans la DRI qui est peut-être liée à la profondeur de l'anesthésie et au réflexe de déglutition de la souris et cela entraînerait une variabilité dans la dose inhalée entre animaux d'un même lot. Cette dernière remarque est renforcée par le fait qu'à J+20, les dénombrements effectués sur les poumons des animaux survivants montrent des quantités relativement identiques dans chaque lot pour ceux soumis à l'aérosol et une variabilité intra lot pour ceux soumis à l'instillation nasale. D'autant plus que l'instillation nasale peut entraîner une répartition inégale du volume liquidien entre les lobes pulmonaires.

Le sacrifice immédiatement après l'aérosol et l'instillation nasale peut entraîner une surestimation du nombre de spores réellement efficaces, car lors du prélèvement des poumons, une part plus ou moins grande de la trachée est récupérée, ainsi que les bronches de conduction. Or, dans la réalité, les spores contenues dans ces éléments seraient rejetées à plus ou moins long terme et ne joueraient qu'un rôle mineur dans l'établissement d'un charbon bactérien comme l'ont montré Druett et col (1953).

Malgré ces différences, on n'observe pas dans cette expérience de différence significative entre les DL₅₀ par aérosol ou instillation nasale.

CONCLUSION

Les deux modèles utilisés limitent l'exposition à la seule région nasale et permettent de diminuer l'impact que pourrait avoir un toilettage dans le renforcement d'une infection (génération de micro-aérosols). Ils montrent une bonne reproductibilité, au moins dans le cas des spores.

La DL₅₀ n'est pas significativement différente entre les deux modèles, mais lors d'autres expériences la DL₅₀ par aérosol a toujours été inférieure à celle obtenue par instillation nasale et parfois d'un facteur 10. La Dose

réelle inhalée (DRI) est délivrée plus régulièrement entre animaux dans le cas d'un aérosol, celui-ci mimant davantage une contamination aérienne que l'instillation nasale.

L'aérosol semble plus adapté pour les expériences avec un grand nombre de séries d'animaux, mais il demande pour sa réalisation, et ce surtout lorsqu'il s'agit de travailler sur des microorganismes de niveau de risque biologique 3, un matériel spécifique permettant d'intégrer toutes les contraintes expérimentales. Ses limites tiennent à la densité limitée en spores ou en bactéries viables que l'on peut produire par litre et la fragilité des microorganismes sous leur forme végétative qui rend difficile leur aérosolisation.

L'instillation nasale permet quant à elle de s'affranchir de certaines contraintes liées à la fragilité des microorganismes sous leur forme végétative, aux problèmes générés par le contrôle des brouillards infectieux et par les limites de densité des microorganismes dans les aérosols. Elle demande par contre une bonne maîtrise de l'anesthésie. Elle semble plus adaptée pour des expériences avec des séries moins nombreuses.

En fait, ces deux modèles ont des intérêts complémentaires dont il faut user à bon escient et il ne faut pas hésiter à les utiliser conjointement ou en complément.

Remerciements : pour leur aide technique à Alain GRASSEAU, Sophie MAIRE, Christelle DREFFIER, Françoise DESOR, Robert COLLET et Jean-Noël FORET

BIBLIOGRAPHIE

- Druett, H.A., Henderson, D.W., Packman, L. et Peacock, S. (1953) Studies on respiratory infection: I the influence of particle size on respiratory infection with anthrax spores. *J. Hyg. Camb.*, **51**, 359-371.
- Guyton, A.C. (1947) Measurement of the respiratory volumes of laboratory animals, *Am. J. Physiol.*, **150**, 70-77
- Harper, G.J. et Morton, J.D. (1953) The respiratory retention of bacterial aerosols : experiments with radioactive spores. *J. Hyg.*, **51**, 372-385.
- Nowicki, M., Bornstein, M., Paucod, J.C., Binder, P. et Fleurette J. (1987) Effect of culture medium on morphology and virulence of Legionella pneumophila serogroup 1, *Zbl. Bakt. Hyg.*, **A264**, 167-177.
- Reed, L.J. et Muench, H. (1938) A simple method of estimating fifty per cent endpoints, *Am. J. Hyg.*, **27**, 493-497.
- Ross, J.M. (1957) The pathogenesis of anthrax following the administration of spores by respiratory route, *J. Path. Bact.*, **73**, 485-494.
- Schlesinger, R.B. (1995) Deposition and clearance of inhaled particles. Dans *Concept in inhalation Toxicology* (Edité par McClellan, R.O. et Henderson, R.F.) Chapt. 8, pp. 191-224, Taylor et Francis, Washington. DC.

PERFORMANCE DES DEPOUSSIEREURS A MANCHES

ETUDE SUR MEDIA PLAN ET SUR PILOTE

*X. Simon^{1,2}, D. Bémer¹, S. Callé², D. Thomas², R. Régnier¹, P. Contal²

Laboratoire de Filtration des Aérosols

¹ INRS – Avenue de Bourgogne – 54501 Vandoeuvre les Nancy Cedex
² CNRS/LSGC – 1 rue Grandville – 54000 Nancy

TITLE

Performance of industrial pulse-jet dust collectors – Comparison between plane filter medium and filter bags.

ABSTRACT

Performances of two types of filter medias used in industrial collectors are studied during clogging and cleaning cycles. Experiments of filtration by micronic aerosol and pulse-jet cleaning are carried out on two different test rigs : one for the study of a plane filter media and one industrial dust bags collector. The aim of the study was to ratify results, concerning the evolutions of pressure drop and filtration efficiency, obtained with plane filter media, aid of comparison with results from the industrial collector. Close agreement was observed, which confirms the fact that the test rig for plane filter media makes a good representation of phenomenon. Nevertheless, some limits of the study of plane filter medias appear, in particular with cleaning or pulse-jet parameters.

RESUME

Cette étude a permis de caractériser les performances de deux types de médias filtrants soumis à des cycles de colmatage-décolmatage sur un banc d'essais pour médias plans d'une part, et sur un dépoussiéreur à manches, utilisant les mêmes types de médias, d'autre part. L'objectif était de comparer les évolutions de la perte de charge et de l'efficacité provenant de chacune des installations, lors de cycles de colmatage par des aérosols microniques et décolmatage par à-coup de pression à contre-courant. Les résultats montrent une bonne représentation des performances du dépoussiéreur à partir des essais sur médias plans. Le banc d'essais s'avère donc un bon outil de description des phénomènes de filtration et d'étude de médias utilisés en dépoussiérage industriel. Néanmoins, certaines limites apparaissent concernant l'étude sur médias plans, notamment pour les paramètres liés au décolmatage ou à l'à-coup de pression

INTRODUCTION

Un dépoussiéreur est constitué de médias filtrants se présentant généralement sous la forme de manches. Le fonctionnement cyclique de ces dépoussiéreurs, consistant en une alternance de cycles de colmatage-décolmatage, a été étudié. Les poussières filtrées entraînent un colmatage du média présentant deux régimes : un colmatage du filtre en profondeur (irréversible) et un colmatage de surface (réversible) où les particules se déposent en une couche appelée gâteau de filtration. La seconde phase de fonctionnement d'un dépoussiéreur industriel est le décolmatage dont l'objectif est de décoller les particules collectées principalement en surface du média filtrant pendant l'étape de colmatage. Le filtre étant ainsi régénéré, un nouveau cycle peut alors débuter. Ces résultats expérimentaux ont été particulièrement mis en évidence par les travaux de Callé et al.¹ (2002).

Les performances des médias filtrants constitutifs des dépoussiéreurs sont déterminées expérimentalement en les soumettant à des cycles de colmatage par des aérosols solides microniques et de décolmatage par à-coup de pression à contre-courant, technique la plus fréquemment rencontrée en milieu industriel. Les expériences ont été conduites sur un banc d'essais permettant de déterminer l'évolution de l'efficacité et de la perte de charge d'un échantillon de média plan au cours des cycles de filtration.

Cependant, l'étude des médias filtrants plans ne peut rendre totalement compte des performances d'une installation de taille réelle et il était donc nécessaire d'étudier également le fonctionnement d'un dépoussiéreur du commerce. Pour ce faire, un dépoussiéreur a été connecté à une veine d'essais

équipée afin de permettre notamment d'effectuer en continu le suivi de la perte de charge et de l'efficacité de filtration.

MOYENS D'ESSAIS

Le banc d'essais pour médias plans permet de suivre les paramètres de perte de charge et d'efficacité d'un échantillon de média de diamètre 130 mm soumis à des cycles de colmatage-décolmatage. Son schéma est représenté sur la Fig. 1.

La vitesse de filtration, $U_f = 2 \text{ cm.s}^{-1}$, est maintenue constante tout au long des cycles par un système de by-pass à l'amont du média, muni d'une vanne de régulation électropneumatique asservie à un débitmètre massique. Le porte-filtre a été choisi de forme cylindrique pour limiter les turbulences dans le flux empoussiéré arrivant à la surface du média filtrant. Le système de décolmatage par à-coup de pression est constitué d'une buse ($\varnothing 3 \text{ mm}$) d'arrivée d'air comprimé placée en aval du média. Son temps d'ouverture, contrôlé par une électrovanne temporisée, est fixé à 1 seconde et est suffisamment court pour assurer le choc de pression (impulsion générée de l'ordre de 10^4 Pa.s^{-1}). Enfin, la génération de l'aérosol est assurée par un générateur à brosse tournante de type Palas RGB 1000.

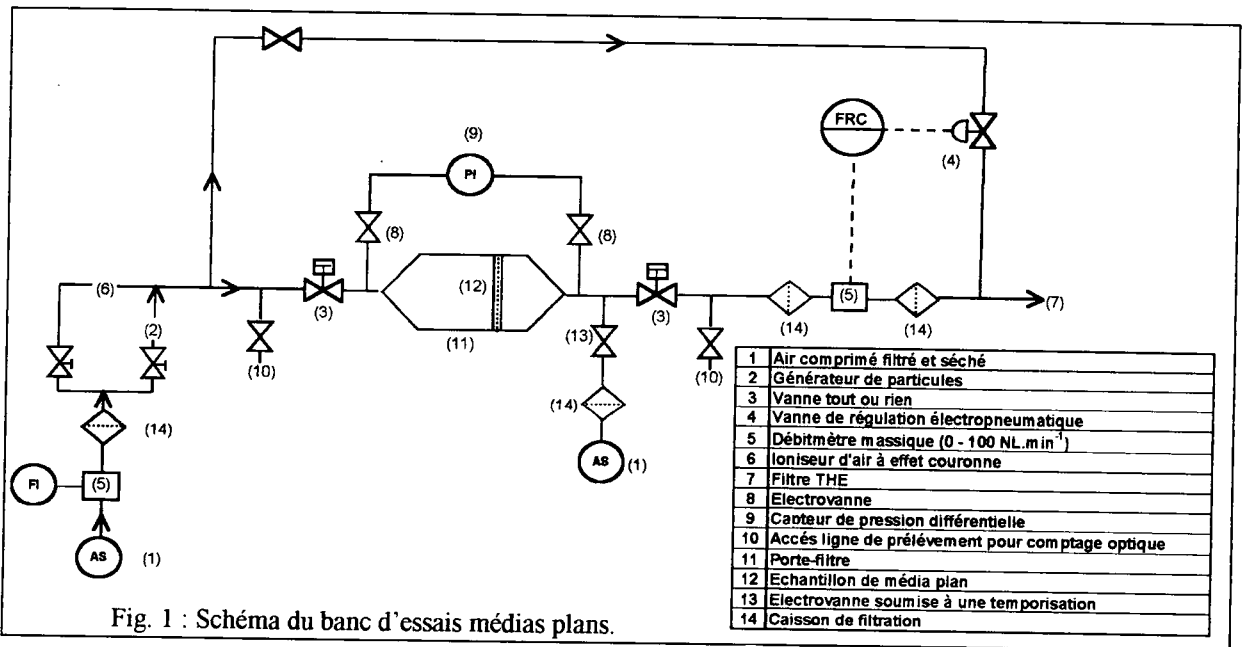


Fig. 1 : Schéma du banc d'essais médias plans.

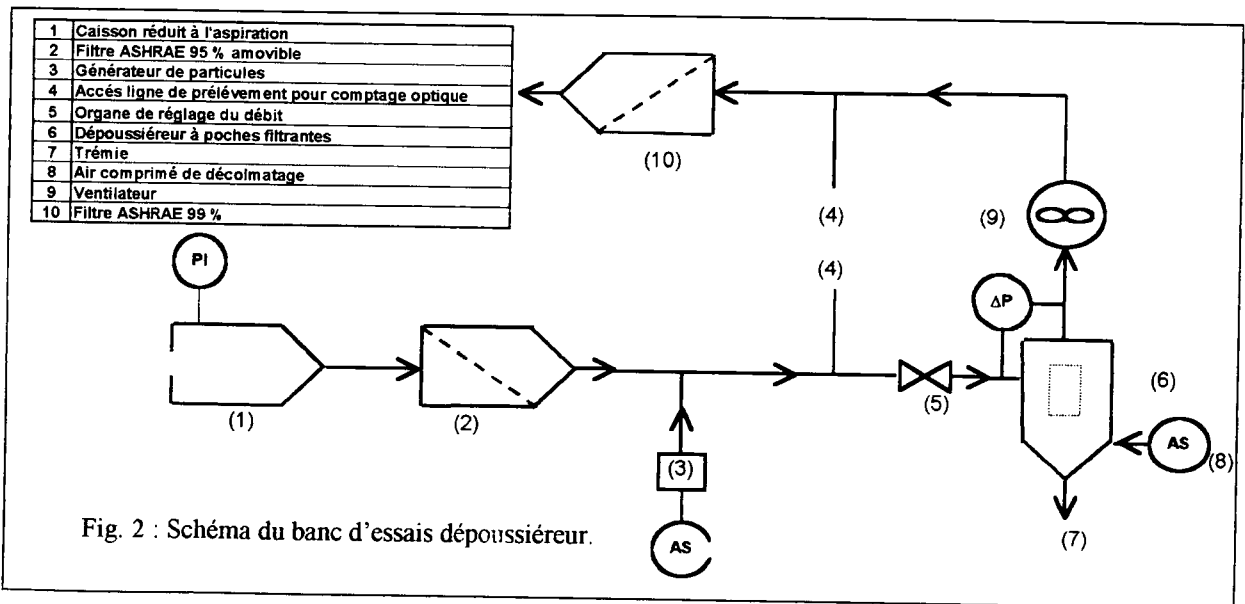


Fig. 2 : Schéma du banc d'essais dépoussiéreur.

Le banc d'essais dépoussiéreur permet de suivre les évolutions de la perte de charge et de l'efficacité pour 12 poches filtrantes (0,5 m × 1,5 m), développant une surface de filtration de 18 m², soumises aux mêmes cycles de colmatage-décolmatage. Son schéma est représenté sur la Fig. 2.

Une série de tubes d'injection, percés de petits orifices permettant le passage du volume d'air de décolmatage, est positionnée sur toute la longueur du côté propre des éléments filtrants. L'air comprimé est envoyé à chaque tube d'injection par l'intermédiaire d'une vanne à membrane, dont l'ouverture et la fermeture sont contrôlées par une électrovanne pilote. La durée d'impulsion de l'à-coup de pression du décolmatage est fixée à 110 ms et s'effectue avec de l'air comprimé à environ 7 bars. La génération de particules est assurée par un générateur de type Palas BEG 1000 S.

Le colmatage des médias est réalisé avec une poudre d'alumine de diamètre médian en masse égal à 2,5 µm (écart type géométrique $\sigma_g = 1,47$). Les débits massiques sur banc d'essais et sur dépoussiéreur étaient respectivement de 1 mg.s⁻¹ et de 0,67 g.s⁻¹. Le décolmatage est activé lorsque le critère de perte de charge maximale ($\Delta P_{max} = 350$ Pa) est atteint et la vitesse de filtration est de 2 cm.s⁻¹ sur chacun des bancs d'essais.

MEDIAS FILTRANTS ETUDIÉS

Les deux médias filtrants choisis pour cette étude sont constitués d'un enchevêtrement de fibres de polyester non tissées et possèdent chacun un traitement de surface spécifique anti-colmatant, caractéristiques des filtres à fibres employés en dépoussiérage industriel. Le premier média a bénéficié d'un traitement de surface par calandrage thermique alors que le second dispose d'une membrane PTFE mono-filament sur sa face filtrante. Les caractéristiques des médias choisis sont regroupées dans le tableau 1.

Traitement de surface du média polyester	Calandrage thermique	Membrane PTFE
Grammage G (g.m ⁻²)	528 ± 8	564 ± 6
Epaisseur Z (mm)	1,72 ± 0,1	1,93 ± 0,1
Compacité α_f	0,22 ± 0,014	0,21 ± 0,011
Diamètre aéraulique de Davies d_f (µm)	20,4 ± 2,4	10,5 ± 1,0

Tableau 1 : Caractéristiques physiques des médias filtrants à l'état neuf.

METHODES ET MESURES EFFECTUEES

La détermination de l'efficacité de filtration initiale (E_0) repose sur le comptage optique (PMS Lasair 310 ou 1001) du nombre de particules d'un aérosol test, à l'amont et à l'aval du média filtrant. Le calcul des efficacités par tranche granulométrique s'effectue ensuite suivant les spécifications de la norme EN 779, à partir des comptages optiques. Le domaine granulométrique couvert s'étend de 0,1 à 15 µm environ. Les aérosols tests choisis sont différents d'un banc d'essais à l'autre : un aérosol de KCl généré au moyen d'un nébuliseur De Vilbiss 40 neutralisé électriquement pour le banc d'essais médias plans et l'aérosol ambiant du hall pour le banc d'essais dépoussiéreur.

Les mesures consistent ensuite à suivre l'évolution de la perte de charge (ΔP) et de l'efficacité (E) des éléments filtrants au cours de 5 cycles de colmatage-décolmatage.

La perte de charge est définie par la différence de pression statique aux bornes amont/aval de l'élément filtrant : $\Delta P = P_{amont} - P_{aval}$.

Une méthode a été mise au point afin de suivre de manière continue l'efficacité de filtration. Elle comporte trois étapes :

- Mesure de l'efficacité initiale (E_0) par comptage optique ;
- Détermination de la concentration totale en nombre des particules à l'amont (N_e), à partir de l'efficacité initiale et de la concentration totale en nombre à l'aval (N_s), mesurée dans les tous premiers instants. Pour cela, on considère que l'efficacité initiale ne varie pas au début du colmatage lors de la mesure de N_s (formation du gâteau négligeable).

$$N_e \text{ est obtenue par la relation suivante : } N_e = \frac{N_s}{1 - E_0} .$$

La concentration en nombre de particules à l'amont, N_e , est considérée constante pendant toute la durée du suivi de l'efficacité ;

- Suivi de la concentration totale aval $N_s(t)$ par comptage optique (compteur Grimm 1.108).
L'efficacité totale de filtration au temps t est alors obtenue en appliquant la relation :

$$E(t) = 1 - \frac{N_s(t)}{N_e}$$

Cette méthode, pratique et fiable, a été mise au point car la sensibilité trop grande du compteur Grimm ne permet pas une mesure de la concentration en amont (saturation).

La masse surfacique de particules collectées par le média plan ou les poches n'a pu être mesurée directement puisque leurs efficacités de filtration sont inférieures à 100 % et les résultats ont été exprimés à partir du débit massique de particules arrivant sur le filtre, soit :

$$W(t) = \frac{q_p \times t}{S_f} \quad \text{avec} \quad \begin{array}{l} W \text{ la masse surfacique de particules (g.m}^{-2}\text{)} \\ q_p \text{ le débit massique (g.s}^{-1}\text{)} \\ t \text{ le temps (s) et } S_f \text{ la surface filtrante (m}^2\text{)} \end{array}$$

Les débits massiques ont été déterminés par une méthode gravimétrique basée sur le prélèvement de la totalité des aérosols générés sur filtre THE.

RESULTATS ET DISCUSSION

Les courbes d'efficacité fractionnelle à l'état neuf, en fonction du diamètre optique des particules, sont présentées sur la Fig. 3.

L'efficacité initiale du média avec calandrage thermique est plus faible que celle du média avec membrane PTFE. Le traitement thermique exerce peu d'influence sur l'efficacité (surtout pour les plus fines particules) alors que les qualités de la membrane PTFE confère au média une efficacité élevée dès les premiers instants de la filtration.

Si on considère un type de média donné, les allures des courbes d'efficacité initiale sont très proches d'une installation à l'autre, et plus particulièrement pour les deux courbes représentatives du média avec membrane PTFE.

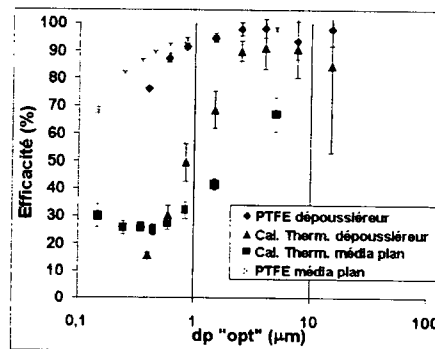


Fig. 3 : Efficacités fractionnelles des médias à l'état neuf. $U_f = 2 \text{ cm.s}^{-1}$.

Les différences de comportement entre poches et échantillon de média plan peuvent de plus trouver des explications au regard de certains facteurs qui diffèrent d'une installation à l'autre : les aérosols tests et les compteurs optiques de particules étaient différents sur chacune des installations et l'air n'était pas neutralisé pour les essais sur dépoussiéreur (influence sur le mécanisme de capture par induction sur les fibres).

Malgré la différence de géométrie importante et des conditions opératoires non identiques sur les deux bancs d'essais comme il vient d'être vu, les comportements d'efficacité à l'instant initial sont proches et ceci constitue une information nouvelle très intéressante.

Les évolutions de la perte de charge et de l'efficacité de filtration sur les cinq premiers cycles de colmatage-décolmatage sont présentées sur les Fig. 4, 5, 6 et 7.

Considérons, dans un premier temps, les expériences sur dépoussiéreur (Fig. 5 et 7). Les résultats montrent tout d'abord que la perte de charge et l'efficacité de filtration augmentent pendant la phase de colmatage. Les évolutions de ces deux paramètres lors du premier colmatage sont notamment caractéristiques de l'état de surface de chacun des médias [Humphries (1981), Callé (2000)]. Il est possible de constater, ici encore, que le média avec traitement de surface par calandrage thermique possède une efficacité moyenne faible à l'état neuf (24 %) par rapport à celle du média avec membrane PTFE (90 %). La partie incurvée indiquée A démontre que, dans le cas du calandrage thermique, il existe une étape de colmatage en profondeur du filtre avant que le colmatage de surface n'apparaisse (zone linéaire C). Le fait que le colmatage d'un média présente deux phases a souvent été observé [Stenhouse (1991), Walsh (1996), Pénicot (1998)]. Au contraire, la partie incurvée indiquée B montre qu'il ne se produit aucun colmatage en profondeur dans le cas de membrane PTFE (l'allure de montée en perte de charge du premier colmatage est identique aux suivants). Dans les deux cas, la montée en perte de charge correspond à la formation d'une couche de particules en

surface : c'est le gâteau de filtration. La partie C montre, qu'à partir d'un certain moment, l'épaisseur de cette couche croît proportionnellement à la masse de particules collectées ; ΔP augmente alors linéairement avec la masse surfacique générée.

L'efficacité augmente, quant à elle, de sa valeur initiale à des valeurs proches de 100 %. Les particules piégées, d'une part par le filtre et d'autre part en surface par le gâteau de filtration, constituent autant de nouveaux collecteurs et viennent améliorer les mécanismes de capture et ainsi l'efficacité de filtration au fur et à mesure du colmatage. Rapidement, on constate que le tissu fibreux ne joue plus qu'un rôle de support au gâteau de filtration. Celui-ci contrôle majoritairement l'efficacité et devient le principal collecteur de particules.

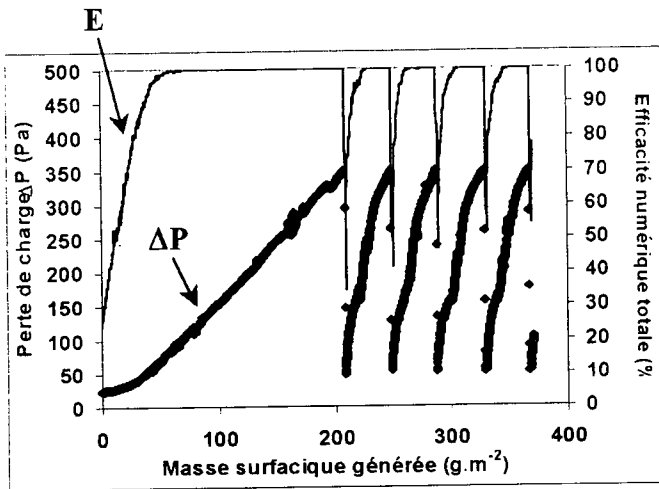


Fig. 4 : Evolutions de ΔP et E, cal. therm., plan.

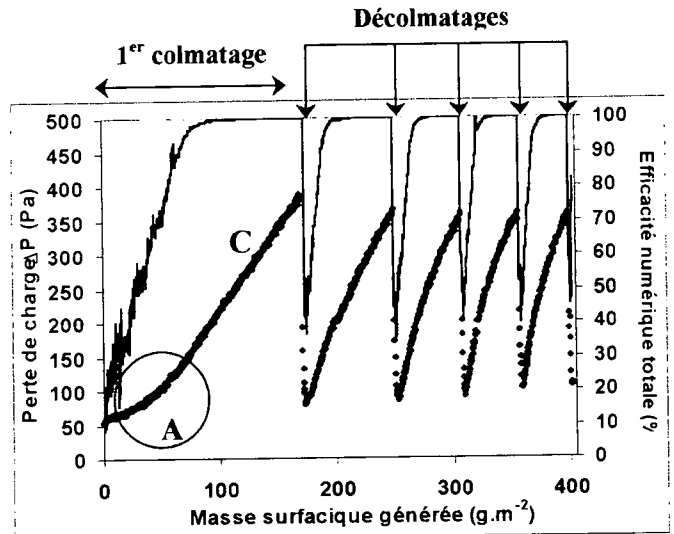


Fig. 5 : Evolutions de ΔP et E, cal. therm., poches.

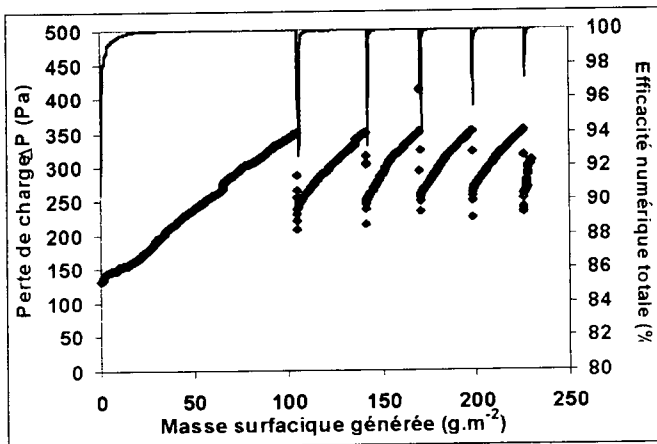


Fig. 6 : Evolutions de ΔP et E, PTFE, plan.

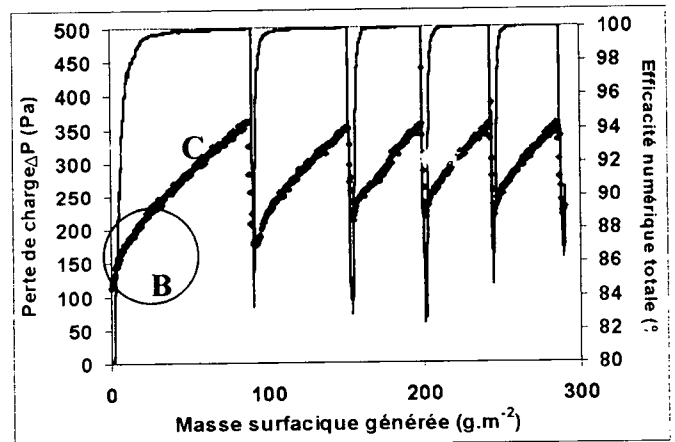


Fig. 7 : Evolutions de ΔP et E, PTFE, poches.

Puis, lorsque ΔP_{max} est atteint, le décolmatage est déclenché pour tenter de récupérer les propriétés aérauliques des poches filtrantes neuves. Il se traduit par une diminution de la perte de charge et de l'efficacité de filtration, plus ou moins importante selon le média, liée à la suppression partielle ou totale du gâteau de particules. En effet, l'à-coup de pression entraîne l'émission d'une bouffée de particules plus ou moins importante selon les paramètres du décolmatage et les performances du média. Ces pics de concentration aval résultent de la combinaison de la remise en suspension d'une partie du gâteau à l'amont et de la baisse d'efficacité du média, du fait de la disparition de la filtration par la couche de particules [Leith et Ellenbecker (1983), Barnett (2000), Callé et al.² (2002)]. On observe ainsi des chutes très importantes de l'efficacité du média avec calandrage thermique. Ces chutes sont plus limitées pour le média PTFE du fait de son efficacité initiale plus élevée.

La perte de charge retombe à une valeur résiduelle, ΔP_{res} , l'ensemble des particules n'ayant pas été délogées par l'à-coup de pression (particules piégées en profondeur et/ou décolmatage imparfait par plaques). L'observation sur une grande durée montre une augmentation des valeurs de ΔP_{res} au fur et

à mesure du nombre de cycles de filtration : la capacité de décolmatage du média filtrant se dégrade [Duo (1997), Smith (1998), Callé (2000)].

Les Fig. 4 et 6 montrent une bonne représentation des performances du dépoussiéreur à partir des essais sur médias plans. Tous les points précédemment abordés se retrouvent dans les résultats des essais à partir des échantillons de médias plans. Les performances respectives des deux traitements de surface étudiés sont conformes à celles observées sur les poches du dépoussiéreur. Malgré l'importante différence de géométrie (média plan / 12 poches de forme « cylindrique ») et malgré les différences de débit traité (média plan : $14,4 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ / dépoussiéreur : $1300 \text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$), les caractéristiques des évolutions de la perte de charge et de l'efficacité de filtration sont proches d'une installation à l'autre.

On notera tout de même une durée de premier cycle un peu plus importante, ainsi que des chutes d'efficacité consécutives aux phases de décolmatage un peu plus faibles et de plus courte durée sur média plan que sur dépoussiéreur. On peut supposer que l'explication tient en grande partie dans la différence de géométrie des éléments filtrants étudiés et de l'interaction probable entre poches. Les masses surfaciques moyennes générées par cycle diffèrent également quelque peu, mais dans des proportions tout à fait acceptables, en comparaison aux nombres de paramètres fidèlement reproduits par ailleurs.

CONCLUSION ET PERSPECTIVE

Le banc d'essais pour médias plans s'avère donc un bon outil de description des phénomènes de filtration et d'étude de médias utilisés en dépoussiérage industriel. Le décolmatage, phase cruciale de la filtration s'accompagnant d'une baisse brutale de l'efficacité, paraît l'étape la moins bien reproduite par un échantillon de média plan du fait de son manque de représentativité de la géométrie d'une manche de dépoussiéreur (flexibilité, profil de dépôt ...). C'est également l'étape de filtration la moins bien comprise à ce jour (remise en suspension, phénomènes d'adhésion ...) et, paradoxalement, également la moins étudiée.

Des travaux, en début de réalisation, sur l'étude des forces d'adhésion et l'optimisation du décolmatage des filtres à manches devraient apporter des avancées significatives dans ce domaine encore mal maîtrisé. L'étude de l'évolution des performances sur des cycles plus nombreux est également un point important. Les différences média plan / dépoussiéreur sont, en effet, susceptibles de s'accroître du fait de l'intervention d'autres mécanismes alors indétectables sur les cinq premiers cycles.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Barnett T. (2000). Improving the performance of fabric filter dry dust collection equipment, *Filtration and Separation*, mars 2000, 28-32.
- Callé S. (2000). Influence des cycles de colmatage et décolmatage sur les performances de medias filtrants utilisés en dépoussiérage industriel, *Thèse INPL*.
- ¹Callé S., Contal P., Thomas D., Bémer D., Leclerc D. (2002). Description of the clogging and cleaning cycles of filter media, *Powder Technology*, 123, 40-52.
- ²Callé S., Bémer D., Vaxelaire S., Thomas D., Contal P., Leclerc D. (2002). Change in filtration efficiency during dust cake removal from fabric filters, *4th World Congress on Particle Technology*, Sydney, Australie, 21-25 July 2002.
- Duo W., Seville J.P.K., Kirkby N.F., Büchele H. (1997). Patchy cleaning of rigid gas filters – II. Experiments and model validation, *Chemical Engineering Science*, Vol. 52, n° 1, 153-164.
- Humphries W., (1981). Influence of cloth structure on dust dislodgement from fabric filters, *Powder Technology*, 28, 189-194.
- Leith D., Ellenbecker M.J., (1983). Dust emissions from pulse-jet fabric filter, *Filtration and Separation*, juillet / août 1983, 311-314.
- Pénicot P. (1998). Etude de la performance des filtres à fibres lors de la filtration d'aérosols liquides ou solides submicroniques, *Thèse INPL*.
- Smith D.H., Powell V., Ahmadi G., Ferer M., (1998). Analysis of operational filtration data – Part III : Re-entrainment and incomplete cleaning of dust cake, *Aerosol Science and Technology*, 29, 224-230.
- Stenhouse J.I.T., Trottier R., (1991). The loading of fibrous filters with submicron particles, *Journal of Aerosol Science*, Vol. 22, Suppl. 1, S777-S780.
- Walsh D.C., (1996). Recent advances in the understanding of fibrous filter behaviour under solid particle load, *Filtration and Separation*, juin 1996, 501-506.

*Facteurs influençant le colmatage des filtres THE industriels
par les aérosols formés en cas d'incendie*

J.C. LABORDE, V.M. MOCHO

Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire
Département de Prévention et d'Etude des Accidents
Service d'Etudes et de Recherches en Aérocontamination et en Confinement
B.P. 68 – Bâtiment 383 – 91192 GIF-SUR-YVETTE Cedex, France

RÉSUMÉ

L'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) et la COGEMA ont mené un programme commun de recherche dont le but était d'améliorer les connaissances sur le colmatage des filtres THE (filtres à Très Haute Efficacité) en cas d'incendie et d'accéder à un modèle pouvant être intégré dans un code de calcul traitant de l'interaction entre la ventilation et l'incendie. Devant la complexité des phénomènes intervenant dans le colmatage des filtres par les aérosols formés en cas d'incendie, il est actuellement impossible de décrire ce colmatage par un modèle phénoménologique. La communication proposée présente l'influence de différents facteurs jouant un rôle sur l'évolution de la résistance aéraulique d'un filtre colmaté, en considérant le cas de feux de solvants utilisés dans le retraitement des combustibles nucléaires. Les essais analytiques ont été menés sur une installation de laboratoire de l'IRSN, appelée BANCO, dédiée aux expériences de colmatage. Il a été mis en évidence que les paramètres d'influence peuvent être classés en deux catégories. La première regroupe des paramètres principaux (ou directs) liés au filtre THE (plan ou plissé, initialement pré-colmaté ou non), à l'aéraulique (vitesse de filtration) et aux produits de combustion (masse des aérosols déposés, diamètre aérodynamique médian massique, teneur en vapeur d'eau). La seconde catégorie regroupe des paramètres secondaires (ou indirects) : flux thermique incident auquel est soumis le combustible, teneur en oxygène dans l'air d'alimentation du foyer.

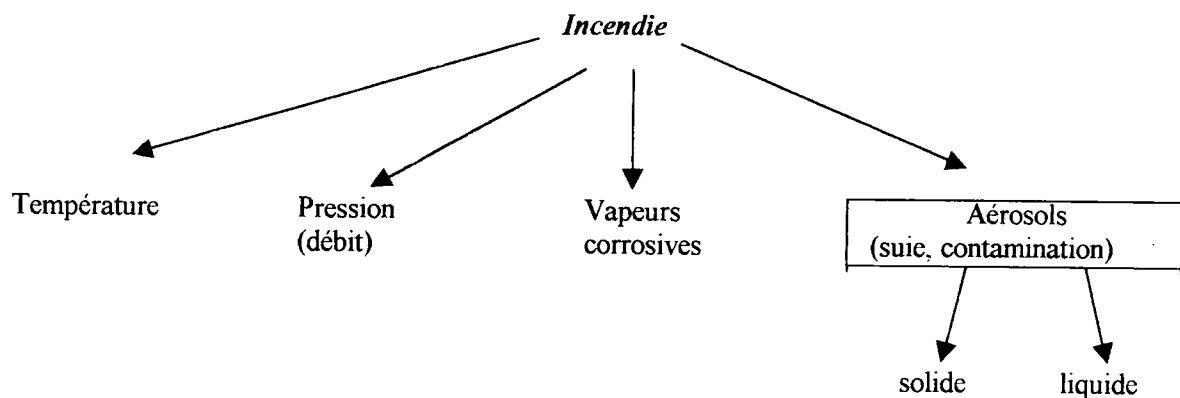
La communication présente enfin une loi empirique permettant de calculer l'évolution de la résistance aéraulique du filtre colmaté en fonction de certains de ces paramètres.

1. INTRODUCTION

En termes de protection et de sûreté nucléaire, la prise en compte du risque incendie dans une installation nucléaire nécessite tout particulièrement d'évaluer les conséquences de l'incendie sur le confinement des substances radioactives et de déterminer le terme source rejeté à l'environnement.

Les dispositions à prendre (sectorisation des locaux, conduite de la ventilation, par exemple) pour réduire ces conséquences doivent donc être tout particulièrement étudiées. Parmi les composants de ventilation rencontrés dans les installations nucléaires afin de maîtriser les rejets de contamination, les dispositifs d'épuration et tout particulièrement le Dernier Niveau de Filtration (DNF), constituent un élément majeur ; ce dernier est formé de filtres THE.

Les principaux phénomènes associés à un incendie ayant un impact sur les dispositifs d'épuration peuvent se résumer comme indiqué ci-après.



La présence d'aérosols est donc un paramètre à prendre en compte, se traduisant notamment par un colmatage des filtres THE présents dans les réseaux de ventilation ; ces aérosols sont soit uniquement des produits de la combustion, soit un mélange "produits de combustion + aérosol contaminant mis en suspension".

Dans une installation nucléaire, le colmatage des filtres peut avoir deux effets néfastes vis-à-vis du maintien du confinement :

- ⊙ d'une part, il risque d'entraîner la rupture mécanique du médium filtrant et donc une perte partielle ou totale de l'efficacité du filtre,
- ⊙ d'autre part, il risque de provoquer la chute du débit d'extraction du local siège de l'incendie, d'où un éventuel passage en surpression du local et un déséquilibre de la cascade de dépressions dans l'ensemble de l'installation.

Le moyen le plus réaliste d'évaluer si de tels effets peuvent intervenir est d'avoir recours à des codes de calculs qualifiés traitant de l'interaction entre la ventilation et l'incendie. La COGEMA et l'IRSN mènent depuis plusieurs années un programme de recherche commun afin d'améliorer les connaissances dans le domaine de l'incendie et de son interaction avec le réseau de ventilation et les équipements que l'on y rencontre. Parmi les thèmes abordés, le colmatage des filtres THE par les aérosols formés en cas d'incendie est un thème majeur dont les résultats les plus significatifs sont ici rapportés.

2. GENERALITES SUR LE COLMATAGE DES FILTRES THE

2.2.1. Définitions et généralités sur les filtres

Les filtres à particules se différencient en tout premier lieu sur la base de la structure de leur médium filtrant (fibres, membranes poreuses, lits granulaires) ; dans le domaine de la filtration de l'air, les médias sont constitués d'un enchevêtrement de fibres dont les dimensions varient typiquement de 1 μm à quelques centaines de μm . Les matériaux constituant les fibres sont classiquement la cellulose, le verre (cas des filtres THE), le quartz et l'acier. A ces matériaux de base, sont ajoutés la plupart du temps des adjuvants (par exemple, liants acryliques dans le cas des filtres THE) afin d'améliorer la tenue mécanique du médium. Le médium filtrant à fibres se caractérise principalement par le diamètre médian des fibres d_f , l'épaisseur e et la porosité ε_f (ou la compacité $\alpha_f = 1 - \varepsilon_f$) ; ε_f correspond au rapport du volume de vide dans le médium filtrant sur le volume du médium filtrant.

Pour un filtre THE, l'ordre de grandeur de ces paramètres est : $d_f = 1 \mu\text{m}$, $e = 0,5 \text{ mm}$, $\varepsilon_f = 0,9$.

Les filtres auxquels nous nous intéressons sont des filtres industriels plissés selon la technique du plissage à petits plis dont la hauteur est d'environ 30 mm. Ils fonctionnent à une vitesse nominale de filtration de l'ordre de 2 à 2,5 cm/s.

Dans cette gamme de vitesses, la résistance aéraulique d'un filtre industriel plissé vierge R_0 est généralement calculée à partir de la relation :

$$R_0 = \frac{\mu_0 \Delta P_0}{\mu Q_v}$$

avec ΔP_0 la perte de charge du filtre plissé vierge (Pa), Q_v le débit volumique de filtration (m^3/s), μ_0 et μ la viscosité dynamique du fluide (Pa.s), respectivement à la température ambiante et à une température T donnée.

La caractérisation du colmatage d'un filtre consiste à déterminer l'évolution de la résistance aéraulique d'un filtre R en fonction de la masse M_{ac} d'aérosols déposés ; par analogie avec un filtre vierge, cette résistance est égale à : $R = \mu_0 \Delta P / \mu Q_v$ (ΔP représente la perte de charge du filtre colmaté).

2.2.2. Description phénoménologique du colmatage d'un filtre par des aérosols de référence

En filtration, on distingue généralement deux modes de fonctionnement : la filtration stationnaire et la filtration dynamique. En régime stationnaire, les changements de structure occasionnés par le dépôt des particules sont considérés comme négligeables ; l'efficacité de collecte et la perte de charge (ou la résistance aéraulique) sont indépendantes du temps. En filtration dynamique, le colmatage induit des modifications de la structure du filtre entraînant une variation de l'efficacité de collecte et de la perte de charge au cours du temps. Les travaux permettant de décrire phénoménologiquement le colmatage d'un filtre résultent d'expériences réalisées avec des aérosols de référence solides ou liquides, dans un premier temps en utilisant des filtres non plissés.

Dans le cas des aérosols solides se déposant sur un médium filtrant plan, interviennent deux mécanismes : le colmatage en profondeur lorsque les particules pénètrent à l'intérieur du médium filtrant et le colmatage en surface lorsque les particules sont collectées sur la surface même du filtre pour former un gâteau d'épaisseur croissante au fur et à mesure de la filtration. Lors du colmatage en profondeur, l'agencement des particules se fait, selon de nombreux auteurs, sous la forme de dendrites correspondant à une série de chaînes de particules qui s'étendent à partir de la surface de la fibre [1]. Lorsque le médium filtrant est plissé, intervient un troisième mécanisme lié à la réduction de la surface de filtration occasionnée par un dépôt hétérogène des particules le long de la hauteur des plis. Les travaux les plus récents permettant d'appréhender ce phénomène sont ceux de Del Fabbro [2].

2.2.3. Démarche relative aux travaux sur le colmatage des filtres en cas d'incendie

Face à la complexité des phénomènes liés d'une part au colmatage des filtres plissés, d'autre part aux caractéristiques des produits de combustion, les travaux ont été réalisés en trois étapes.

Etape 1 : *essais analytiques à petite échelle réalisés sur l'installation BANCO*

L'objectif de cette étape est d'examiner l'influence de différents paramètres opératoires, sachant que, de manière générale, l'évolution de la résistance aéraulique R d'un filtre THE, en fonction de la masse d'aérosols déposés, risque de dépendre de nombreux paramètres :

$R = f$ (filtre,	aérosols,	aéraulique,	régime de combustion)
↓	↓	↓	↓
.plissé .plan .pré-colmaté ou non	.nature .granulométrie	.vitesse de filtration .teneur en vapeur d'eau	.nature du combustible .flux thermique imposé .oxygène en excès ou en défaut

Etape 2 : établissement d'un modèle empirique

A partir des différents essais analytiques réalisés sur BANCO, l'objectif de cette étape est d'élaborer un modèle empirique de colmatage donnant l'évolution de la résistance aéraulique du filtre en fonction de la masse d'aérosols déposés et des paramètres influents.

Etape 3 : qualification du modèle empirique par un essai d'incendie à échelle 1

Seuls les résultats caractéristiques issus des étapes 1 et 2 font l'objet de la communication.

3. CONDITIONS OPERATOIRES

Les essais sont réalisés sur le banc BANCO implanté au Centre d'Etudes de Saclay [3]. Il comporte une enceinte d'environ 1 m^3 où sont placées les charges combustibles. Cette enceinte est munie d'un dispositif de chauffage radiatif latéral et est raccordée à un conduit principal d'extraction dans lequel est assurée une circulation d'air, à l'aide d'un ventilateur placé en aval du conduit. Ce conduit se divise en deux conduits identiques dont les débits d'air varient respectivement de $50 \text{ m}^3/\text{h}$ à $100 \text{ m}^3/\text{h}$, et de $50 \text{ m}^3/\text{h}$ à $500 \text{ m}^3/\text{h}$; ils sont mesurés et régulés par l'intermédiaire d'un diaphragme et de la vanne de réglage qui lui est associée. En amont de chacun des diaphragmes est positionné un caisson de filtration recevant un filtre THE, type dièdre de surface de filtration de 6 m^2 , dont on suit le colmatage par les aérosols produits lors de la combustion de divers mélanges. Le banc d'essais est équipé de thermocouples de type K (chromel-Alumel), de capteurs électroniques de pression, d'un analyseur d'oxygène et d'une balance pour mesurer la perte de masse du combustible. Les aérosols de combustion sont quant à eux caractérisés en termes de concentrations par des prélèvements séquentiels réalisés sur filtres pesés avant et après le prélèvement, et de distribution granulométrique résultant de mesures réalisées à l'aide d'un impacteur Andersen (diamètres de coupure compris entre $0,35 \mu\text{m}$ et $7,5 \mu\text{m}$). Le combustible est un solvant utilisé par COGEMA dans le cadre du retraitement des combustibles nucléaires ; il s'agit d'un mélange constitué de 30 % volumique de TBP (Tributyle Phosphate) et de 70 % de TPH (Tétra Propylène Hydrogéné). Les paramètres dont on souhaite illustrer l'influence sont la vitesse nominale de filtration v (comprise entre $0,23 \text{ cm/s}$ et $2,1 \text{ cm/s}$, vitesse nominale des filtres utilisés), le flux thermique incident (de 12 à 36 kW/m^2), la concentration en oxygène et la teneur en vapeur d'eau dans les gaz de combustion.

4. RESULTATS EXPERIMENTAUX SIGNIFICATIFS

Les figures 1 à 4 illustrent l'influence des quatre paramètres variables évoqués ci-avant.

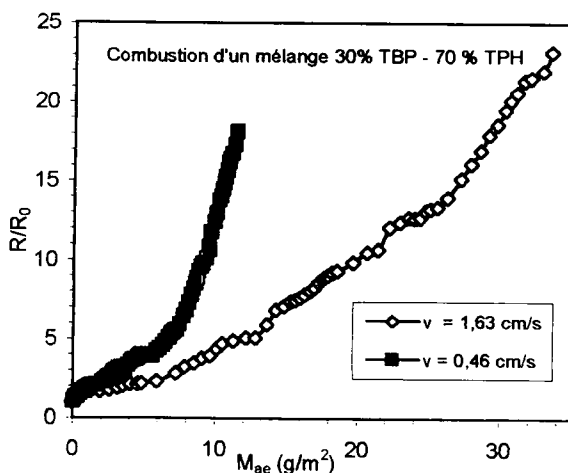


Figure 1 : Influence de la vitesse de filtration

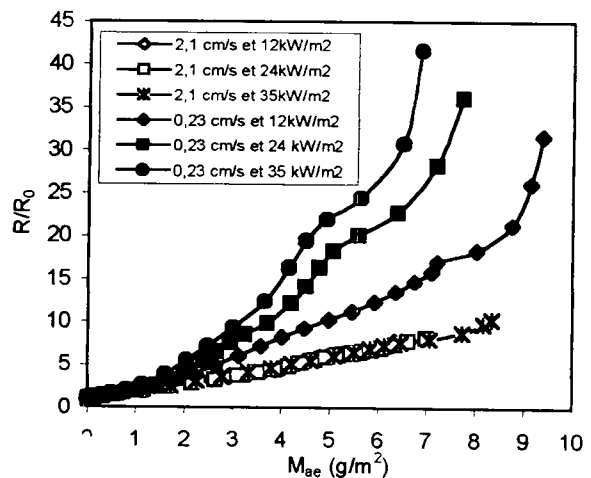


Figure 2 : Influence du flux thermique incident

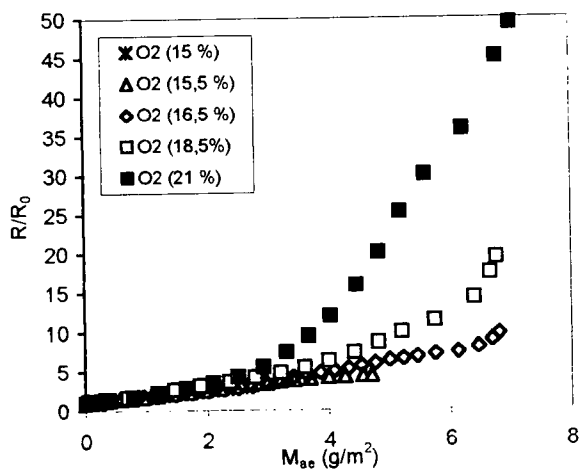


Figure 3 : Influence de $[O_2]$ dans l'air d'alimentation du foyer ($v = 0,23$ cm/s)

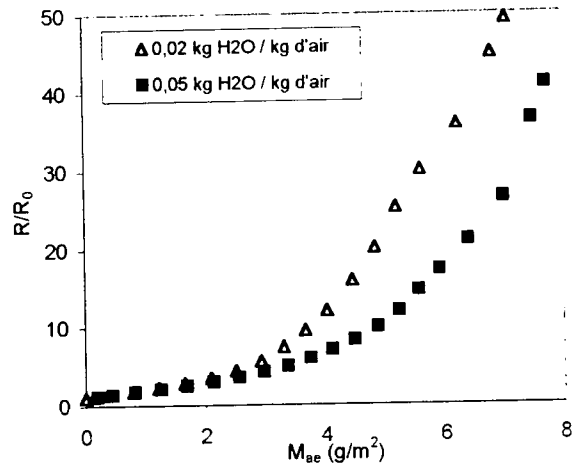


Figure 4 : Influence de $[H_2O]$ dans les gaz de combustion ($v = 0,23$ cm/s)

Vitesse de filtration

Une diminution de la vitesse de filtration entraîne une augmentation du rapport des résistances aérauliques R/R_0 d'un filtre THE plissé, pour une masse donnée d'aérosols déposés. Ce phénomène est principalement lié à l'hétérogénéité initiale de l'écoulement d'air dans un filtre plissé et à l'arrangement des particules le long de la hauteur des plis qui conduit à une réduction de la surface utile de filtration d'autant plus importante que la vitesse est faible.

Flux thermique imposé

Lors des essais BANCO, la surface du combustible est de 80 cm^2 et le volume total de 800 cm^3 ; le rayonnement de la flamme n'est pas suffisant pour entretenir la combustion, surtout pour les débits d'alimentation d'air élevés ($450 \text{ m}^3/\text{h}$, ce qui correspond à une vitesse de filtration de $2,1 \text{ cm/s}$). Un flux thermique additionnel est donc imposé en permanence à l'aide d'un panneau radiant ; c'est la valeur de ce flux qui a été paramétrée lors de l'étude. Dans les conditions opératoires correspondant au plus fort débit ($450 \text{ m}^3/\text{h}$, soit la vitesse de filtration nominale de $2,1 \text{ cm/s}$), le flux thermique incident n'a aucune influence sur le colmatage des filtres. Il en va tout autrement pour celles correspondant au plus faible débit ($50 \text{ m}^3/\text{h}$ soit $0,23 \text{ cm/s}$), pour lesquelles le colmatage des filtres est d'autant plus important que le flux thermique incident est élevé. Les mélanges combustibles produisent donc des aérosols de combustion dont le pouvoir colmatant dépend du flux thermique incident auquel est soumis le foyer dont ils sont issus. Les mesures granulométriques effectuées à l'aide de l'impacteur Andersen n'ont pas permis de trouver une corrélation entre le diamètre aérodynamique médian massique des aérosols et le flux thermique incident.

Concentration en oxygène dans l'air d'alimentation

Le pouvoir colmatant des aérosols issus de la combustion d'un mélange TBP/TPH diminue avec un appauvrissement en oxygène de l'air d'alimentation du foyer. Ce résultat est similaire à celui obtenu par Fenton lors de la combustion de polystyrène [4]. Cependant, de même que Fenton, il ne nous est pas possible, compte tenu du manque de données sur la caractérisation des produits de la combustion du TBP/TPH (composition exacte, morphologie des aérosols,...), de donner une interprétation réaliste de ce résultat, la seule connaissance du diamètre aérodynamique médian massique des aérosols étant insuffisante.

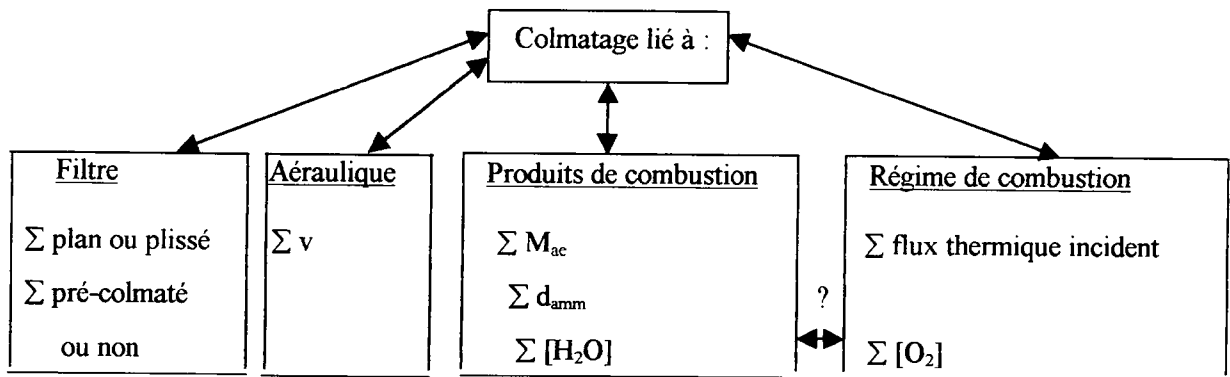
Teneur en vapeur d'eau dans l'effluent

Le pouvoir colmatant des aérosols formés diminue lorsque la teneur en vapeur d'eau augmente. Ce résultat est en accord avec diverses études réalisées par la communauté scientifique, où l'on constate d'une part que des aérosols liquides sont moins colmatants que des aérosols solides, d'autre part que la probable condensation d'une fraction de la vapeur d'eau contenue dans les gaz augmente la taille des aérosols de combustion, d'où un pouvoir colmatant moindre.

5. MODELE EMPIRIQUE DE COLMATAGE

Devant la complexité des résultats et des paramètres intervenant dans le colmatage des filtres par des aérosols de combustion, il est impossible, en l'état actuel des connaissances, de décrire ce colmatage par une loi phénoménologique. Si le choix de certains des paramètres à prendre en compte pour l'établissement d'une relation empirique semble assez évident, compte tenu des résultats acquis jusqu'à présent, il n'en est pas de même pour tous.

Le diagramme ci-après regroupe les paramètres dont l'influence a été mise en évidence au cours de l'ensemble des travaux menés en commun par IRSN et COGEMA.



Parmi ces paramètres, ceux liés aux filtres, au régime aéraulique et aux produits de combustion peuvent être qualifiés de principaux (ou directs), car ils constituent des données de base caractérisant le filtre ou le terme source incendie et sont donc susceptibles, même si leur détermination peut s'avérer délicate, d'alimenter un modèle. Ceux liés au régime de combustion peuvent être qualifiés de secondaires (ou indirects), car ils influencent le terme source incendie et de ce fait devraient pouvoir être reliés aux paramètres caractérisant les produits de combustion. Ainsi, on peut penser que ce sont sur les caractéristiques des aérosols de combustion (facteur de forme, diamètre) et sur la composition des vapeurs condensables que doivent agir ces paramètres secondaires. La complexité du combustible mis en jeu associée à l'état actuel des connaissances et des moyens métrologiques mis en œuvre n'ont pas permis de corréler les paramètres dits secondaires aux principaux.

Le modèle empirique proposé afin de décrire le colmatage des filtres THE par les aérosols issus de la combustion du mélange TBP/TPH est le suivant :

$$\frac{R}{R_0} = 1 + 0,8 \cdot \frac{M_{ae}}{d_{amm}} + 0,003 \cdot \text{Flux} \cdot \left(\frac{M_{ae}}{v \cdot d_{amm}} \right)^2$$

R et R_0 représentent les résistances aérauliques du filtre colmaté et vierge (kg/s.m^4), M_{ae} la masse surfacique d'aérosols déposés (g/m^2), d_{amm} le diamètre aérodynamique médian massique des aérosols

(μm), Flux le flux thermique auquel est soumis le combustible (kW/m^2) et v la vitesse de filtration (cm/s).

Les figures 5 et 6 montrent le bon accord entre les résultats donnés par le modèle et quelques résultats expérimentaux BANCO dont il est issu. Signalons qu'un accord acceptable a également été trouvé lorsque les résultats du modèle ont été comparés à ceux obtenus lors d'un essai à échelle 1 mené sur l'installation expérimentale PLUTON de l'IRSN [5].

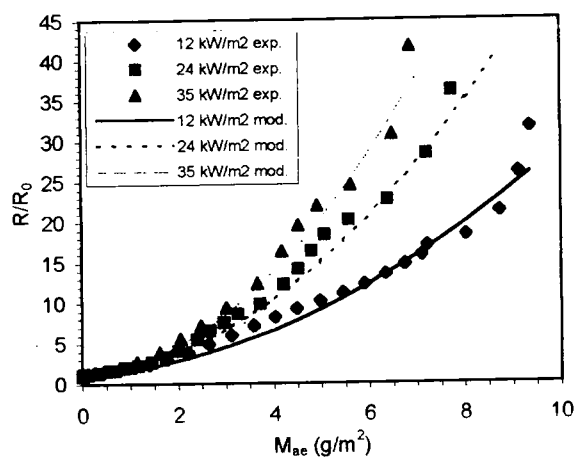


Figure 5 : Comparaison expérience / modèle à $v = 0,23 \text{ cm/s}$

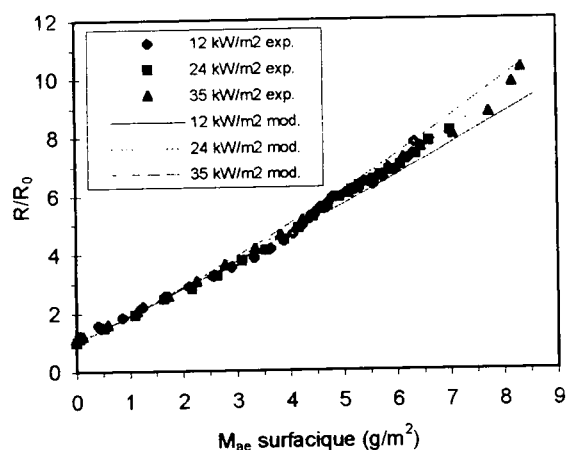


Figure 6 : Comparaison expérience / modèle à $v = 2,1 \text{ cm/s}$

6. CONCLUSION

Si l'on souhaite décrire le colmatage des filtres par les aérosols formés en cas d'incendie, il convient de prendre en compte l'influence de paramètres qualifiés de directs ou principaux (type de filtre, masse des aérosols déposés, diamètre aérodynamique médian masique des aérosols, vitesse de filtration, teneur en vapeur d'eau) et l'influence de paramètres dits indirects ou secondaires (nature du combustible, flux thermique imposé et teneur en oxygène dans l'air d'alimentation du foyer) ; des travaux de recherche devraient à terme permettre de corréler ces paramètres dits secondaires aux paramètres principaux.

REFERENCES

- [1] PENICOT P. – *Etude de la performance de filtres à fibres lors de la filtration d'aérosols solides ou liquides submicroniques*. Thèse de Doctorat INP de Lorraine, 1998
- [2] DEL FABBRO L. – *Modélisation des écoulements d'air et du colmatage des filtres plissés par des aérosols solides*. Thèse de Doctorat, Université Paris XII, 20 juin 2001
- [3] BRIAND A., LABORDE J.C., MOCHO V.M. – *Influence de la vitesse de filtration sur le colmatage de filtres THE plissés pour différents types d'aérosols* – 14^{ème} Congrès Français sur les Aérosols, 1998
- [4] BURKETT M. W., MARTIN R.A., FENTON D.L., GUNAJI M.V. – *Fire simulation in nuclear facilities : the FIRAC code and supporting experiments*. 18th Nuclear air Cleaning Conference, Baltimore, 1984
- [5] LABORDE J.C., MOCHO V.M. - *Synthèse sur le colmatage des filtres THE par les aérosols issus de la combustion d'un mélange TBP/TPH*. Rapport SERAC/LECEV/02-42

FILTRATION DES AEROSOLS LIQUIDES: INFLUENCE DES CYCLES DE COLMATAGE

T. Frising ^{*1}, D. Thomas ¹, P. Contal ¹, D. Bémer ², D. Leclerc ¹

Laboratoire de Filtration des Aérosols de Nancy

¹: Laboratoire des Sciences du Génie Chimique, 1, rue Grandville, BP 451, 54001 Nancy Cédex

²: Institut National de Recherche et de Sécurité, av. de Bourgogne, BP 24, 54501 Vandoeuvre Cédex

Résumé

La plupart des systèmes de filtration d'aérosol d'huile fonctionnent de manière intermittente. Il nous a semblé intéressant d'étudier l'influence de ce mode de fonctionnement sur l'évolution de la perte de charge et de l'efficacité du filtre. Le filtre étudié est un filtre HEPA soumis à un cycle de colmatage de 40 minutes à une vitesse de filtration de $6,8 \text{ cm s}^{-1}$ et une concentration de di(2-éthyl hexyl) sébaçate de $3,13 \text{ g m}^{-3}$. Suite à ce premier cycle de colmatage, la génération de particules est coupée et on effectue une perméation à l'air propre à travers le filtre à une vitesse comprise entre 0 et $56,8 \text{ cm s}^{-1}$. Un deuxième cycle de colmatage, identique au premier conclut l'expérience.

Les paramètres étudiés sont la vitesse de passage de l'air propre pendant la phase de repos ainsi que l'instant de coupure (début, milieu ou fin de filtration). Les résultats montrent que seule une interruption de la génération sur le palier de drainage a une influence sur la perte de charge. A la reprise de la filtration, la perte de charge est d'autant plus élevée que la vitesse de perméation pendant la phase de repos est faible et vice-versa.

Introduction

La qualité de l'air tant extérieure qu'intérieure est devenue un enjeu médical, politique et scientifique au cours de ces deux dernières décennies. Ainsi pour des industries ou secteurs d'application qui génèrent des brouillards d'huile ou des aérosols liquides en général (citons par exemple l'industrie mécanique [1] (brouillards d'huile, de fluides de coupe), l'industrie automobile (brouillards d'huile et de peinture) [2,3], l'agriculture (pesticides et phytosanitaires) [4], l'industrie graphique (brouillards d'encre) [5,6], etc.), des systèmes de filtration performants sont d'autant plus nécessaires que l'air est souvent recyclé dans les locaux de travail. En effet, outre les risques d'incendie liés à leur haute inflammabilité et le problème des surfaces glissantes, les brouillards d'huiles sont de plus en plus incriminés dans les problèmes de santé des opérateurs (dermites, asthme, cancers du poumon et de l'appareil digestif).

Dans un grand nombre de cas, la génération d'aérosols n'est pas continue et donc les systèmes de filtration n'opèrent pas en général de façon continue non plus. Voilà pourquoi il nous a semblé intéressant et important d'étudier les conséquences d'une interruption de la génération d'aérosols et interruption consécutive ou non de la filtration ont des conséquences sur la perte de charge et l'efficacité des média filtrants. Et si tel est le cas, quelle est la meilleure stratégie à adopter afin de garder la perte de charge au niveau le plus bas possible tout en maintenant l'efficacité au niveau désiré?

Pendant cette série d'expériences plusieurs facteurs ont été testés quant à leur influence sur la perte de charge, l'efficacité du filtre ou le profil de pénétration:

- le stade de la filtration où l'interruption a été effectuée
- la vitesse de perméation d'air propre pendant le repos

Contrairement à la filtration des aérosols solides [7], une telle étude n'a jamais été publiée, à notre connaissance, en filtration des aérosols liquides.

Dispositif expérimental, filtre et liquide utilisés et procédure expérimentale

Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est schématisé sur la figure 1 ci-dessous.

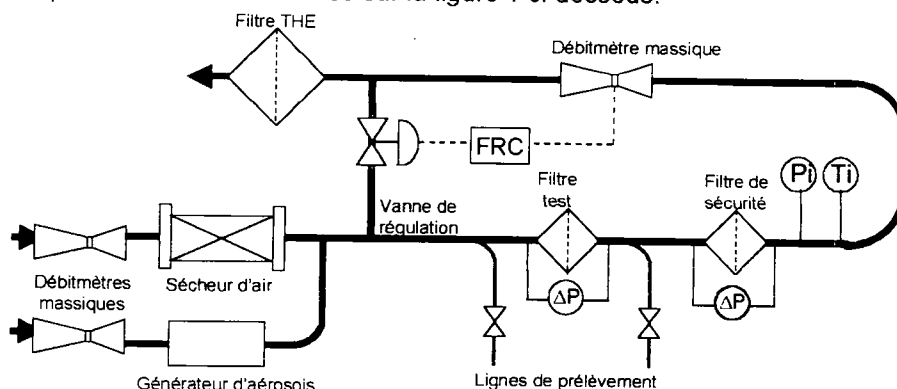


Figure 1 : Dispositif expérimental

Il est composé d'un compresseur d'air commun à tout le laboratoire, d'un sécheur d'air, d'un générateur d'aérosols liquides PLG 2000-HC, d'un porte filtre d'un diamètre de 110 mm, de trois débitmètres massiques et de deux lignes de prélèvement respectivement en amont et en aval du filtre. La granulométrie de l'aérosol est mesurée en continu par un impacteur Dekati. La température et la pression expérimentales sont enregistrées en continu pendant les expériences. Le débit est maintenu constant pendant toute la durée de la filtration. Les pertes de charges des filtres teste et de sécurité sont mesurées en continu par des capteurs de pression différentiels.

Filtere et liquide utilisés

L'aérosol est le di(2éthyl-hexyl)sébaçate (DEHS) dont la granulométrie et les caractéristiques sont données dans la figure 2 et le tableau 1 respectivement.

Masse molaire (g mol^{-1})	426,7
Masse volumique (kg m^{-3})	900
Viscosité dynamique (Pa s à 20°C)	0,023
Tension superficielle (Nm^{-1})	0,0306
Point éclair ($^\circ\text{C}$)	210
Point de fusion ($^\circ\text{C}$)	-48
Point d'ébullition ($^\circ\text{C}$)	256
Pression de vapeur (Pa à 37°C)	$2,4 \cdot 10^{-5}$

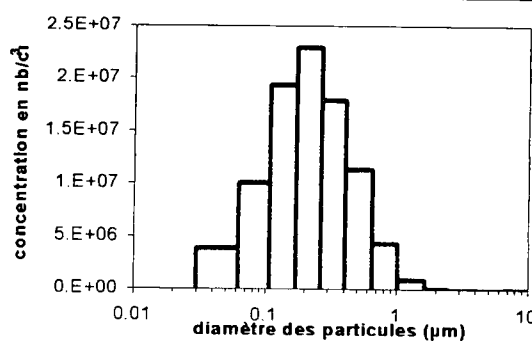


Tableau 1 : Caractéristiques du DEHS

Figure 2 : Granulométrie du DEHS en amont du filtre

Le filtre utilisé est un filtre commercial HEPA dont les caractéristiques sont résumées dans le tableau 2.

	Lydall AX 4450
Grammage (g m^{-2})	78
Diamètre des fibres (μm)	1,58
Epaisseur (μm)	403
Compacité (-)	0,079
Perméance DOP ($0,3 \mu\text{m}$ à $5,3 \text{ cm s}^{-1}$)	$1,5 \cdot 10^{-4}$
Perte de charge du filtre vierge (Pa à $5,3 \text{ cm s}^{-1}$)	320

Tableau 2 : Caractéristiques des filtres utilisés

Procédure expérimentale

Les expériences décrites ici se déroulent en trois étapes :

- un cycle de colmatage de 40 min à 30 NI min^{-1} ($6,8 \text{ cm s}^{-1}$). Tous les colmatages des expériences décrites ci-dessous ont été effectués à cette vitesse.
- une phase de repos d'une heure pendant laquelle on effectue une perméation à l'air propre à travers le filtre à une vitesse comprise entre 0 et $56,8 \text{ cm s}^{-1}$
- un deuxième cycle de colmatage identique au premier

Pour certaines expériences une deuxième phase de repos et un troisième cycle de colmatage ont été effectués.

Résultats et discussion

Situation du problème

Il s'agit de savoir si l'interruption de la génération a une influence sur la perte de charge après la reprise de la filtration. La figure 3 ci-dessous montre la perte de charge pour un essai de filtration sans interruption et un essai de filtration avec un repos sans circulation d'air (donc à une vitesse de perméation de 0 cm s^{-1}). Le temps correspondant à la phase de repos a été supprimé de la figure 3 et indiqué par une flèche pour faciliter la comparaison des deux courbes.

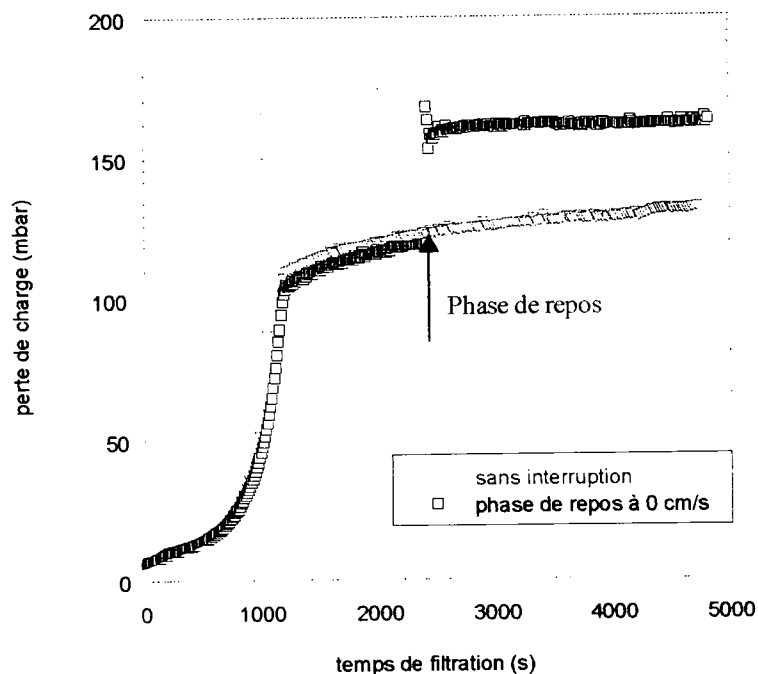


Figure 3 : Comparaison avec et sans interruption

La courbe sans interruption de la figure 3 présente l'allure habituelle rencontrée en filtration des aérosols liquides [8]. On remarque par contre une nette augmentation de la perte de charge (de l'ordre de 30 mbar) après l'interruption de la génération lors de la phase stationnaire. On peut donc d'ores et déjà affirmer que l'interruption de la génération de particules d'aérosol liquide a une influence sur le comportement du filtre

après la reprise de la filtration. A l'heure actuelle aucune influence sur l'efficacité ne peut être avancée. Compte tenu de l'efficacité initiale du filtre utilisé, les valeurs de l'efficacité ne permettent pas d'observer une tendance significative sur la perméance quant à l'incidence de l'interruption de la filtration. Il serait donc intéressant de mener une étude semblable avec un filtre moyenne efficacité.

Afin d'évaluer l'influence de l'instant où est arrêtée la filtration, l'interruption a été effectuée à différents stades du colmatage (figure 4) :

- au début de la montée exponentielle,
- à la fin de la montée exponentielle
- une fois le palier de drainage atteint.

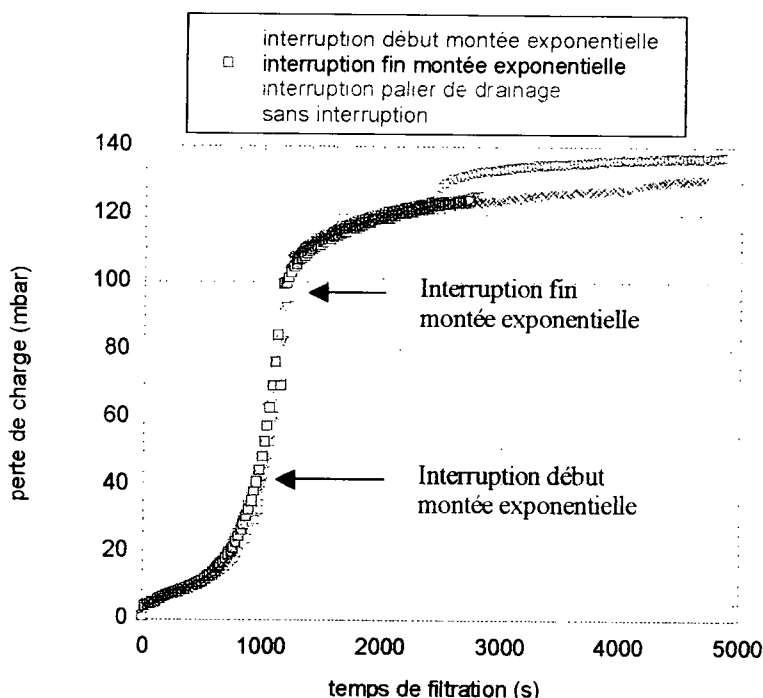


Figure 4 : Influence du point d'interruption

Comme le montre la figure 4, l'interruption de la génération de particules avant le palier de drainage n'a pas d'influence sur l'évolution de la perte de charge. Il semble donc qu'il n'y ait pas de redistribution significative tant que la majorité des pores n'est pas comblée par du liquide. Seule une interruption de la génération sur le palier de drainage engendre un changement de l'évolution de la perte de charge après le repos. C'est la raison pour laquelle toutes les expériences suivantes seront effectuées en interrompant la génération lors du palier de drainage.

Influence de la vitesse de perméation pendant le repos

Des expériences ont été mises en oeuvre suivant le protocole expérimental décrit plus haut afin d'étudier l'influence de la vitesse de perméation pendant le repos sur la perte de charge. Les résultats sont résumés sur la figure 5. Tous les filtres ont subi les mêmes phases de filtration (40 minutes à $6,8 \text{ cm s}^{-1}$) ainsi que la même durée de repos (1 heure). Seule la vitesse de perméation pendant la phase de repos a été modifiée.

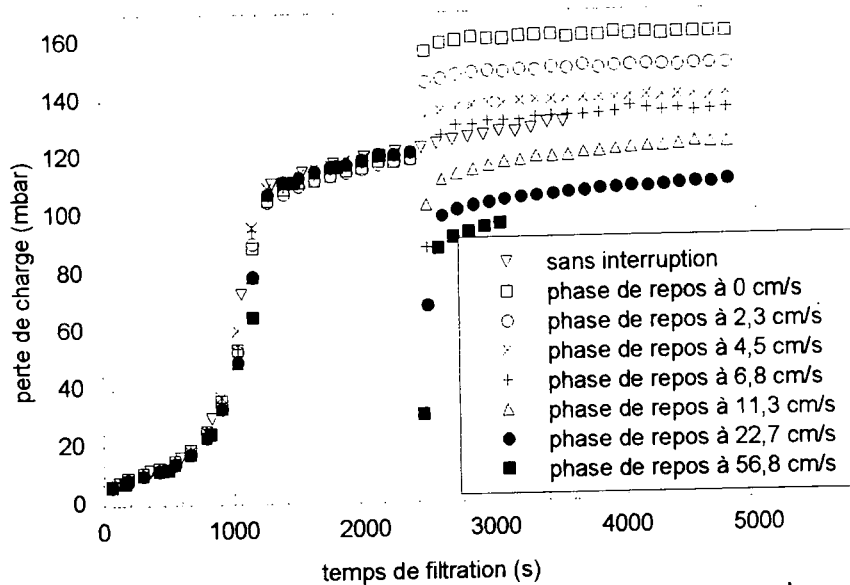


Figure 5 : Influence de la vitesse de perméation pendant la phase de repos sur la perte de charge

Pour des vitesses de perméation supérieures à la vitesse de filtration, la perte de charge finale du filtre, lors de la reprise de la filtration, est d'autant plus basse que la vitesse de perméation est élevée et réciproquement. Il faut préciser qu'à aucun moment de la filtration, le phénomène de réentraînement d'aérosol n'a été observé comme en témoigne la stabilité de la perte de charge du filtre THE de sécurité.

Afin d'interpréter cette augmentation inversement proportionnelle de la perte de charge en fonction de la vitesse de perméation pendant la phase de repos, les expériences suivantes ont été réalisées :

- tous les filtres subissent la même première période de filtration normale (40 min à une vitesse de $6,8 \text{ cm s}^{-1}$) suivi d'une pesée du filtre afin d'évaluer la masse de liquide collectée
- les filtres subissent une phase de repos, à différentes vitesses de perméation, suivie d'une pesée afin de déterminer la quantité de liquide drainé pendant la phase de repos

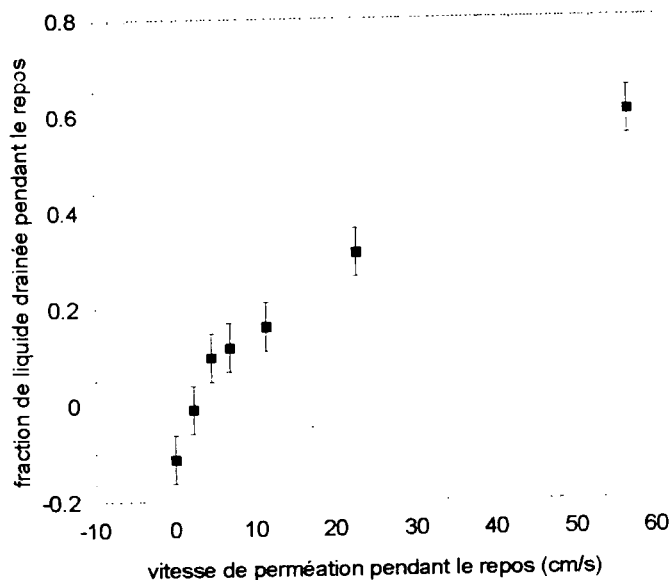


Figure 6 : Masse de liquide drainée pendant le repos

La figure 6 témoigne de l'existence d'une corrélation entre la vitesse de perméation pendant le repos et la fraction de liquide drainée : plus la vitesse de perméation augmente, plus la fraction de liquide drainée augmente. Inversement, à vitesse de perméation nulle pendant le repos, le filtre réabsorbe une certaine quantité de liquide qui a déjà drainé pendant la période de filtration. Ceci est dû aux forces capillaires qui contrebalancent partiellement les forces de drainage. Cependant un autre facteur (p. ex. la redistribution du liquide) semble jouer un rôle, puisque la masse de liquide drainée/reprise est nulle pour une vitesse de perméation de $2,3 \text{ cm s}^{-1}$ alors que la perte de charge augmente significativement à la reprise de la filtration. A l'inverse, la perte de charge reste inchangée pour une vitesse de perméation de $6,8 \text{ cm s}^{-1}$ alors qu'une quantité considérable de liquide est drainée pendant le repos (figure 5).

Conclusions

Il ressort de ces différentes expériences que :

- l'interruption de la génération et du flux d'air sur le palier de drainage engendre une augmentation de la perte de charge du filtre après la reprise de la filtration normale. Par conséquent, tout fonctionnement discontinu du procédé conduit à une augmentation de la perte de charge et donc à une dépense énergétique supplémentaire. Toute vitesse de perméation pendant le repos inférieure à la vitesse de filtration entraîne une perte de charge à la reprise de la filtration supérieure à celle avant le repos et réciproquement. En revanche, une interruption avant le palier de drainage n'a pas d'influence notable sur la perte de charge après la reprise de la filtration.
- la masse collectée diminue avec l'augmentation de la vitesse pendant le repos. Ceci conforte la conclusion qu'une vitesse élevée améliore le drainage et qu'on a donc intérêt à utiliser de fortes vitesses de filtration si toutefois l'efficacité du filtre peut être maintenue à un niveau acceptable.
- La perméation d'air propre, même à des vitesses très faibles (1 cm s^{-1}), permet de maintenir la perte de charge à un niveau inférieur par rapport à l'interruption simple sans perméation d'air propre. De plus, plus le débit d'air est important plus la perte de charge diminue pendant la phase de repos. Ceci pourrait constituer un point de départ pour un procédé de régénération d'un filtre en filtration d'aérosols liquides par passage d'air propre à des vitesses élevées. La faisabilité technique concernant l'efficacité du filtre, la résistance des média, etc. reste cependant à déterminer.

Remerciements

Nous remercions Lydall SA pour les filtres mis à disposition pour cette étude ainsi que la région Lorraine pour son aide financière.

Références

- [1] U.S. Department of Health and Human Services, Public Health Service, Centers for Disease Control and Prevention, National Institute for Occupational Safety and Health (1998), What you need to know about Occupational Exposure to Metalworking Fluids, *DHHS, Publication No. 98-116*.
- [2] Institut National de Recherche et de Sécurité (1999), Guide pratique de ventilation, 10. Ventilation des cabines d'application par pulvérisation de produits liquides., *Editions INRS, ED 839*.
- [3] Eisen, E.A., Tolbert, P.E., Hallock, M.F., Monson, R.R., Smith, T.J., Woskie, S.R. (1994), Mortality studies of machining fluid exposure in the automobile industry. III: A case-control study of larynx cancer, *American Journal of Industrial Medicine, Volume 26, Issue 2, 185-202*.
- [4] Hall, R.M., Heitbrink, W.A., Reed, L.D. (2002), Evaluation of a tractor cab using real-time aerosol counting instrumentation, *Applied Occupational and Environmental Hygiene, Vol. 17, No. 1, 47-54*.
- [5] Casey, P., Hagger, R., Harper, P. (1983), A collaborative study of 'ink mist' in U.K. newspaper press-rooms, *The Annals of Occupational Hygiene, Volume 27, Issue 2, 127-135*.
- [6] Leon, D.A., Thomas, P., Hutchings, S. (1994), Lung cancer among newspaper printers exposed to ink mist: a study of trade union members in Manchester, England, *Occupational and Environmental Medicine, Volume 51, Issue 2, 87-94*.
- [7] S. Callé (2000), Etude des performances des media filtrants utilisés en dépoussiérage industriel, *Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine*.
- [8] T. Frising, D. Thomas, P. Contal, D. Bémer, D. Leclerc (2002), *Filtration of liquid aerosols, Indoor Air Quality - Filtration Conference, American Filtration and Separations Society 2002 Topical Conference, Cincinnati*

Etude du comportement de filtres déshuileurs coalesceurs industriels

L. BABUT*(1), E. GONZE(1), A. BERNIS(1), R. CORRADINI(2)

(1) Laboratoire d'Optimisation et de Conception en Ingénierie de l'Environnement. ESIGEC. Université de Savoie. 73376 LE BOURGET DU LAC CEDEX

(2) Lautrette Industries.SA, 12. Rue Ambroise Croizat, BP 13. 95100 ARGENTEUIL CEDEX

Résumé:

Pour les deux filtres étudiés, l'évolution de la perte de charge lors de leur mise en régime est différente. Pour le premier, celle-ci croît lentement jusqu'à atteindre un point de charge où l'augmentation devient exponentielle jusqu'à un plateau qui correspond au début du drainage. Pour le second, le dépôt des gouttelettes sur les fibres du filtre a une influence sur la perte de charge dès les premières minutes.

La constitution des cartouches filtrantes a également une influence sur l'évolution de l'efficacité des filtres lors de leur première mise en régime. Le filtre avec le moins de couches voit son efficacité augmenter régulièrement jusqu'à atteindre un maximum au début du drainage. Pour le second, l'efficacité diminue jusqu'au moment du drainage, passée ce point elle augmente légèrement pour atteindre enfin un plateau.

Du fait de sa constitution, le second filtre a un coefficient d'épuration dix fois supérieur au premier. Enfin, il faut également noter des évolutions différentes des efficacités fractionnelles selon la classe granulométrique. Ainsi, pour le filtre le moins efficace, la concentration massique fractionnelle diminue lors de la maturation du filtre sauf pour les classes 0,575 et 0,725 micromètre pour lesquelles elle augmente. Ce phénomène semble être imputable à l'éclatement des bulles formées sur toute la surface du filtre lors du drainage. Pour le second filtre, l'efficacité diminue pour toutes les particules, le bullage n'étant observé que dans la zone basse du filtre.

Enfin, il a été montré que la répartition granulométrique en sortie n'est pas fonction de la concentration du gaz filtré, dans nos conditions expérimentales, mais qu'elle varie avec la vitesse de filtration. Ainsi, lorsque le débit du gaz passe de 60 m³/h à 20, le diamètre moyen des gouttelettes augmente.

I Problématique :

L'huile rejetée sous forme d'aérosol dans les réseaux de gaz comprimé par les compresseurs lubrifiés est généralement retenue par des filtres coalesceurs. Les nouvelles exigences liées à la démarche qualité imposent une optimisation de leur efficacité. Il est donc nécessaire d'améliorer la compréhension de leur principe de fonctionnement encore mal connu du fait de l'empilement des couches filtrantes qui les constituent.

Quelques études récentes abordent ce type de filtre [1,2]. Lors de nos études, deux filtres industriels ont été étudiés avec un aérosol d'huile de compresseur, l'un composé de deux couches de papier cellulosique et d'une enveloppe externe de feutre, l'autre composé de deux couches de papier cellulosique, de deux couches de papier fibres de verre, d'une enveloppe interne et externe de feutre (figure2).

II Matériel et méthodes

II.1 Présentation du banc d'essais :

La figure 1 présente le banc d'étude. Le filtre est monté sur un conduit rigide alimenté par trois surpresseurs de type "roots", reliés à une nourrice comportant trois sorties. Celles-ci sont équipées de deux rotamètres permettant de mesurer des débits de 9 à 900 Nm³.h⁻¹

L'huile filtrée est un lubrifiant pour compresseur à piston. Le brouillard d'huile est produit par une buse de pulvérisation de type ultrasonique, elle permet de produire une fine atomisation.

Celle-ci est placée au centre du tuyau à environ deux mètres du filtre, ainsi le brouillard d'huile arrivant au filtre peut être considéré comme homogène.

Une partie importante de l'huile pulvérisée se retrouve impactée sur les parois du tuyau, pour éviter tous phénomènes de stagnation, le tuyau d'arrivée d'air a une légère pente qui permet à l'huile impactée sur les parois de s'écouler jusqu'à un point de prélèvement où elle peut ainsi être récupérée. Le carter dans lequel est placé le filtre présente lui aussi une légère pente pour éviter que de l'huile ne s'accumule au niveau du coude.

Des prises de prélèvements et de pression sont placées en amont et en aval du filtre permettant de déterminer l'efficacité et l'évolution de la perte de charge lors de la filtration.

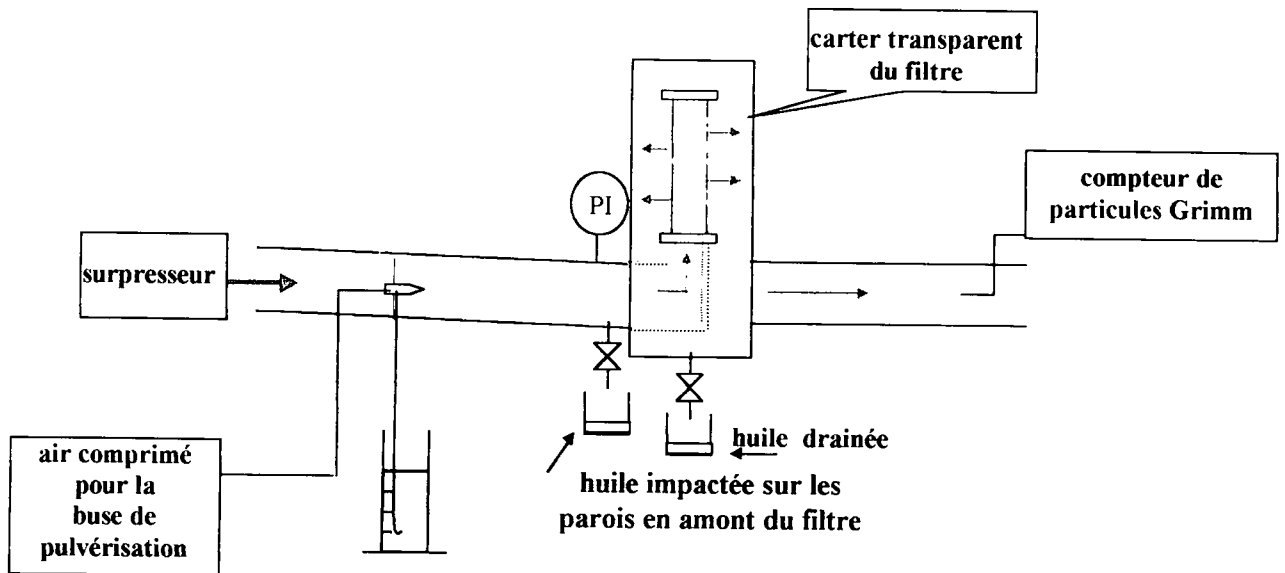


figure1 : Schéma du banc d'essai

II.2 Mesure de l'efficacité :

Mesure de la composition du gaz en amont du filtre

La concentration amont en huile est importante (quelques grammes par mètre cube). De ce fait, nous avons été dans l'incapacité de la mesurer directement même avec un impacteur Andersen. Celle-ci sera donc déduite du bilan massique en huile :

$$\text{Flux d'huile arrivant au filtre} = \text{Flux d'huile drainé} + \text{Flux d'huile en sortie du filtre}$$

Si la concentration d'huile avant filtration peut ainsi être obtenue, la répartition granulométrique ne peut être déterminée, elle aurait pourtant pu représenter un grand intérêt.

Mesure de la composition du gaz en aval du filtre

La répartition granulométrique et la concentration sont déterminées à l'aide d'un compteur optique de particules : compteur de Grimm G 1.108 (15 canaux de 0,3 μm à 20 μm)

II.3 Caractéristiques des filtres étudiés :

Deux types de filtres de la société Lautrette Industrie ont été testés :
Cartouche type CDO et SDO (figure 2)

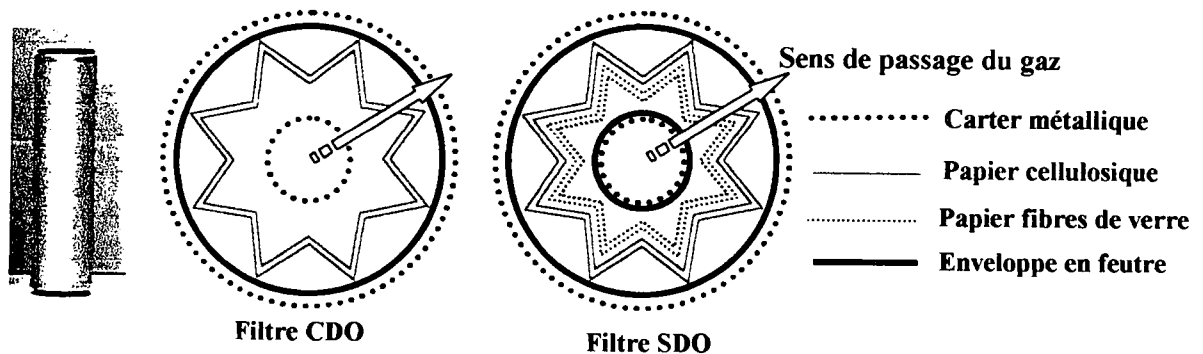


figure 2 : coupe schématique des filtres étudiés

Avec de tels filtres, la filtration des brouillards d'huile s'effectue par coalescence de l'intérieur vers l'extérieur du filtre, les gouttelettes d'huile interceptées suintent le long du filtre, l'huile s'écoule dans le fond du carter. Le temps au bout duquel nous observons la première goutte d'huile tomber dans le carter sera appelé : temps de drainage.

III. Présentation des essais et résultats expérimentaux :

III.1 Etude de la perte de charge :

L'allure des courbes (figure 3) est classique, déjà bien expliquée dans la littérature [2]

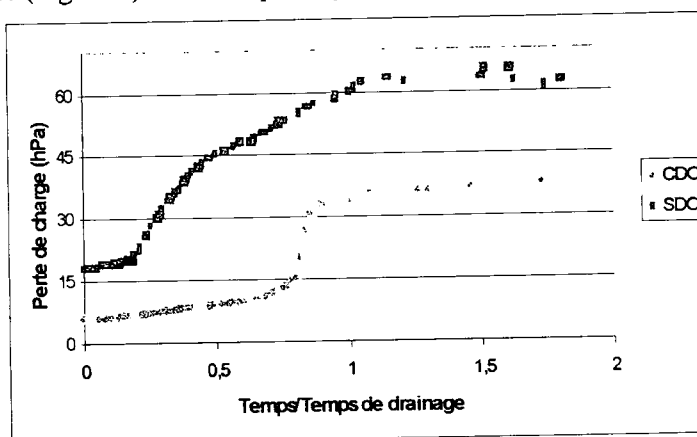


figure 3 : évolution de la perte de charge avec le temps

III.2 Evolution de la concentration globale de sortie

Les deux filtres présentent des comportements très différents comme le montre la figure 4

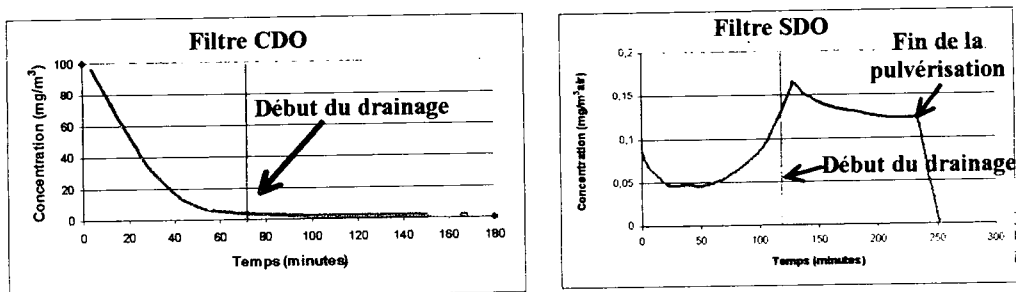


figure 4 : évolution de la concentration des gouttelettes en sortie des filtres dans les mêmes conditions expérimentales

Pour le filtre CDO, la concentration en aval diminue au cours du temps, c'est-à-dire que l'efficacité globale d'un filtre vierge est moindre que celle d'un filtre mature. Dès le début du drainage du filtre, celle-ci reste constante.

Pour le filtre SDO l'évolution de la concentration est plus difficilement explicable. Cependant nous devons noter que les deux filtres n'ont pas dans les même gamme d'efficacité.

Ces essais ont montré également qu'après l'arrêt de la pulvérisation des particules continuent à sortir du filtre, accréditant l'hypothèse d'un entraînement sous forme de gouttelettes de l'huile piégée.

Evolution de la concentration de sortie pour différents diamètres de particules

Si, comme le montre la figure 4, l'efficacité globale du filtre CDO augmente lors de la phase de maturation, il n'en est pas de même pour toutes les tranches granulométriques. En effet pour deux classes 0,575 et 0,725 μm (figure 5), nous constatons une brutale augmentation de leur concentration dès la phase de drainage avec apparition de bulles qui éclatent à la surface du filtre, ce qui laisse à

penser que ces gouttelettes sont générées par ce mécanisme. Nous ne représentons que quatre classes pour ne pas alourdir la figure.

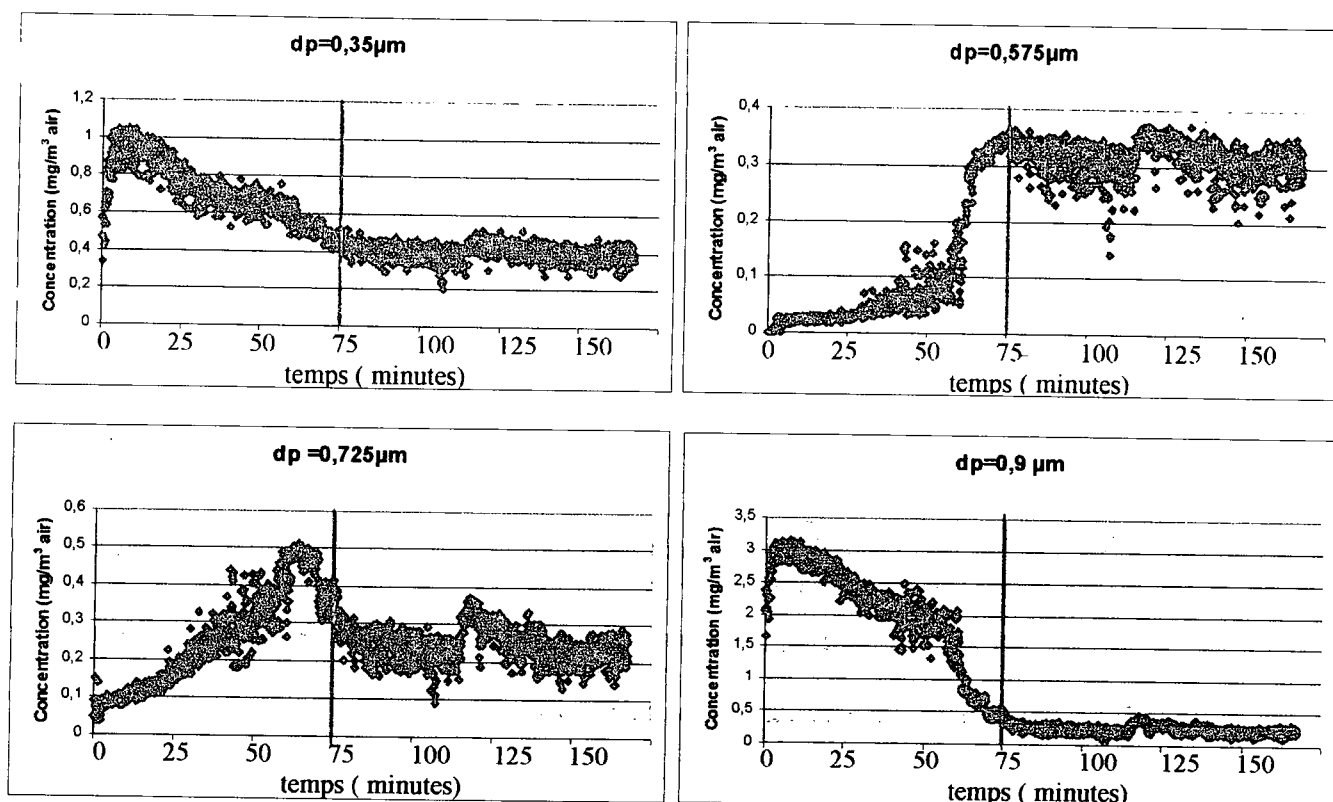


figure 5 : évolution de la concentration fractionnelle de quatre classes des gouttelettes en sortie du filtre CDO dans les mêmes conditions expérimentales

Pour le filtre SDO, toutes les classes de particules voient leur concentration augmenter au cours de la phase de maturation. Il n'y a pas de génération soudaine de particules au moment du drainage pour lequel nous n'observons que quelques rares bulles à la base.

IV. Modélisation du drainage

En fonction du flux d'huile retenu, nous proposons deux types d'écoulement de l'huile schématisés sur la figure 6:

- Un écoulement sous forme de filets : les gouttes piégées coalescent pendant la phase de maturation puis, au-delà de la rétention capillaire maximale, forment des filets continus qui s'écoulent vers le bas du filtre. Des gouttelettes peuvent ne pas être retenues par le filtre voire être entraînées (figure 7);
- Un écoulement sous forme de film : au-delà d'un débit maximal de drainage sous forme de filet, nous arrivons à une phase d'engorgement qui se traduit par la formation d'un écoulement sous forme de film traversé ou non par le gaz sous forme de bulles qui éclatent à la surface du filtre, comme le montre la figure 8, générant des particules.

En régime de drainage, pour une couche de médium filtrant donnée, nous pouvons avoir du haut vers le bas un écoulement par filets suivi d'un écoulement sous forme de film. Au fur et à mesure que le gaz

traverse les couches filtrantes, le flux d'huile à drainer diminue ainsi que la hauteur de la zone engorgée qui peut même disparaître si le flux à retenir reste inférieur au flux maximal de drainage par filets.

Par ailleurs l'huile qui arrive au pied de la couche filtrante ne peut s'évacuer qu'en traversant par percolation la couche suivante.

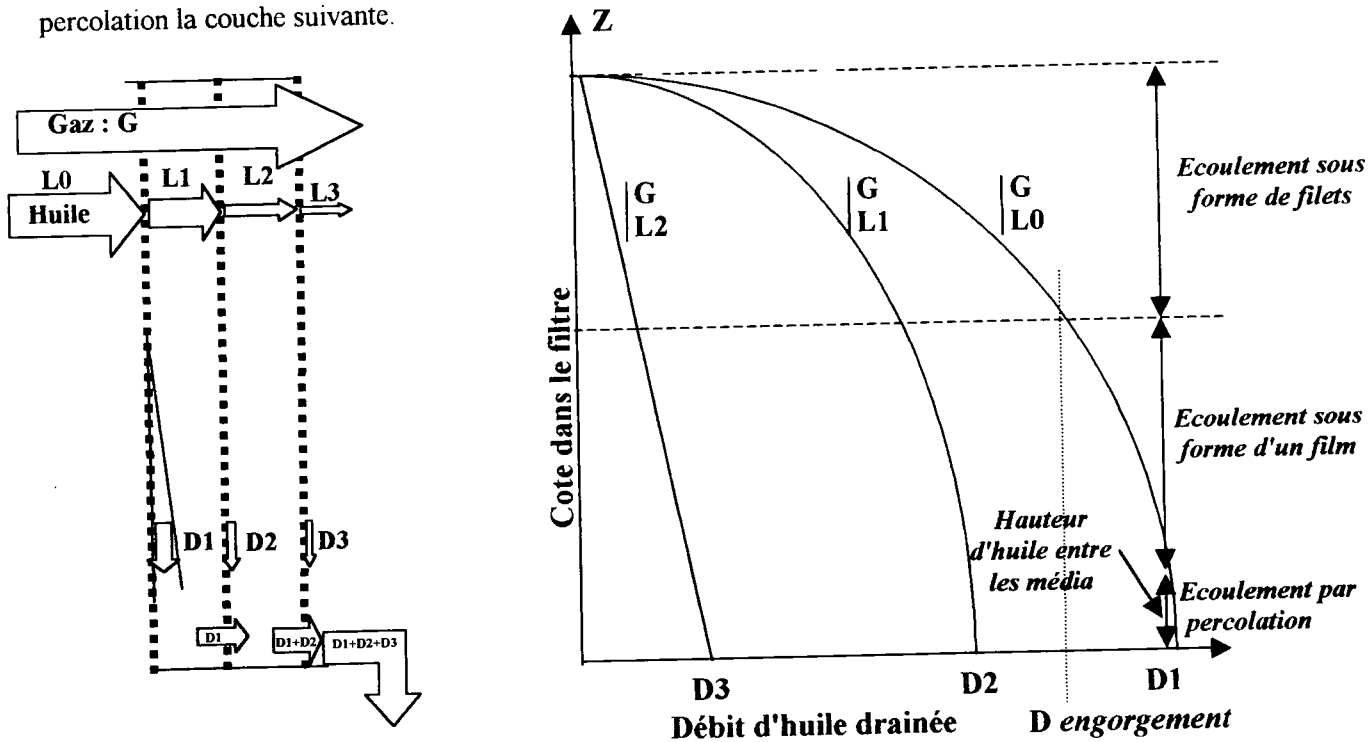


Figure 6 : modélisation du drainage d'un filtre à trois couches filtrantes, approche "contacteur gaz/liquide à courants croisés" L : flux d'huile à filtrer, G : débit de gaz, D : flux d'huile drainé.

Si les efficacités massiques des trois couches sont notées E1 E2 E3, nous avons les relations:

- Pour les flux d'huile à filtrer :

$$L1 = L0 (1-E1)$$

$$L2 = L1 (1-E2) = L0 (1-E1) (1-E2)$$

$$L3 = L2 (1-E3) = L0 (1-E1) (1-E2) (1-E3)$$

- Pour les flux d'huile à drainer :

$$D1 = L0.E1$$

$$D2 = L1.E2 = L0 (1-E1).E2$$

$$D3 = L2.E3 = L0 (1-E1) (1-E2) .E3$$

A chaque couche filtrante, les flux à drainer décroissent très rapidement du fait de leur efficacité.

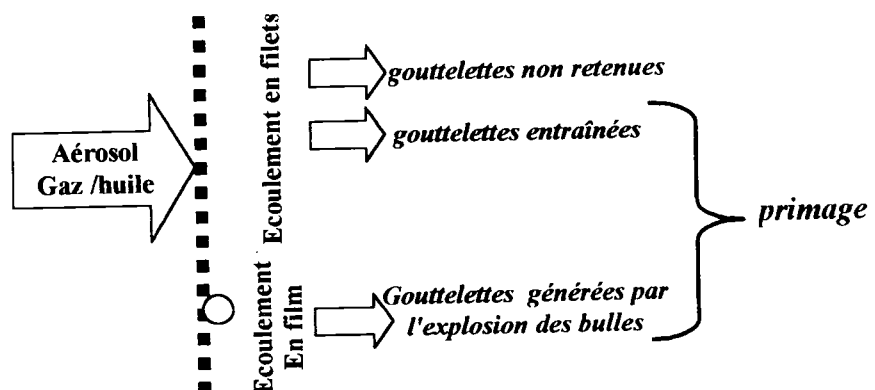


Figure 7: schéma des mécanismes de perte d'efficacité

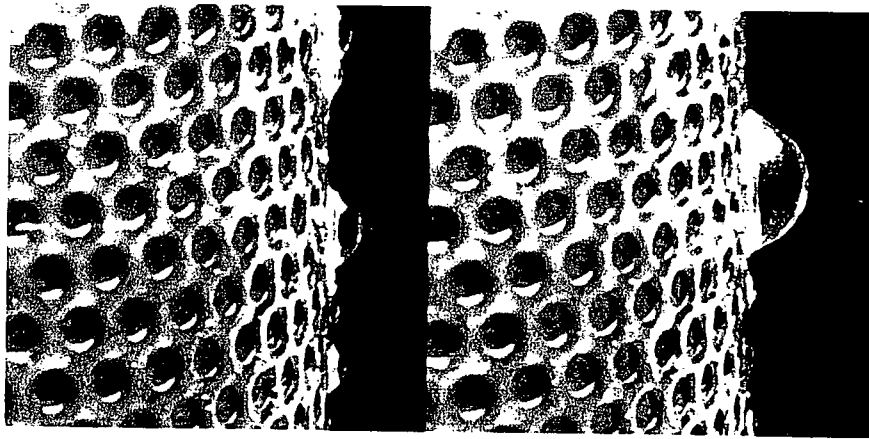


Figure 8 : photos montrant la gaz traversant le film liquide sous forme de bulles. Celles-ci peuvent coalescer, puis grossir avant leur explosion

V. Influence des débits de gaz et d'huile sur la répartition granulométrique de sortie pour le filtre CDO

Comme nous pouvons le voir sur la figure 9, pour un même débit d'air, la répartition granulométrique ne dépend pas du flux d'huile dans nos conditions expérimentales. Par contre, pour un même flux d'huile, l'augmentation du débit de gaz entraîne un glissement notable vers les petits diamètres

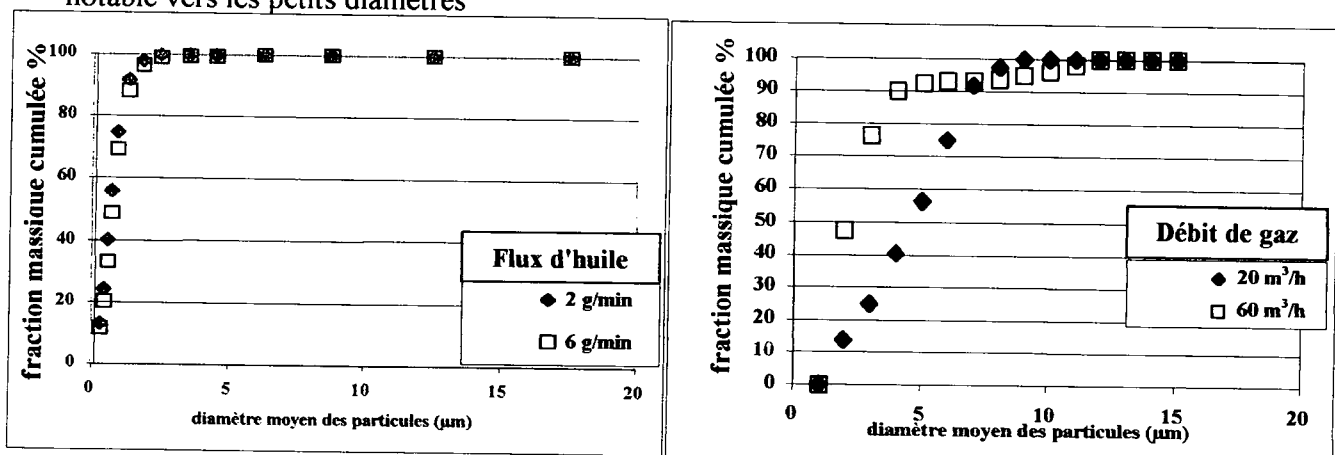


Figure 9 : Influence des débits de gaz et d'huile sur la répartition granulométrique de sortie

VI. Conclusion

Si cette étude a apporté des informations intéressantes, elle soulève en fait de nombreuses questions :

- Comment définir une efficacité fractionnelle dans la mesure où, lors du fonctionnement du filtre, nous avons, outre les particules non retenues, des gouttelettes entraînées par le gaz et d'autres engendrées par l'explosion des bulles, ce qui peut conduire à des efficacités négatives?
- La définition d'une efficacité globale a-t-elle un sens sans prendre en compte le couple des débits gaz/liquide ?
- Comment définir la vitesse de filtration ?
 - d'un point de vue radial, dans la complexité des plissements et des carters en tôle perforée,
 - d'un point de vue axial, dans la mesure où l'espace libre à l'écoulement du gaz diminue du haut vers le bas voire devient nulle compte tenu du flux de drainage.

Bibliographie

- [1] PAYET S., BOULAUD D., MADELAINE G., RENCQ A. Penetration and pressure drop of a HEPA filter during loading with submicronic liquid particles, *Journal of Aerosol Science*, 1992, 7, pp. 723-735.
- [2] PENICOT P., THOMAS D., CONTAL P., LECLERC D., VENDEL J. Clogging of HEPA filters by solid and liquid aerosol particles : an experimental study. *Filtration and Separation*, 1999, 36, pp. 59-64

LA TRAJECTOIRE DES PARTICULES DANS LES ELECTROFILTRES A GEOMETRIE FIL-CYLINDRE EN TENSION POSITIVE CONTINUE : ETUDE THEORIQUE ET EXPERIMENTALE.

R. BOICHOT (1), E. GONZE (1), A. BERNIS (1).

(1) Ecole Supérieure d'Ingénieurs de Chambéry ESIGEC, Laboratoire d'Optimisation et de Conception en Ingénierie de l'Environnement, Université de Savoie, 73370 Le Bourget du Lac.

I Introduction

Les électrofiltres à tension continue ont rencontré de nombreuses applications dans la filtration des petits débits de gaz, typiquement dans des unités transportables de faible dimension (épuration des fumées de friture, assainissement de l'air d'ambiance). L'intérêt de cette tension positive est la faible génération d'ozone, et un pilotage relativement plus simple qu'en tension négative. Notre travail est l'étude d'une géométrie fil cylindre classique, avec une différence majeure par rapport à d'autres procédés, le gaz traverse la cathode, qui est constituée d'un matériau léger ayant lui-même des capacités de filtration. Les vitesses de travail sont de plus très élevées (entre 0 et 50 m/s à l'injection). Nous travaillerons sur une méthode de détection du lieu d'impaction des particules dans la partie filtrante, qui permettra le développement d'un modèle de filtration des particules en géométrie fil - cylindre faisant appel à un minimum d'hypothèses simplificatrices, et pouvant être résolu sous Visual Basic pour Excel. Enfin, nous tenterons une approche microscopique des phénomènes électrostatiques prenant naissance à l'interface gaz - cathode, avec le développement d'un modèle électrostatique simple permettant de visualiser rapidement le champ électrique au voisinage du matériau de filtration. Tout porte à penser que la majorité de la filtration s'effectue à cette interface, et non en profondeur dans le filtre.

II Matériel et méthode

1) Dispositif d'essais

Le banc de filtration est constitué d'un porte filtre, avec en amont et en aval des systèmes de prélèvement avec filtres absolus, et en amont un système d'ensemencement des particules débouchant dans une arrivée d'air. Le générateur de particules est un *Setra GP 92*, fonctionnant sur le principe d'impacteurs en série, et générant des particules monodispersées de fluorescéine sodée de 180 nm. Le *Setra* génère 30 mg/h de fluorescéine. Le prélèvement est fait conformément à la norme AFNOR NFX 44-052.

La partie filtrante est constituée d'un matériau poreux conducteur, sous forme de 10 disques

empilés, dont la longueur totale est de 200 mm, le diamètre interne de 20 mm, et le diamètre externe de 40 mm. L'ensemble est aisément démontable, afin de récupérer la fluorescéine déposée. La fluorescéine est récupérée du support et des filtres absolus amont et aval par dilution dans une solution basique. La mesure de la fluorescence est effectuée avec un fluorimètre *Sequoia Turner 450*, dont l'étalonnage est vérifié avant chaque série de mesures. Deux débits seront étudiés, 9 et 20 m³/h, avec ou sans potentiel appliqué. Les dépôts de fluorescéine sont mesurés sur chaque tranche, ainsi que les efficacités de filtration totales. Pour la partie électrostatique, nous utilisons un générateur de tension positive continu, réglable en intensité de 0 à 2 mA, avec une tension maximale de 20 kV. L'anode est constituée d'un fil cylindrique de tungstène thorié de 0,2 mm de diamètre. Enfin nous disposons d'un surpresseur pour l'air de dilution, et d'air comprimé à 7 bars pour l'alimentation du générateur de particules.

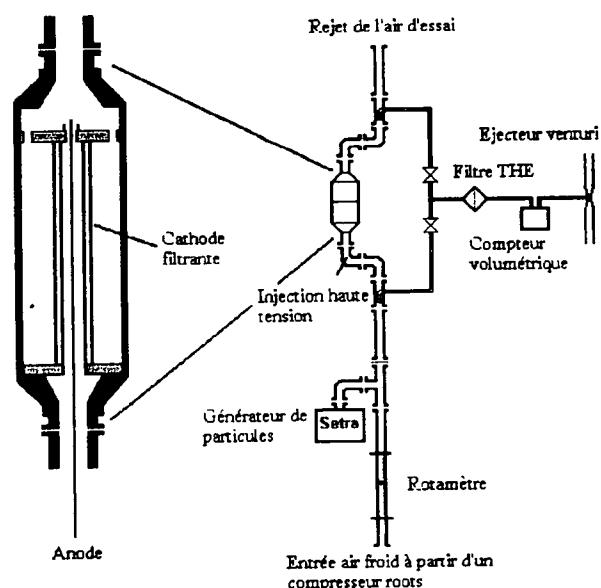


Schéma n°1 : montage expérimental. Le matériau filtrant est comprimé entre deux brides serrées par trois tiges filetées. La bride de sortie est percée afin de permettre l'écoulement du gaz. L'isolation de l'anode est assurée par des gaines en alumine ultra-pure. L'alignement des cylindres du matériau filtrant est assuré avec soin afin de ne pas gérer d'effets de pointe incontrôlés. L'ensemble du montage est relié à la masse du réseau électrique, et réalisé entièrement en pièces métalliques.

2) Calculs et Modélisations

La modélisation est effectuée en deux parties. La modélisation de l'écoulement dans le dispositif est réalisée à l'aide du logiciel Star – CD, et la modélisation de la trajectoire des particules est réalisée à l'aide d'un code Visual Basic entièrement développé sous Excel pour cette occasion.

a) Modélisation de l'écoulement

De manière préalable, un profil de vitesse est mesuré sur l'axe central à l'aide d'un tube de Pitot de 2 mm de diamètre. Une cartographie des pressions statiques est également réalisée.

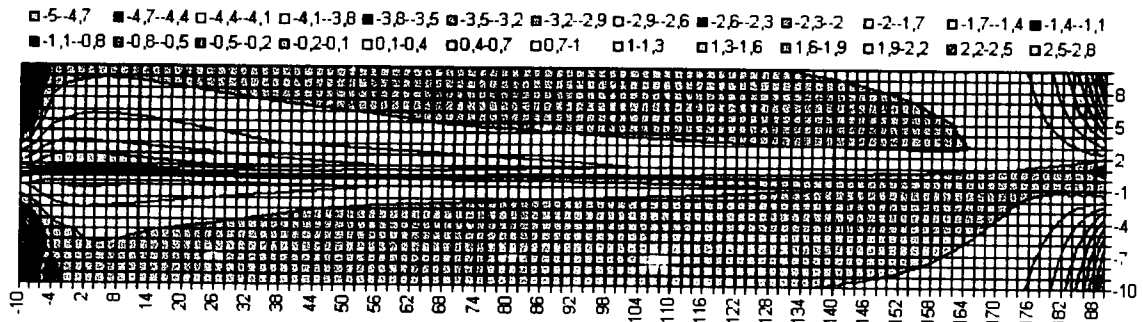
Les équations de Navier – Stokes sont résolues en régime permanent par Star CD avec la méthode des k- ϵ . Le modèle permet ainsi de connaître en chaque point de l'espace les vecteurs vitesse de l'écoulement. Les profils de vitesse expérimentaux et calculés par Star – CD montrent une bonne corrélation, nous considérons donc que cette modélisation est relativement fiable. Les profils de vitesse ne sont pas symétriques à cause de la présence d'un coude en amont du filtre.

b) Modélisation électrostatique.

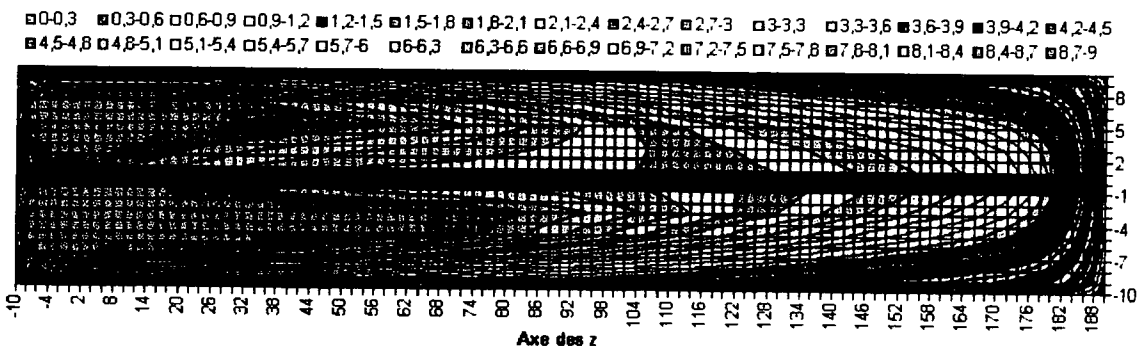
Comme préalable à cette modélisation, nous réalisons les courbes intensité – potentiel du dispositif. Ceci a permis de mettre en évidence une corrélation avec les relations de Peek et de Townsend, donnant le gradient de disruptive et le potentiel d'ionisation pour cette géométrie. De légères modifications sont constatées à cause de la forme rugueuse de la cathode (en partie dues à la définition floue du diamètre intérieur sur un point électrostatique). A partir de ces relations, un modèle mathématique est développé.

Dans un premier temps, les équations de Maxwell sont résolues en 1,5 D (géométrie cylindrique) pour une charge espace nulle [1], par discrétisation, et application de la méthode des différences finies. Puis la répartition de la charge espace est obtenue à l'aide de l'équation de continuité du courant, avec le courant modélisé. La charge espace modifiant le potentiel, un nouveau cycle de calcul est réalisé. Le modèle tourne ainsi en boucle jusqu'à tendre vers un résidu. Une définition de 200 points sur l'axe radial permet une bonne visualisation de la zone d'ionisation, dont le rayon est estimé par ce calcul entre 1 et 2 mm, en accord avec des mesures

Champ des vitesses radiales en m/s



Champ des vitesses axiales en m/s



Graphiques n°1-a et 1-b : modélisation Star CD des vitesses axiales et radiales du gaz dans la zone inter-électrodes, pour un débit d'entrée de 9 m³/h. Dans la zone d'écrasement du jet gazeux contre la bride d'arrêt, une forte vitesse radiale est visible. Ces modélisations sont en accord avec les mesures de vitesse réalisées sur l'axe central

experimentales [2], et avec des photos à long temps de pose prises au LOCIE. Nous constatons par contre que même dans des conditions proches du claquage, le champ électrique dans la zone de dérive est peu modifié par la charge espace.

Dans un deuxième temps, un modèle lagrangien de dispersion des particules est créé. Le modèle prend pour entrée les profils radiaux et axiaux des vitesses moyenne, les profils radiaux de charge espace et de champ électrique, ainsi que la caractéristique des particules étudiées (pour la fluorescéine, $\rho = 1350 \text{ kg/m}^3$, $d = 180 \text{ nm}$), et des variables d'ajustement.

Comme nous ne disposons pas des vitesses instantanées, nous réalisons un modèle de turbulence à partir des relations de vitesses instantanées données pour un écoulement turbulent en conduite cylindrique, tenant compte du nombre de Reynolds local et de l'échelle de taille caractéristique de l'écoulement. Un signal aléatoire d'espérance 0 et d'écart-type 1 est appliqué sur la composante fluctuante de la vitesse à chaque pas de temps. Étant donné que nous avons des temps de séjour de quelques ms, nous démontrons que le mouvement brownien ne joue aucune influence sur la diffusion des particules, qui est uniquement d'origine turbulente. Les particules sont injectées individuellement dans l'écoulement, de manière complètement paramétrable, et le centre de la particule sert de repère aux calculs. Le calcul est résolu sur une base temporelle, en deux dimensions. A chaque pas de temps, la particule est soumise à plusieurs forces : une force de traînée due à la différence entre sa vitesse et celle de l'écoulement, et une force électrostatique due à la présence de charges positives à sa surface [3]. L'équation de charge de la particule, est également résolue à l'aide des composantes locales du champ électrique et de la charge espace. La charge de la particule est assurée par l'apport d'ions positifs par le champ électrique, et par la diffusion de la charge espace sur sa surface, jusqu'à ce que le champ généré par la particule soit en équilibre ou supérieur au champ au champ extérieur [4]. Pour une taille de particules fixe, une population complète de particules chargées est générée, en fonction de l'histoire individuelle de chaque particule. Cette modélisation permet donc d'approcher de manière relativement réaliste les phénomènes réels prenant place dans un électrolyte. La contre partie étant que l'on ne peut avoir de résultats continus qu'en injectant un nombre important de particules, de l'ordre de 10000.

Enfin, lorsqu'une particule touche l'anode, ou la bride de fixation de l'anode, sa vitesse radiale, sa charge, son temps de séjour et sa trajectoire sont stockés afin de réaliser un traitement statistique.

Lorsqu'une particule atteint la cathode, elle est injectée dans un troisième modèle, qui permet de prédire l'efficacité de filtration du matériau poreux pour cette particule chargée, selon les modèles d'impaction - interception - diffusion classiques des milieux poreux [5].

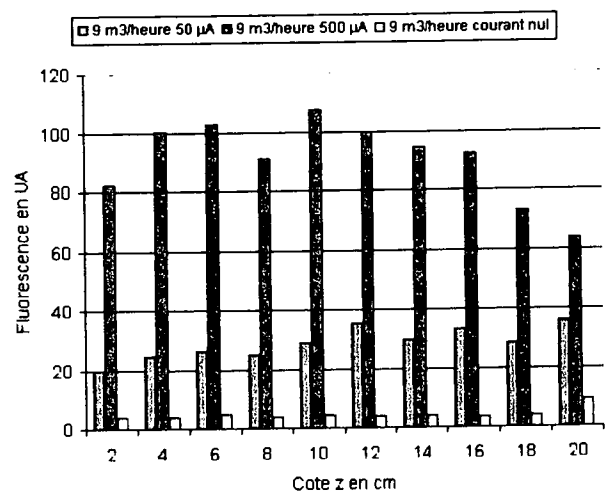
Le modèle est laissé en fonctionnement jusqu'à ce que la répartition calculée des particules sur le milieu poreux ait un aspect continu, qui puisse être comparé aux mesures expérimentales.

Les particules sont injectées de manière aléatoire sur tout le rayon, mais à l'extérieur de la zone d'ionisation, dans lequel le comportement de la particule est indéfini. Afin d'éviter les erreurs de calcul et les erreurs système, une vérification des résultats permet de rejeter les séries douteuses, et d'assurer la continuité de la modélisation sans intervention (calcul de nuit par exemple).

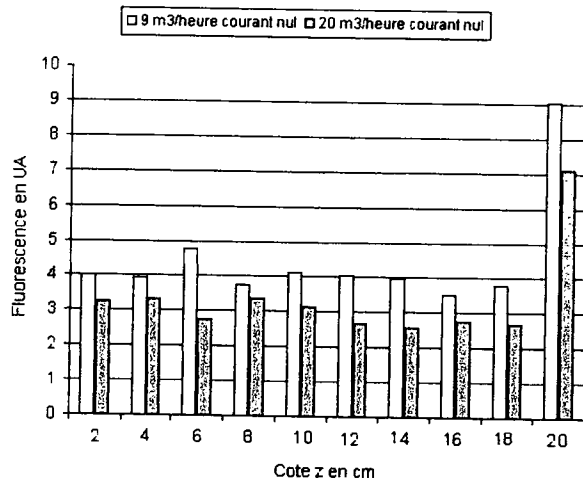
3) Résultats

a) Résultats expérimentaux

Les mesures expérimentales sont réalisées pour deux débits : 9 et 20 m³/h, et avec trois courants, 0, 50 et 500 μA . La modélisation à courant nul permet de vérifier l'hypothèse faite avec Star CD, qui est que la perte de charge du matériau poreux est quasi nulle, et que l'écoulement se comporte comme un jet libre s'écrasant sur une plaque (flux de particules et filtration élevés en bout de filtre).



Graphique n°2-a : quantité de fluorescéine recueillie par tranche pour un débit de 9 m³/h. L'effet du courant, et donc du champ, engendre une efficacité accrue de la filtration, et une augmentation de la vitesse de migration des particules dans l'espace inter-électrodes.



Graphique n°2-b : quantité de fluorescéine recueillie pour deux débits de filtration. Les profils de filtration sont à peu près identiques, mais aux fortes vitesses, l'efficacité de filtration diminue à cause de la dégradation des effets de diffusion.

Les efficacités de filtration totales sont les suivantes :

- 0,4 et 0,5 % pour les essais à courant nul, et respectivement 9 et 20 m³/heure
- 35 et 68 % pour les essais à 9 m³/h (à 12 kV et 50 µA, et 17 kV et 500 µA respectivement).

Les temps de séjours pour 9 et 20 m³/h sont respectivement de 11 et 25 ms. Pour des temps de séjour très courts, nous avons des efficacités non négligeables. Ces résultats nous ont fait nous demander si les temps de séjours des particules étaient suffisants pour qu'elles atteignent leur charge de saturation, et si leur mobilité électrique était suffisante pour que leurs trajectoires sortent des lignes de courant de l'écoulement.

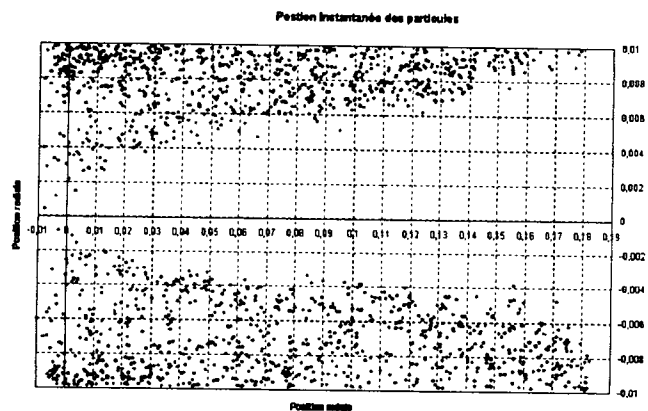
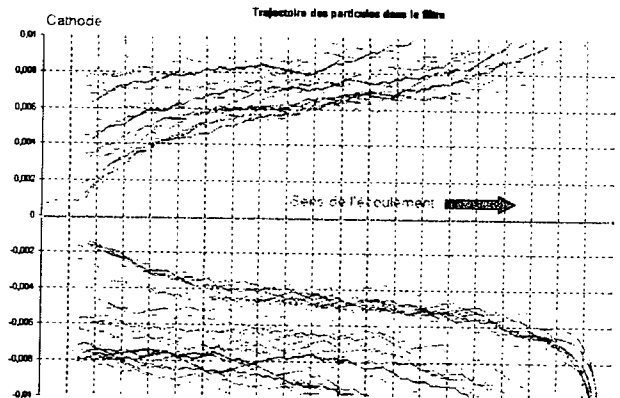
De plus, aucun modèle théorique ne permet de prévoir de telles efficacités avec des fibres neutres et des particules chargées, avec de telles vitesses. Il est donc particulièrement intéressant de quitter une approche globale pour s'intéresser plus finement aux phénomènes. Ceci nous a conduit à développer un modèle lagrangien de migration des particules, et un modèle de prédiction des champs électriques au voisinage des parois rugueuses.

Disposant des champs de vitesse axiaux et radiaux, et du champ électrique, il ne reste plus qu'à injecter des particules dans l'ensemble et à suivre leur évolution.

b) Résultats de la modélisation

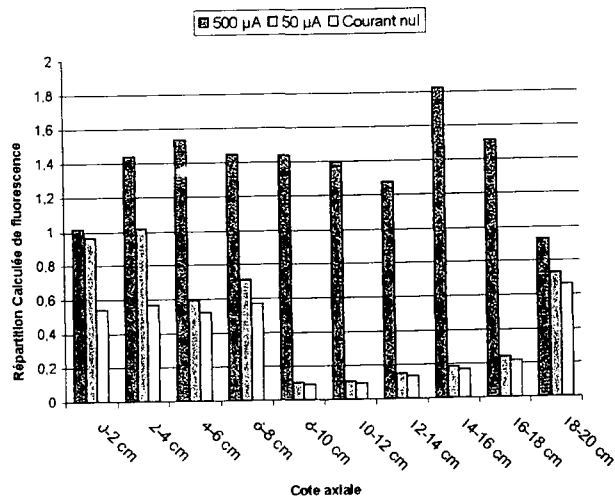
A partir de la modélisation nous pouvons obtenir :

- la répartition des particules arrêtées par la cathode, leur charge et leur temps de séjour
- la répartition des particules traversant la cathode, leur charge et leur temps de séjour
- la trajectoire des particules et un nuage de positions instantanées



Graphique n°3-a et 3-b : trajectoire de 100 particules, et position instantanée de 2200 particules dans l'espace inter - électrodes. L'influence de la vitesse radiale dans les derniers centimètres de l'écoulement provoque une éjection des particules contre le matériau filtrant.

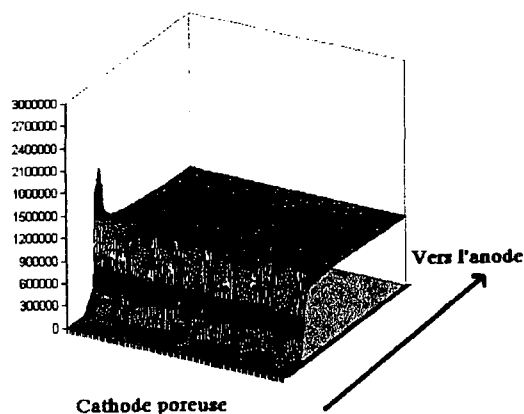
Nous avons ainsi pu tracer le lieu d'impact des particules, et avec des modèles de filtration en milieu poreux, reconstituer une répartition théorique des particules arrêtées. Cette modélisation, bien que donnant de bons résultats, ne permet pas de prévoir fidèlement la masse de particules arrêtées par tranche de filtre. Les modèles de filtration classique sont donc déficients à prévoir l'efficacité de filtration. En effet, lors du démontage des cylindres poreux, nous constatons que la majeure partie des particules est arrêtée sur les premières aspérités du médium, et qu'aucun dépôt ne se fait en profondeur. L'interface gaz - milieu poreux joue donc un rôle fondamental, que nous allons tenter de comprendre.



Graphique n°4 : profil de la quantité de fluorescéine arrêtée par le filtre à 9 m³/heure. Si les profils sont à peu près comparables aux essais précédents, leur valeur absolue est 50 fois inférieure : les modèles de filtration classiques ne conviennent pas pour décrire ce type de filtre

c) Modélisation électrostatique de l'interface gaz – cathode par la méthode des différences finies.

Un code basé sur la méthode des différences finies permet d'obtenir assez rapidement les profils de champ en 2D à partir d'une paroi irrégulière soumise à une condition de potentiel face à elle, et à deux conditions de symétrie sur les côtés.



Graphique n°5 : champ électrique au voisinage du milieu poreux pour une case de 1 mm de côté, en 10000 points (Echelle de couleur en V/m). La convergence des lignes de champ est responsable d'une attraction des particules vers les sommets des aspérités, avec une efficacité non prévue par les modèles courants de la bibliographie.

Le modèle fonctionne à partir d'une image noire et blanc interprétée par le code de calcul. On peut imaginer travailler avec une photo en coupe de l'interface également (avec un traitement de couleur approprié).

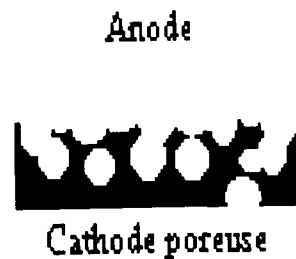


Schéma n°2 : Image bitmap originale en 100 x 100 pixels. L'image représente une ouverture de pore de 100 µm. L'influence de la porosité est difficile à représenter.

La convergence des lignes de champ est responsable à elle seule de plus de 90 % de l'effet de filtration.

Nous avons également travaillé avec un compteur de particules optique de marque Grimm pour tester les efficacités de filtration sur une gamme de particules de 0,35 à 10 µm (aérosols atmosphériques). A 20 kV, et sur la gamme micronique, les efficacités de filtration sont de l'ordre de 85 % jusqu'à 20 m³/heure, et s'effondrent au-delà de 35 m³/heure pour atteindre un palier, avec peu d'influence du diamètre des particules.

Sur la gamme submicronique, la faible charge des particules, couplée aux fortes vitesses d'injection, permet difficilement de dépasser 70 % d'efficacité à 20 kV et 9 m³/heure, avec une décroissance constante vers les faibles diamètres de particules.

Des essais à géométrie variable ont également montré une relation de l'efficacité en $1 - \exp(-k.L.P/Q)^{0,83}$, avec L longueur totale du module, P la puissance électrique injectée en Watts, Q le débit volumique en m³/s, et k un coefficient d'ajustement tenant compte du diamètre des particules traitées. Cette approche macroscopique corrèle très bien les résultats expérimentaux, et nous espérons pouvoir la relier à l'approche microscopique.

Enfin pour des vitesses de gaz du même ordre de grandeur que les vitesses de migration des ions positifs dans l'électrofiltre, on constate une baisse importante du courant de collecte par la cathode. Ceci peut-être expliqué par l'entraînement de particules de charge bipolaires, et d'espèces moléculaires lourdes chargées, sans fixation sur la cathode. Cet

effet est d'autant plus important que le potentiel appliqué est faible.

4) Perspectives et conclusions

Nous avons mis en évidence que la modélisation d'un filtre électrostatique à cathode poreuse n'est pas une chose simple, dans le sens où le comportement d'une particule à l'interface gaz - cathode est fortement inhomogène. Les irrégularités de surface de la cathode sont responsables d'une forte convergence locale des lignes de champs, qui augmente considérablement l'efficacité de filtration des particules par rapport à ce que l'on pourrait attendre avec un médium poreux dans lequel passent des particules chargées. De plus l'efficacité globale est très supérieure à celle d'un électrofiltre fil-cylindre de même dimension, parce que l'on oblige les particules à s'approcher artificiellement de la cathode. Ce montage combine donc les avantages des filtres passifs, et des électrofiltres fil-cylindre.

La prochaine étape de modélisation sera de tenter de quantifier localement par une relation empirique l'efficacité de filtration en fonction de la mobilité électrique de la particule et de sa vitesse d'approche, à l'aide d'un nouveau modèle permettant d'injecter des particules dans un profil de champ inhomogène proche de la cathode. En première approximation, seule l'efficacité des premiers mm de médium pourront être pris en compte.

La quasi - infinité des cas d'approche, de charge des particules, d'angle d'attaque, de géométrie de la cathode, laisse penser qu'il sera nécessaire pour l'instant de n'étudier que quelques paramètres dans cette étude, et de continuer à progresser dans une approche globale énergétique du procédé.

Un couplage modélisation lagrangienne des trajectoires - efficacité locale empirique sera bientôt développé, dans le but de créer un modèle complètement opérationnel, pour optimiser l'efficacité du procédé en traitement des particules microniques.

5) Bibliographie

- [1] J.H. Goo, J.W. Lee. Stochastic simulation of particle charging and collection characteristics for a wire-plate electrostatic precipitator of short length. *Aerosol Science*, 1997.
- [2] Y. Zebboudj, G. Hartmann. Current and electrical field measurements in coaxial system during the DC positive corona in humid air. *The European Physical Journal, Applied Physics*, 1999.
- [3] Choi, Fletcher. Turbulent particle dispersion in an electrostatic precipitator. *Applied Mathematical Modelling* n°22, 1998.
- [4] S.H. Kim, K.W. Lee. Experimental study of electrostatic precipitator performance and comparison with existing theoretical prediction models. *Journal of electrostatics*, 1999.
- [5] P. Pénicot-Bauge, thèse. Etude de la filtration de filtres à fibres lors de la filtration d'aérosols liquides ou solides submicroniques, 1998.

INFLUENCE DES CARACTERISTIQUES DE L'AEROSOL D'ENTREE SUR L'EFFICACITE D'UN FILTRE ELECTROSTATIQUE

S. Tokarek * (1), S. Rosalie (1) et A. Bernis (2)

(1) RATP, Contrôle Général de Sécurité, 21 boulevard Bourdon, 75004 Paris

(2) Laboratoire de Génie des Procédés, ESIGEC, Savoie Technolac, 73376 Le Bourget du Lac

Résumé :

Un électrofiltre pilote de la société Recycl'Air est installé dans une station de métro en vue de son optimisation par rapport à l'aérosol de la RATP. Des mesures d'efficacité du filtre ont été faites à l'aide d'un comptage particulaire à l'amont et à l'aval. Nous avons injecté différentes concentrations de particules du métro en entrée du filtre à l'aide d'un générateur de poudre Pallas et nous avons étudié la réponse du procédé. Le nombre de particules totales ainsi que la proportion de grosses particules semblent jouer un grand rôle dans l'efficacité du procédé.

Mots-clés : filtration électrostatique, efficacité, concentration particulaire, métro

La bonne qualité de l'air régnant dans le réseau souterrain est une attente forte des usagers du métro parisien. L'empoussièrement est l'une des préoccupations majeures, notamment, s'il fallait satisfaire aux valeurs réglementaires annoncées pour les années futures. Malgré des progrès, les teneurs en poussières dans l'air intérieur du métro sont supérieures à celles que l'on rencontre à l'extérieur. Ces particules sont émises par les systèmes de freinage et de guidage du métro, par les voyageurs, par les sols et les revêtements. Elles sont remises en suspension à chaque fois qu'un train passe et reste de façon permanente en suspension aux heures de pointe. Pour abaisser l'empoussièrement, des actions peuvent être menées soit, à la source (changement du système de freinage des trains, réfection des quais...), soit à partir de solutions techniques traitant l'air ambiant. C'est cette deuxième voie que nous explorerons actuellement au sein de notre entreprise. Une recherche initiale [1] a permis de montrer la faisabilité et la pertinence de la filtration électrostatique. L'étude en cours a pour but d'optimiser le fonctionnement de ce type d'appareil dans les conditions du métro. Un électrofiltre pilote tubulaire de la société Recycl'Air est donc installé dans une station de métro en vue de son optimisation par rapport à l'aérosol de la RATP [2].

I. Montage expérimental

1.1 Choix du lieu d'expérimentation

La station de métro qui a été choisie pour l'étude de faisabilité de désempoussièrement est la station "Arsenal" fermée au public sur la ligne 5 du métro (Place d'Italie- Bobigny). En effet la ligne 5 est une ligne ayant une concentration élevée en particules à cause notamment du matériel roulant ferré et du manque de ventilateurs mécaniques entre les stations. De plus cette station était très proche de notre lieu de travail et surtout accessible toute la journée, ce qui n'aurait pas été le cas pour une station exploitée.

Les mesures faites à l'aide du compteur optique de particules Grimm montrent que le même taux de particules est décelé à Arsenal et sur les autres stations souterraines sans correspondance exploitées de la ligne. En effet, le train arrivant en station apporte avec lui un nuage de particules provenant de la station précédente.

1.2 Présentation du filtre électrostatique

Un électrofiltre pilote a été fourni par la société Recycl'Air France. De l'air atmosphérique est aspiré par une turbine d'environ $800 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ placée à l'intérieur du filtre. L'air passe ensuite dans quatre modules de filtration montés en parallèle constitués chacun de deux cartouches cylindriques en série. Un ou plusieurs modules peuvent être utilisés en même temps. La vitesse d'aspiration est de l'ordre de 5 m/s dans chaque tuyau d'aspiration et la vitesse de refoulement est du même ordre de grandeur. Chaque cartouche cylindrique a un diamètre intérieur de 120 mm et une longueur de 1,3 m. Les cartouches comportent une électrode émissive portée à 8000 V constituée d'étoiles métalliques. L'électrode collectrice est représentée par un tricot métallique mis au potentiel de la terre. Le tuyau de sortie a un diamètre de 26 cm.

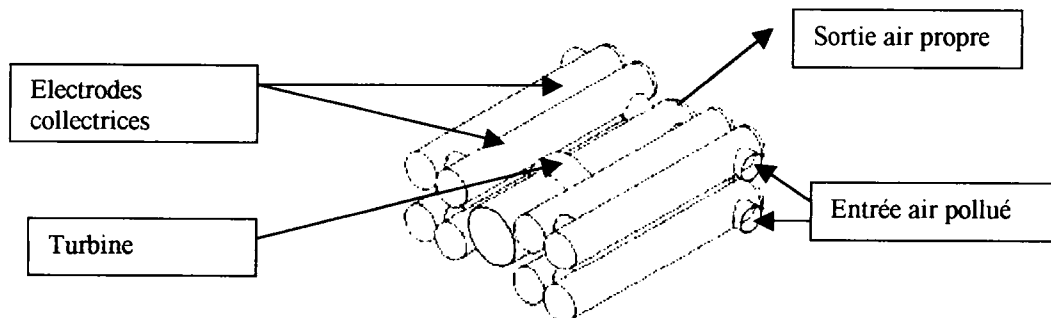


Figure 1 : Filtre Recycl'Air utilisé

1.3 Motivation de l'étude

Des mesures d'efficacité du filtre ont été faites à l'aide d'un comptage particulaire à l'amont et à l'aval avec un compteur optique laser Grimm. Lors des mesures effectuées, nous avons observé que l'efficacité du filtre était meilleure la journée que la nuit pour toutes les classes granulométriques (figure 2). En journée, l'efficacité est de 0.62 ± 0.02 ; la nuit elle est de 0.45 ± 0.01 .

Les raisons de cette différence peuvent venir du fait que la nuit on ait une tension électrique moins élevée ou une quantité de particules métalliques moins importante ou un changement de température ou d'humidité ou une concentration de particules moins élevée à cause de l'arrêt du trafic ou enfin plus de petites particules à cause de la sédimentation des plus grosses. Les trois premiers paramètres ont été testés et ont été discrédités. Restent les deux derniers paramètres à vérifier.

1.4 Protocole de mesures

Nous avons par conséquent injecté différentes concentrations de particules du métro récupérées dans des trains aspirateurs de voies en entrée du filtre à l'aide d'un générateur de poudre Pallas (formé d'un piston et d'une brosse mécanique). Nous avons étudié la réponse du procédé afin de tenter d'expliquer cette différence de comportement entre le jour et la nuit. L'intervalle de

concentration couvert s'étend de 10^5 à $1.5 \cdot 10^6$ particules supérieures à 0.3 micromètres par litre, correspondant à des concentrations éventuelles du réseau métropolitain. Les faibles valeurs correspondent à des valeurs relevées pendant les nuits sans travaux. Les plus fortes représentent des pics de pollution (heure de pointe). La régulation de la concentration en particules à l'entrée se fait par l'intermédiaire de deux paramètres : le débit d'injection des particules (régulé par la vitesse du piston d'injection et de la brosse mécanique) et la compacité du bloc de particules présent dans le réservoir. L'efficacité du procédé est définie comme le rapport du flux de particules capté sur le flux entrant. Les concentrations aval et amont de particules sont déterminées à l'aide d'un compteur optique de particules Grimm.

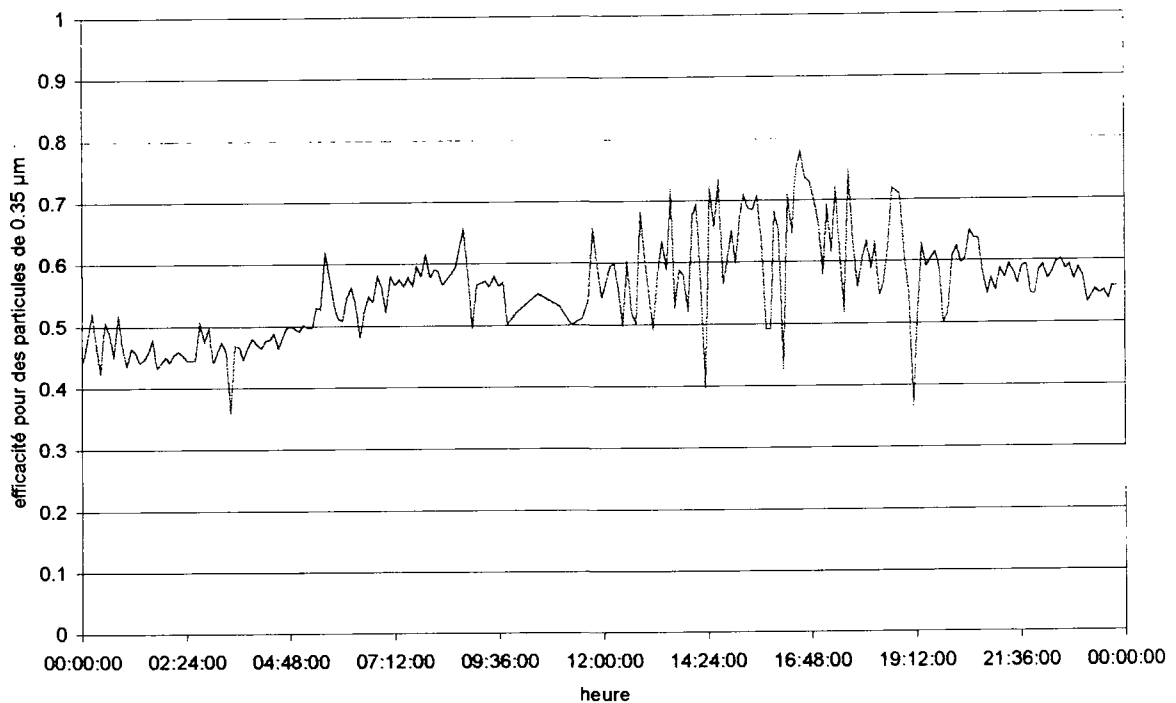


Figure 2 : évolution de l'efficacité du filtre pour des particules de 0.35 µm en fonction de la journée

II. Résultats obtenus

Il semble qu'un nombre important de particules totales à l'entrée du filtre génère une meilleure efficacité pour toutes les classes granulométriques (figure 3). Ce résultat peut paraître surprenant; c'est pourquoi nous avons essayé de déterminer un deuxième paramètre lié au premier qui pourrait avoir un rôle important : la part de grosses particules. En effet les résultats montrent que plus la

proportion de grosses particules est importante meilleure est l'efficacité pour les fines (figure 4).

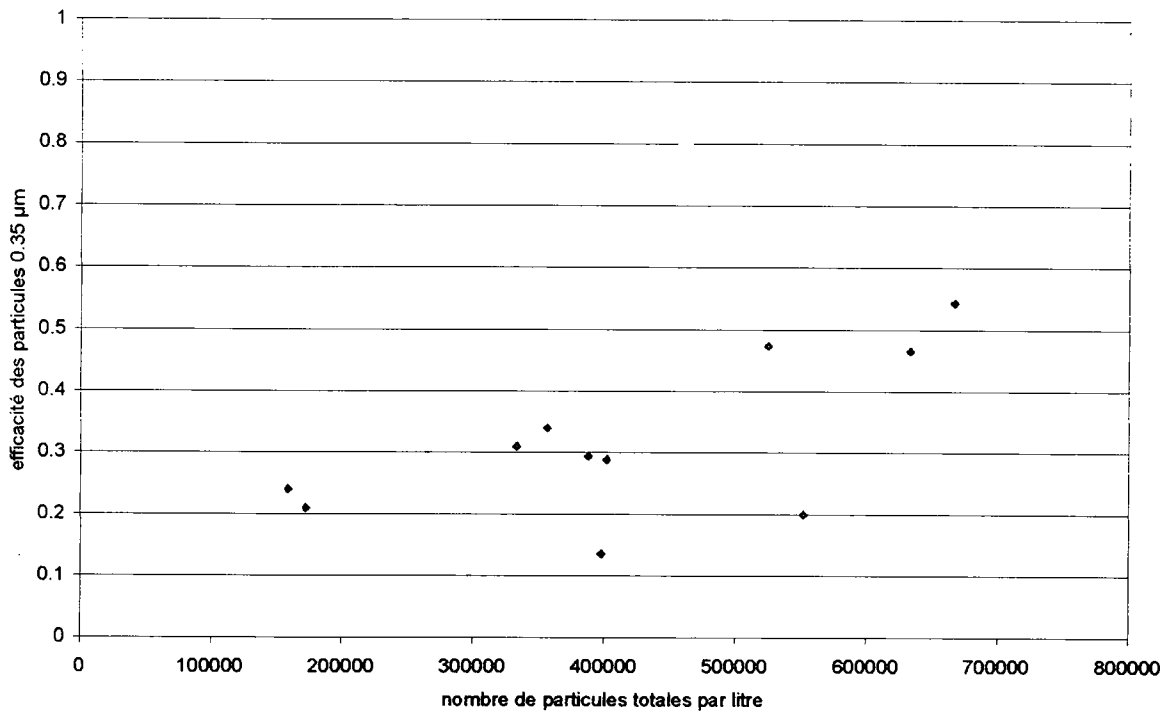


Figure 3 : évolution de l'efficacité en fonction du nombre de particules totales à l'entrée par litre

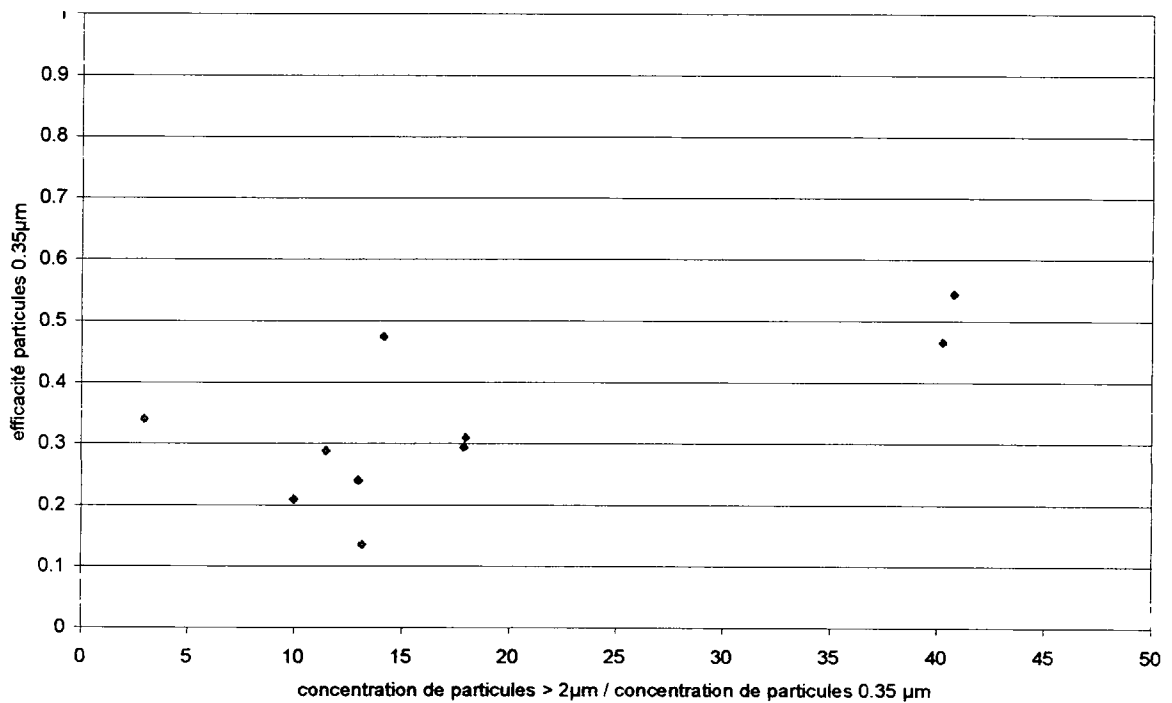


Figure 4 : évolution de l'efficacité en fonction du rapport de la concentration des particules > 2 µm sur la concentration des particules de 0.35 µm

III. Interprétation des résultats

Deux hypothèses peuvent être envisagées en réponse aux résultats présentés au paragraphe précédent :

III.1 Influence du nombre de particules totales

Nous avons vérifié que plus le nombre de particules totales est important à l'entrée du filtre, meilleure est l'efficacité pour toutes les tailles de particules. Ce résultat est surprenant et novateur dans le domaine car généralement c'est le contraire qui est observé : quand la concentration augmente, les ions deviennent moins mobiles et l'efficacité est amoindrie. Dans notre cas, on peut supposer qu'en présence d'un grand nombre de particules chargées et d'ions dans un même lieu, la densité de charge d'espace augmente et se superpose au champ initial. Ainsi la valeur du champ électrique croît et le déplacement des charges libres de l'air est accéléré. L'énergie cinétique acquise par les électrons est augmentée, ce qui provoque une ionisation plus importante et plus aisée des molécules neutres de l'air. L'efficacité de captation est par conséquent améliorée. Dans ce cas, il serait alors possible que la précipitation des particules continue dans une région en aval de la zone d'ionisation par les électrodes, car la densité de charge d'espace suffirait peut être à provoquer une efficacité de collecte des poussières.

III.2. Influence de la proportion de grosses particules

Expérimentalement, nous montrons que plus le nombre de grosses particules est grand, meilleure est l'efficacité du filtre pour les petites particules. Cela signifie qu'au cours de leur migration, les grosses particules entraînent les plus fines soit par agglomération par effet électrostatique soit dans leur sillon aérodynamique. Leur présence favorise ainsi la migration des plus petites. Le phénomène d'agglomération des petites particules sur les grosses a été mis en évidence dans la bibliographie [3]. Cependant dans un électrofiltre classique il est possible que les petites et les grosses particules aient la même polarité et par conséquent qu'elles aient plus tendance à se repousser qu'à s'attirer.

IV. Conclusion

Ces hypothèses peuvent donc expliquer la différence d'efficacité du filtre observée entre la nuit et le jour : concentration moins importante la nuit car le trafic de trains est nul et plus grande proportion de petites particules puisqu'il y a sédimentation des plus grosses. Il est possible que ces deux hypothèses influencent le fonctionnement du filtre mais la part de chacune est difficilement quantifiable. Ce "dysfonctionnement" du filtre en fonction de ces paramètres est nouveau dans le domaine de la filtration et peu nombreux sont les scientifiques ou les constructeurs qui se sont intéressés au problème.

Références bibliographiques :

- [1] : S.Mazoué . (1998) Elaboration et validation d'un système de traitement d'air pour les espaces souterrains du métropolitain parisien, thèse de la Faculté des sciences de Créteil
- [2] : Tokarek, S. Gabay, D. Bernis, A. (2002) A method to reduce the particle pollution in the air of Parisian subway stations. 10th International Air Pollution Conference, Segovia, WIT Press
- [3] : Hautanen, J. Kilpelainen, M. Kauppinen, E. Jokiniemi, J., Lehtinen, K. (1995) Electrical agglomeration of aerosol particles in an alternating electrical field. Aerosol Science and Technology, **22**, 2, 181-189

Contact entreprise :

Recycl'Air - Pist Oasis - 131 impasse des Palmiers - 30100 Alès, France

ANALYSE DES DEUX PREMIERS ESSAIS DU PROGRAMME

EXPERIMENTAL PHEBUS PF

M. Kissane

Département de Recherches en Sécurité, Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire,
C.E. Cadarache - bât. 702, B.P. 3, 13115 Saint-Paul-lez-Durance Cedex
martin.kissane@irsn.fr

TITLE

Analysis of the first two tests of the Phébus FP experimental programme.

ABSTRACT

Phébus FP studies the phenomenology of severe accidents in light-water cooled nuclear reactors. Tests cover fuel-rod degradation and behaviour of fission products released via the coolant system into the containment building. Analysis using computer codes aims to identify modelling weaknesses where, here, focusing on aerosol aspects, the main conclusions from analysis of the first two tests are drawn. It is seen that in weakly turbulent conditions: for a supersaturated vapour with competition between homogeneous nucleation, heterogeneous nucleation and condensation on structures, codes can significantly underestimate this latter condensation; where thermophoresis dominates, codes overestimate deposition despite prior validation of the widely-used Talbot interpolation model. Possible explanations are identified. In the containment, codes generally model aerosol concentration decrease satisfactorily with adequate reproduction of the split between diffusiophoresis and settling.

RESUME

Le programme Phébus PF est consacré à l'étude de la phénoménologie d'accidents de fusion de cœur de centrales nucléaires refroidies à l'eau légère. Les conditions qui se produiraient lors de tels accidents sont simulées englobant la dégradation des crayons de combustible et le comportement des produits radioactifs relâchés à travers le circuit primaire dans l'enceinte de confinement. L'analyse des essais à l'aide de codes de calcul a pour objectif principal l'identification de toute lacune éventuelle de modélisation. Ici, se focalisant sur les aspects aérosol, les conclusions principales de l'analyse des deux premiers essais sont exposées. Sous conditions d'écoulement faiblement turbulent, on constate que : pour ce qui concerne une vapeur sursaturée avec concurrence entre nucléation homogène, nucléation hétérogène et condensation pariétale, les codes peuvent sous-estimer cette dernière ; lorsque la thermophorèse est prédominante, les codes surestiment le dépôt malgré la validation préalable du modèle d'interpolation de Talbot communément utilisé. Cette surestimation peut être expliquée par des effets d'écoulement bi-dimensionnels, une modélisation déficiente de la remise en suspension mécanique ou la non sphéricité des particules. Quant aux phénomènes dans l'enceinte, en général les codes modélisent de manière satisfaisante la décroissance de la concentration des aérosols avec une reproduction adéquate du partage entre diffusiophorèse et sédimentation.

1. Introduction

Le programme Phébus PF, mené par l'IRSN en collaboration avec la Commission des communautés européennes et d'autres partenaires internationaux, est consacré à l'étude d'accidents de fusion de cœur de réacteurs nucléaires refroidis à l'eau légère, Schwarz et al. (1999). Ce programme, comprenant plusieurs expériences, simule à grande échelle les conditions qui se produiraient lors d'un accident de ce type englobant l'échauffement et la dégradation des crayons de combustible, l'acheminement des relâchements depuis les crayons à travers le circuit primaire et le comportement de ceux-ci dans l'enceinte de confinement. On s'intéresse au comportement des relâchements constitués de produits de fission (PF) comprenant l'essentiel du risque radiotoxique, d'actinides (également d'intérêt radiotoxique) ainsi que d'éléments de structures provenant principalement des alliages de Zircaloy et d'acier. L'analyse à l'aide de codes de calcul de l'ensemble des résultats expérimentaux des deux premiers essais, FPT0 et FPT1, est aujourd'hui presque terminée. Cette analyse a pour objectif principal la confrontation de ces résultats avec la modélisation retenue dans les codes et l'éventuelle identification de lacunes significatives.

L'analyse peut être séparée en deux volets : celui du circuit primaire à température élevée (de 1600C descendant à 150C) et celui de l'enceinte de confinement sous conditions plus modérées (130C). Cette séparation est rendue possible par la phénoménologie différente que présentent les deux zones. Pour ce qui concerne les aérosols dans ces deux essais, les phénomènes majeurs qu'il faut modéliser dans le circuit primaire comprennent la nucléation homogène et hétérogène, l'agglomération (par diffusion, principalement) et le dépôt par thermophorèse. Dans l'enceinte, il s'agit d'agglomération et de dépôt par diffusiphorèse et sédimentation. La phénoménologie aérosol fait partie d'un ensemble complexe de phénomènes imbriqués. Par exemple, pour ne citer que deux autres complexités, les codes de calculs doivent également prendre en compte la chimie à haute température entre une vingtaine d'éléments et la radiochimie de l'iode pendant plusieurs jours dans l'enceinte.

2. Grandes lignes des essais

Ces essais comprenaient une grappe de vingt crayons de combustible avec un circuit de 25m de long, environ, qui reliait cette grappe à une cuve de 10m³ simulant l'enceinte de confinement (voir la figure 1). Les grappes ont été chauffées progressivement jusqu'à la liquéfaction d'une partie du combustible UO₂ avec poursuite des essais dans une configuration où une masse importante existait sous forme liquide (température de 3000K environ). Cette phase dite de dégradation a duré 5 heures, environ, dont la dernière moitié, lorsque les températures les plus élevées survenaient, a produit l'essentiel des émissions. Une injection permanente de vapeur d'eau sous les grappes envoyait les émissions dans le circuit se terminant dans l'enceinte. Pour les deux essais la masse totale de la source émise était supérieure à 150g constitués très majoritairement des éléments Re, Ag, Cd, Sn et de l'UO₂. On note qu'aucun de ces relâchements principaux ne provient des produits de fissions qui contribuent d'une manière assez minoritaire à la masse de la source. Des cinétiques de relâchement très variées des différents composants de la source ont été observées.

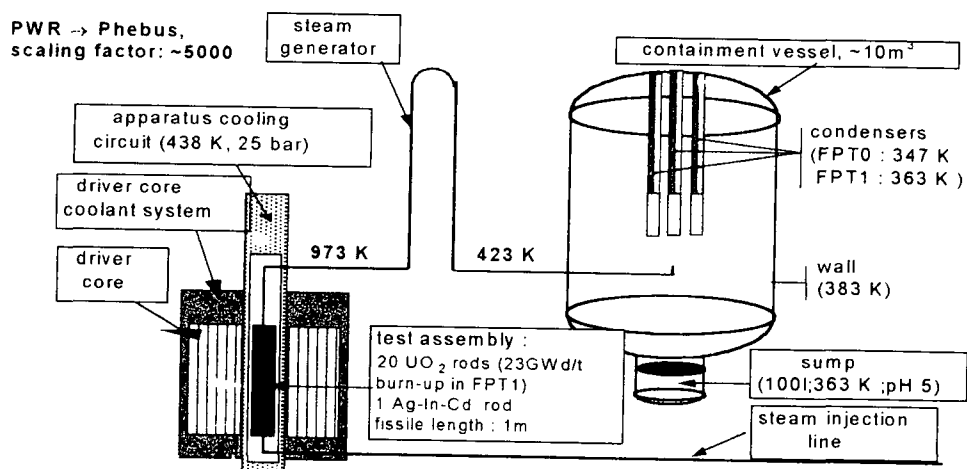
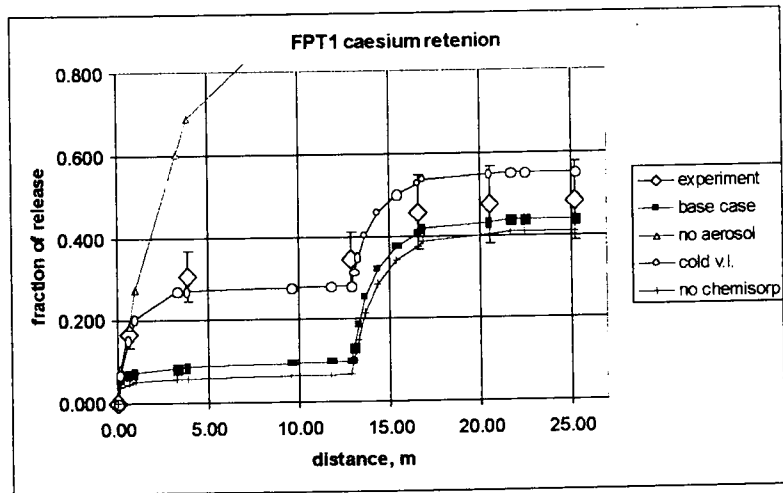


Figure 1: schéma du dispositif Phébus, configuration FPT0 et FPT1

La phase de dégradation constitue également la phase où la source émise de la grappe est transportée à travers le circuit, phase d'intérêt primordial ici puisque l'enjeu est de calculer la partie de la source retenue en amont de l'enceinte. Ainsi, deux zones de dépôts importants se sont produites dans le circuit correspondant aux deux tronçons où survenait une chute de température. Il s'agit du tronçon vertical du circuit au dessus de la grappe où le gaz se refroidissait d'environ 1600C à 700C et puis d'un autre tronçon vertical, à mi-chemin entre la grappe et l'enceinte, où se produisait une baisse de température de 700C à 150C (voir la figure 1). La figure 2 fournit le profil de rétention du césium, un PF qui, d'un point de vue de son transport, s'est comporté de façon modérément volatile étant donné sa rétention bien répartie entre la zone à haute température et celle à basse température. Seuls l'iode et le cadmium se sont comportés de façon très volatile, c'est-à-dire n'existant quasiment qu'en état de vapeur dans la zone à haute température, ce qui explique leurs très faibles rétentions avant la zone à basse température. D'autres éléments comme le molybdène et l'argent ont complété la gamme de comportements possibles en se caractérisant par de forts dépôts dans la zone à haute température et n'existant que sous forme aérosol en arrivant dans la zone à basse température.

Figure 2: profils de rétention expérimental et calculés (différents calculs) du Cs, essai FPT1



La durée de l'arrivée des émissions dans l'enceinte a constitué la période initiale de la phase dite « aérosol » des essais. En effet, la phase aérosol dans l'enceinte a duré en total presque trois jours bien que la concentration des aérosols ait diminué assez rapidement, à savoir d'un facteur 100 en 6 heures, environ, après que les pics soient atteints (voir les figures 3 et 4).

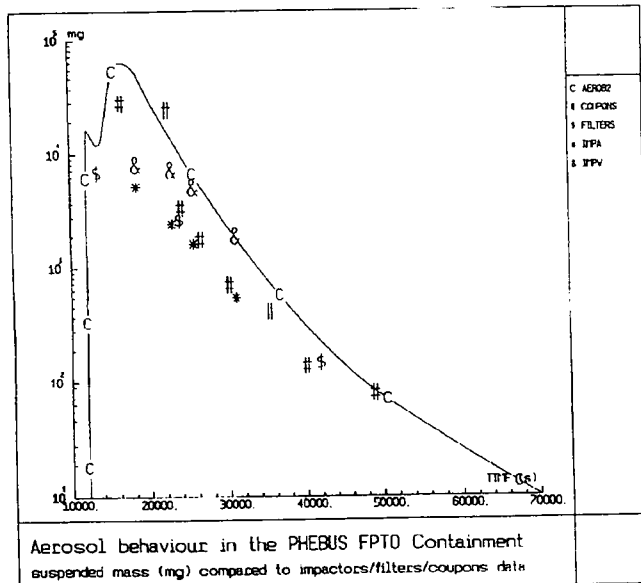


Figure 3: masse aérosol suspendue, essai FPT0 (d'après Layly (1998))

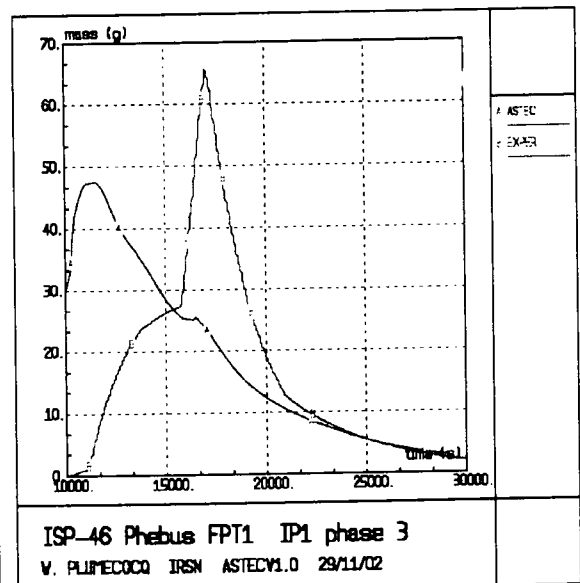


Figure 4: masse aérosol suspendue, essai FPT1 (d'après Plumecocq (2002))

A l'instar de l'analyse du circuit, l'objectif est de calculer, en fonction du temps, la rétention des émissions dans l'enceinte. Le complément de cette nouvelle rétention, la partie de la source qui reste suspendue dans l'atmosphère de l'enceinte, constitue, lors d'un accident grave, le risque principal à l'environnement. En effet, c'est une fraction de cette partie suspendue qui risquerait d'être relâchée à l'extérieur. Ainsi, l'enceinte des essais Phébus respecte le rapport de la surface condensante au volume enfermé afin de induire une phénoménologie représentative du cas réacteur, le dépôt se partageant entre sédimentation (majoritaire) et diffusiphorèse. Cet objectif a conduit à chauffer la paroi de l'enceinte afin de la rendre quasiment neutre (pas de condensation de la vapeur, thermophorèse négligeable) et à réaliser la surface condensante sous forme de cylindres spécifiques. Cependant, les résultats initiaux de l'essai FPT0 indiquaient pendant longtemps un dépôt important sur la paroi, ce qui n'a été élucidé qu'après une analyse approfondie (voir ci-dessous) et la réalisation de l'essai FPT1. En effet, après avoir revu cette mesure de FPT0, il a été confirmé que dans les deux essais le dépôt sur la paroi ne comprenait qu'une très faible fraction du dépôt total.

Deux autres points sont à noter. Premièrement, les mesures ont signalé que l'atmosphère de l'enceinte - comprenant de l'air, de la vapeur d'eau et de l'hydrogène - n'avait qu'une légère tendance à se stratifier. Deuxièmement, la croissance des aérosols s'est déroulée à partir de particules d'un diamètre aérodynamiquement moyen sous-micronique pour atteindre une taille maximum entre 3 et 4 μm .

3. Discussion succincte des analyses réalisées

3.1 Le circuit

Le partage des différents comportements selon la volatilité des espèces peut être assez bien reproduit par un code de calcul où il existe une première zone de nucléation à l'entrée du circuit et une seconde zone, ne concernant que l'iode et le cadmium, plus en aval à l'autre endroit de refroidissement (voir la figure 3). On constate néanmoins qu'il existe deux problèmes de désaccord significatif dans les analyses du circuit : une sous-estimation des dépôts à l'entrée du circuit suivie d'une surestimation du dépôt à l'entrée de la partie à basse température. Ces deux désaccords se compensent et créent, en général, des dépôts globaux en assez bon accord avec les essais : voir la courbe en rose de la figure 2 qui fournit le profil de dépôt calculé du césium.

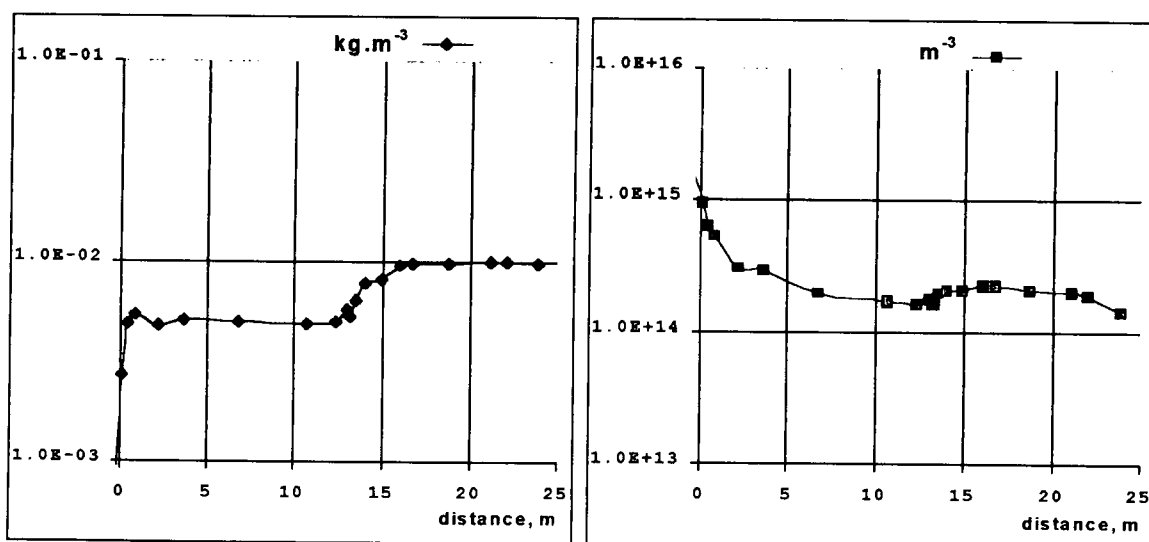


Figure 3: évolution de la concentration aérosol le long du circuit calculée à l'aide du code Sophaéros

Pour ce qui concerne le problème de sous-estimation des dépôts à l'entrée du circuit, il s'agit probablement de la sous-évaluation de la condensation pariétale. Les codes comme Sophaéros, Alpy et al. (2003), appliquent en général l'analogie de Chilton-Colburn (1934) en calculant le transfert de masse avec la corrélation de Dittus-Boelter (1930). Cette corrélation est valable pour les conditions d'un écoulement turbulent établi dans un tuyau à surface lisse et elle conduit à une valeur assez faible du nombre de Sherwood à l'entrée du circuit, $Sh=6$. En fait, à cet endroit il n'est évident ni que l'écoulement était établi ni que la surface était lisse vu que sa géométrie comprenait des changements de section et un dépôt qui est devenu conséquent au cours de l'essai. Ainsi un nombre de Sherwood sensiblement plus élevé se justifierait et corrigerait le désaccord actuel.

Quant au problème de surestimation du dépôt par thermophorèse dans la zone froide du circuit, ce mécanisme est couramment calculé avec le modèle d'interpolation de Talbot et al. (1980). Cette surestimation doit être évaluée après que le dépôt en amont soit reproduit de manière réaliste (c'est-à-dire que la source parvenant à cette zone est conforme à l'expérience) et que les barres d'erreur expérimentale soient prises en compte : ex. voir la courbe en bleu de la figure 2. On constate, ainsi, qu'une surestimation modérée se manifeste. Parmi les explications possibles étudiées, il en existe trois crédibles qui diminueraient le dépôt calculé.

- i. Le modèle de Talbot et al. a tendance à surestimer légèrement les dépôts de nombreuses expériences analytiques – voir Zheng (2002). Ainsi, il serait intéressant d'appliquer le modèle de Yamamoto et Ishihara (1988) qui est en meilleur accord global avec ces expériences. De plus, il est invraisemblable que les aérosols pénétrant dans cette zone de dépôt fussent sphériques car constitués majoritairement d'agglomérés de noyaux issus de nucléation homogène. Dans ces conditions, il n'existe pas de résultats expérimentaux mais le travail théorique de Rosner et al. (1991) justifierait une abaissement jusqu'à 20% de la vitesse de dépôt (comme l'indique Zheng). La combinaison de ces deux effets suffirait à l'obtention d'un accord satisfaisant.
- ii. Il est possible que la remise en suspension mécanique ait joué un rôle. Bien que les conditions des essais Phébus ne s'y prêtent pas (faible turbulence, petits aérosols) et le modèle actuel du code Sophaeros ne déclenche aucune remise en suspension, un modèle alternatif - celui de Biasi et al. (2001), plus satisfaisant du point de vue de son réalisme - doit être appliqué.
- iii. Housiadas et al. (2001) obtiennent un bon accord avec les essais Phébus en simulant les trajectoires de particules qui subissent les effets d'un écoulement turbulent établi et une force de dépôt radiale selon le modèle de Talbot et al (voir la figure 4). Cependant, à la surface de la section d'entrée les aérosols sont introduits uniformément quand, en fait, l'écoulement étant déjà faiblement turbulent en amont, ceux-ci auraient tendance à s'être déjà concentrés dans la couche tampon. Ce changement conduirait à une augmentation (et une surestimation) du dépôt calculé. De plus, l'application de cette même approche à un essais analytique ne donne pas d'aussi bons résultats (voir la figure 4). Ce travail se poursuit.

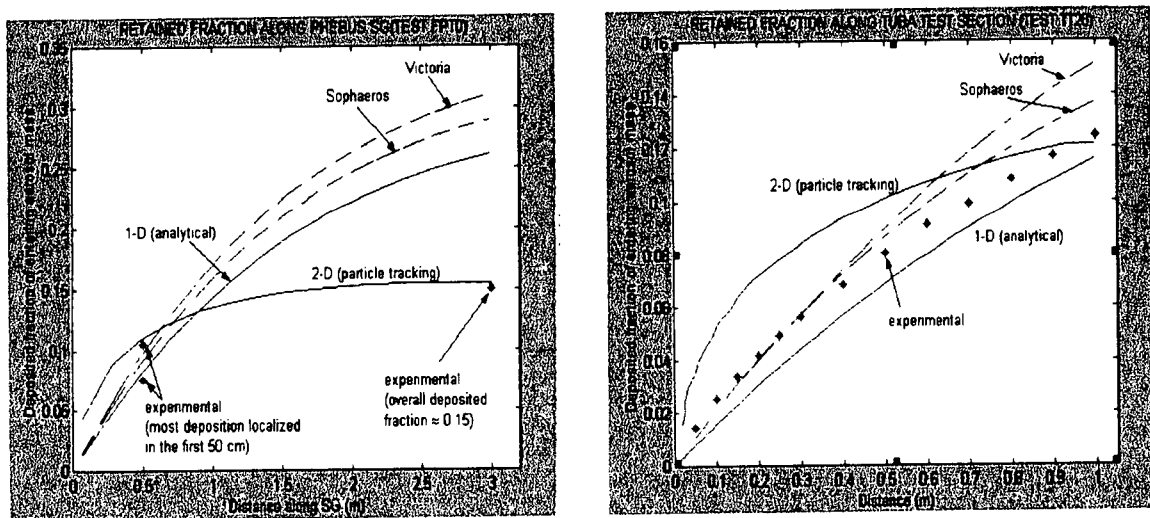


Figure 4 : profils de rétention expérimental et calculé, approches 2D et 1D à l'aide du modèle de Talbot, essais FPT0 et TUBA TT28 (d'après Housiadas et al. (2001))

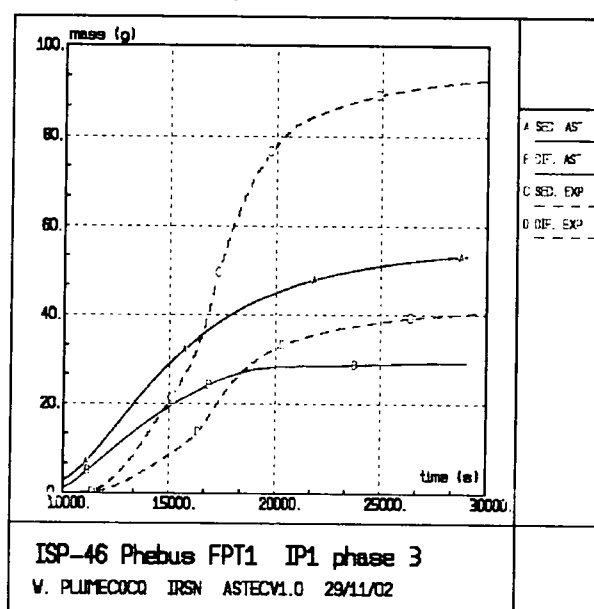
3.2 L'enceinte de confinement

Concernant le comportement des aérosols dans l'enceinte, les conditions thermohydrauliques s'y avèrent plus largement déterminantes que dans le circuit et la compréhension de celle-ci lors des essais était, ainsi, indispensable. En conséquence, les analyses associées ont pu bénéficier d'essais à blanc qui ont servi à étalonner les outils de calculs. Ces analyses, qu'il s'agisse de codes de point ou de champs, reproduisent de manière satisfaisante les conditions principales, ex. Shepherd et al. (1995), Layly et al. (1996), Spitz et al. (1997), Haste et al. (1998), bien que d'autres paramètres d'ordre secondaire, telle que l'évaporation de l'eau de puisard, ne soient pas bien reproduits.

Concernant l'essai FPT0, même si l'évolution de la masse d'aérosols suspendus a été reproduite de manière satisfaisante (voir la figure 3), la répartition entre plancher et paroi sous-estimait le dépôt pariétale par rapport aux résultats expérimentaux initiaux (revus ultérieurement). Donc, une étude fouillée a été réalisée par Layly (1998) qui, en particulier, a étendu un modèle du chargement électrique des particules suscité par leur radioactivité (principalement la perte d'électrons) afin d'évaluer l'accroissement du dépôt à cause du champ électrique qu'elles auraient induit près de la paroi. La conclusion était que cet effet aurait été trop faible pour expliquer les dépôts de l'essai FPT0 et que le dépôt pariétale inattendu avait plus de chance d'avoir une origine hydrodynamique. Cette conclusion se basait sur le constat que ce sont les plus grosses particules qui se chargent le plus et elles sont, ainsi, les plus susceptibles de subir un dépôt accru à cause de l'électrophorèse. Or, ces particules ne représentent qu'une faible fraction de la masse totale. Aujourd'hui, on accepte que les calculs (ex. Layly (1998), Haste et al. (1998), Plumecocq (2002)) s'accordent assez bien avec les résultats finaux des deux essais (figures 3, 4 et 7): le partage du dépôt est bien capté avec environ deux tiers du dépôt dû à la sédimentation et un tiers à la diffusiophorèse ; 2% se sont déposés sur la paroi où les codes ne prévoient que <1% typiquement. En particulier, il semble assez discutable d'évoquer une hygroscopicité non-négligeable des particules afin de faire chuter ces dernières d'une manière plus en accord avec les expériences (certains analystes le font) lorsque l'humidité relative ne dépasse jamais 85%.

Dernièrement, il est à noter que les calculs couplés (dégradation, relâchement, transport dans le circuit, comportement dans l'enceinte) sont pénalisés par le décalage de l'arrivée de la source dans l'enceinte et du calcul peu satisfaisant de l'ampleur de celle-ci - voir la figure 4. Ces calculs réussissent néanmoins à reproduire le partage pro rata des dépôts, figure 7.

Figure 7: évolution des dépôts principaux lors de l'essai FPT1 (d'après Plumecocq (2002))



4. Conclusions

Même si les analyses doivent se poursuivre pour prendre en compte les résultats d'autres essais réalisés (notamment ceux de FPT2) ou à réaliser, un bilan peut être établi à ce stade. Pour les phénomènes impliquant les aérosols et survenant dans le circuit primaire, il existe trois domaines à approfondir : le partage d'une vapeur lorsqu'il y a simultanément nucléation et condensation pariétale de celle-ci ; deuxièmement, concernant la thermophorèse, les effets d'écoulement bi-dimensionnel ou non établi et l'influence éventuelle de la non-sphéricité des particules ; et dernièrement l'étude de modèles alternatifs de la remise en suspension mécanique. Quant à la phénoménologie aérosol dans l'enceinte, et en se limitant à ces analyses uniquement, on peut considérer que l'accord entre modèles et résultats expérimentaux est assez satisfaisant. En effet, les codes modélisent convenablement la décroissance de la concentration des aérosols dans l'atmosphère due aux dépôts qui se partagent entre surfaces condensantes et surfaces horizontales. Cependant, il serait imprudent de généraliser cette dernière conclusion car certains phénomènes d'importance certaine dans le cas d'un accident, tel que la condensation de vapeur d'eau sur les aérosols (avec contribution hygroscopique éventuelle), n'ont eu que peu d'influence lors de ces expériences.

Remerciements

L'auteur remercie ses collègues B. Clément et P. Giordano pour leurs commentaires sur cette synthèse, N. Alpy, I. Drosik et P.K. Mason (d'AEA Technology) pour leur contributions à l'analyse du circuit Phébus, et P. Spitz pour son aide avec la synthèse des analyses de l'enceinte Phébus.

Références

- Alpy, N., Kissane, M.P., Drosik, I., Fiche, C., Giordano, P. (2003), "Fission-product transport modelling in the ASTEC integral code: Sophaeros module", European Aerosol Conference, 31 août - 4 sept. 2003, Madrid (actes à paraître).
- 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 Science* 32, 1175-1200.
- Chilton, T.H., Colburn, A.P., (1934), "Mass transfer (absorption) coefficients", *Industrial and Engineering Chemistry* 26, 1183-1187.
- Dittus, P.W., Boelter, L.M.K. (1930), "Heat transfer in automobile radiators of the tubular type", *Univ. Calif. Pub. Eng.* 2 (13) (1930), 443-461 (réédité dans *Int. J. Comm. Heat and Mass Transfer* 12 (1985), 3-22).
- Girshick, S.L., Chiu, C.P., McMurray, P.H. (1990), "Time dependent aerosol models and homogeneous nucleation rates", *Aerosol Sci. Tech.* 13, 465-477.
- Haste, T.J., Jones, A., Kissane, M., Spitz, P. (1998), "Comparison of predicted circuit and containment aerosol behaviour with results from Phebus FP", OECD Specialist Meeting on Nuclear Aerosols in Reactor Safety, 15-18 juin 1998, Cologne, Allemagne, OECD/NEA/CSNI/R(98)4.
- Housiadas, C., Müller, K., Carlsson, J., Drossinos, Y. (2001), "Two-dimensional effects in thermophoretic particle deposition: the Phebus-FP steam generator", actes de la European Aerosol Conference, 3-7 sept. 2001, Leipzig, Allemagne.
- Layly, V.D. (1998), "Aerosol behaviour in a closed vessel: analysis of the Phébus FPT0 test aerosol phase in the containment", IRSN Note Technique SEMAR 98/99.
- Layly, V.D., Spitz, P., Tirini, S., Mailliat, A. (1996), "Analysis of the Phebus FPT-0 containment thermal hydraulics with the JERICHO and TRIO-VF codes", *Nuclear Engineering and Design* 166, 413-426.
- Plumecocq, W., (2002), "Application of the ASTEC V1.0 code to the PHEBUS FPT1 test", IRSN Note Technique SEMAR 2002/83 (à paraître également sous forme abrégée dans un rapport OCDE/AEN sur l'ISP-46)
- Rosner, D.E., Mackowski, D.W., Garcia-Ybarra, P. (1991), "Size- and structure-insensitivity of the thermophoretic transport of aggregated soot particles in gases", *Indust. Sci. Technol.*, 80, 87-101.
- Schwarz, M., Hache, G., von der Hardt, P. (1999), "PHEBUS FP: a severe accident research programme for current and advanced light water reactors", *Nucl. Eng. Design* 187, 47.
- Shepherd, I., Hontañón, E., Gaillot, S., Herranz, L., Akagane, K. (1995), "Thermal hydraulics testing of the Phebus-FP containment", ICHMT international seminar: heat and mass transfer in severe reactor accidents", Cesme, Turkey, 21-26 mai 1995.
- Spitz, P., Lemoine, F., Tirini, S., Schwinges, N. (1997), "Assessment of the Raloc-mod4 thermal hydraulics code against evaporation tests in the Phebus containment", CNS/CNA Conference, Canada, Toronto, 8-11 juin 1997.
- Talbot, L., Cheng, R.K., Schefer, R.W., Willis, D.R. (1980), "Thermophoresis of particles in a heated boundary layer", *J. Fluid Mech.*, 101, 737-758.
- Yamamoto, K., Ishihara, Y. (1988), "Thermophoresis of a spherical particle in a rarefied gas of a transition regime", *Phys. Fluids*, 31, 3618-3624.
- Zheng, F. (2002), "Thermophoresis of spherical and non-spherical particles: a review of theories and experiments", *Advances in Colloid and Interface Science* 97, 255-278.

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.

LISTE PAR ACTIVITÉS

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

RION / ARTI (Air et gaz)

Compteurs de particules pour salles blanches et gaz sous pression

- Débit : 2,8 l/mn
- 28 l/mn
- Sensibilité : 0,1 ou 0,2 µm
- 0,3 µm et plus

Systèmes centralisés de surveillance de salles blanches

- Multivoies
- Multisondes
- Sondes d'environnement :
température, humidité, pression, etc.
- Logiciels de supervision

Accessoires

- Diffuseur pour gaz haute pression
- Générateurs d'aérosols
- Billes de latex calibrées
- Etalons de débit portatif
- Diluteur

RION / ARTI (Liquides)

Compteurs de particules dans les liquides

- Applications : Microélectronique
- Pharmacie
- Eau potable
- Hydraulique
- Autres
- Sensibilité : 0,05 µm
- 0,1 à 0,5 µm
- 1 µm et plus
- Produits : Eau potable
- Eau DI
- Solvants, acides (sauf HF), bases
- HF
- Photoresist
- Huiles
- Autres

DEKATI OY

- Impacteurs en cascade basse pression (0,010 à 10 µm)
- Version manuelle
- Version en temps réel
- Impacteurs PM-10, PM-2,5, PM1,0

MONITOR EUROPE

Analyseurs de Gaz SO₂, NO-NO₂, CO, O₂

- Environnement
- Emission

Analyseurs d'hydrocarbures

- Dans l'eau
- Dans les sols

PALAS

- Générateurs d'aérosols monodispersés
- Générateurs de DOP, DEHS, Latex...
- Générateurs de poussières
- Granulomètres laser
- Analyseur d'aérosols
- Bancs de test automatisé pour filtres à air et gaz

RUPPRECHT & PATASHNICK

Environnement / Air intérieur

- Analyseurs gravimétriques de poussières en suspension TEOM 1400 A
- Préleveurs et séquenceurs de filtres PARTISOL PLUS
- Analyseurs de carbone dans les poussières en suspension RP 5400
- Cartouches de spéciations des poussières ChemComb (métaux lourds, carbone, nitrates, etc.)
- Analyseurs de sulfates et nitrates particuliers R & P 8400

Emission

- Analyseurs en continu de poussières en gaine et cheminée
- Analyseurs en continu du carbone imbrûlé dans les cendres volantes

Hygiène

- Analyseurs et détecteurs de poussières portatifs
- Analyseurs combinés gaz / poussières portatifs
- Préleveurs de poussières et fibres

ECOMESURE

B.P. 13 - F-91640 Janvry

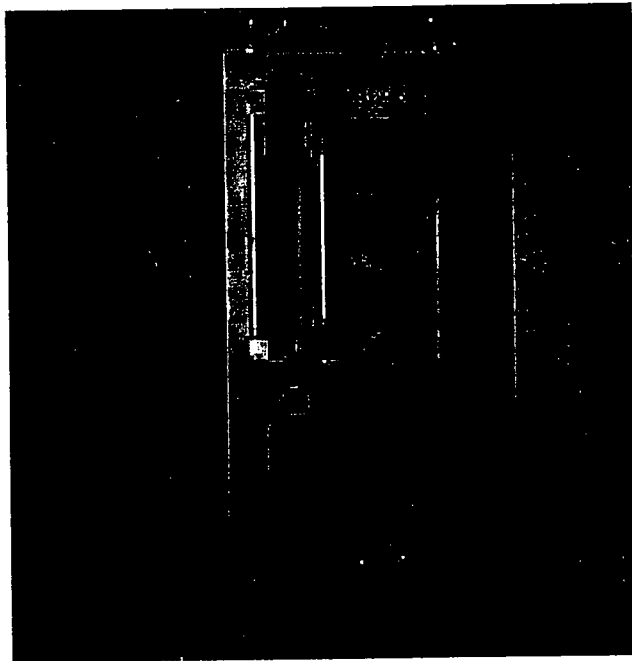
Tél : (+33) 01 64 90 55 55 - Fax : (+33) 01 64 90 55 66

E-mail : contact@ecomasure.com - www.ecomasure.com

ECOMESURE

PALAS

**Générateurs d'Aérosols,
de Poussières et de Poudres**



- Générateurs d'Aérosols polydispersés
- Générateurs d'Aérosols monodispersés
- Générateurs d'Aérosols à orifice vibrant
- Générateurs de poussières et poudres
- Générateur de carbone pur
- Diluteurs

LA QUALITE EST MESURABLE

• PRODUIT INNOVANT

• NOUVEAU CONCEPT

• TECHNOLOGIE D'AVANT-GARDE

ECOMESURE

B.P. 13 - 3, rue du Grand Cèdre - 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

ECOMESURE

PALAS

SYSTEME WELAS

Le plus petit granulomètre au monde

La meilleure résolution et classification en taille, même à très haute concentration



LA QUALITE EST MESURABLE

ECOMESURE

B.P. 13 - 3, rue du Grand Cèdre - 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

ANALYSEUR MASSIQUE DE POUSSIÈRES EN TEMPS REEL > R & P TEOM 1400

Mesure en temps réel de la masse de poussières déposée sur le filtre de collection

Disponible en PM-10 et PM-2,5

Gamme : de 0 à plusieurs centaines de mg/m³

Résolution : 0,1 µg/m³

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.

ANALYSEUR DE POUSSIÈRES > R & P DUSTSCAN "SENTINELLE"

Mesure de la lumière diffusée par les particules avec protection des optiques par air filtré

Gamme : 0-500 µg/m³ à 0-100 mg/m³

Résolution : 1 µg/m³

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 CO₂ et mesuré sélectivement par un analyseur IR.

ECOMESURE

B.P. 13 - 3, rue du Grand Cèdre - 91640 JANVRY
Tél. : (+33) 01 64 90 55 55 - Fax : (+33) 01 64 90 55 66
E-mail : contact@ecomasure.com - www.ecomasure.com

ANALYSEUR DES HAP ADSORBES SUR LES POUSSIERES > 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 GRANULOMETRIQUE 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.



ANALYSEUR DE SULFATES ET NITRATES PARTICULAIRES > R & P 8400 N/S

Mesure spécifique de la concentration en nitrates particulaires (R&P 8400 N) ou en sulfates particulaires (R&P 8400 S)

Résolution en temps : 10 mn

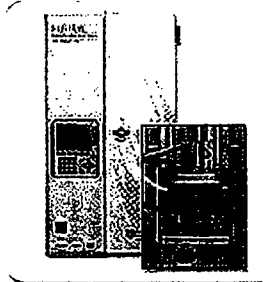
Gamme : 0 à 1 mg/m³

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.



ECOMESURE

B.P. 13 - 3, rue du Grand Cèdre - 91640 JANVRY
Tél. : (+33) 01 64 90 55 55 - Fax : (+33) 01 64 90 55 66
E-mail : contact@ecomasure.com - www.ecomasure.com



COMPTEUR DE NOYAU DE CONDENSATION
6 MODELES DIFFERENTS 3007, 3010 3022A, 3025A, 3760A, 3762



COMPTEUR CNC PORTABLE

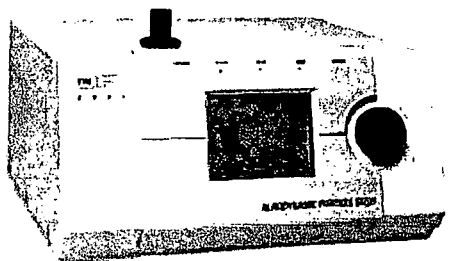
**ENREGISTREMENT DES DONNEES A L'AIDE D'UN
DATA LOGGER INTEGRE; LOGICIEL DE
TELECHARGEMENT DES DONNEES**

DEBIT TOTAL DE 0,7 L/min

AUTONOMIE DE 8 HEURES

**CONCENTRATIONEN PARTICULE JUSQU'A 5.10^5
PART/CM³**

GRANULOMETRE APS 3321



**MESURE EN TEMPS REEL DU DIAMETRE DES
PARTICULES COMPRIS ENTRE 0,5 ET 20 μ m**

DEBIT TOTAL DE 5 L/min

52 CANAUX GRANULOMETRIQUES

**CONCENTRATIONEN PARTICULE JUSQU'A 1000
PART/CM³**

LOGICIEL D'ACQUISITION DES DONNEES



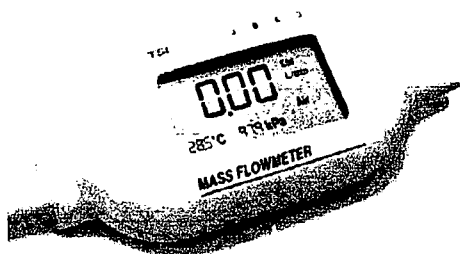
**Intertek Testing Services
I.C.S.**

**B.91, rue du Général de Gaulle
27109 LE VAUDREUIL - France
Tél : 02 32 09 36 26 - Fax : 02 32 09 36 28
Email : ics@itslabtest-fra.com**

www.ics-itstesting.com

Contact : Mr NOIRTIN Arnaud

DEBITMETRE MASSIQUE ELECTRONIQUE



MESURE DU DEBIT MASSIQUE EN TEMPS REEL

MESURE DE LA TEMPERATURE ET DE LA
PRESSION ABSOLUE POUR CONVERTIR LE DEBIT
MASSIQUE EN DEBIT VOLUMIQUE

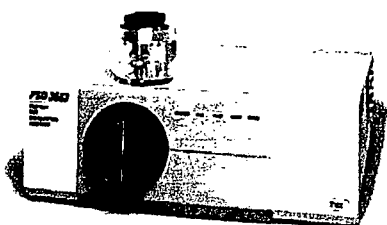
FAIBLE PERTE DE CHARGE

SORTIE ANALOGIQUE OU RS-232

SPECIFICATIONS :

- Gamme de mesures : 0 à 300 l/min ou 0 à 200 l/min ou 0 à 20 l/min.
- Incertitude : 2 % sur la lecture ou 0,05 l/min.
- Temps de réponse : 4 millisecondes.
- Poids : 180 grammes.

AEROSIZER PSD 3603



MESURE DE LA GRANULOMETRIE DES AEROSOLS EN
TEMPS REEL

MESURE DES POUDRES (A L'AIDE D'UN DISPERSEUR) ET
DES AEROSOLS

LOGICIEL D'EXPLOITATION SOUS WINDOWS

SORTIE ANALOGIQUE OU RS-232

SPECIFICATIONS :

- Principe de mesure : Mesure du Temps de Vol
- Gamme de taille : 0,2 à 700 µm
- Incertitude : 10% sur chaque taille
- Nombre de canaux : 128 par décade
- Poids : 18,2 Kilogrammes

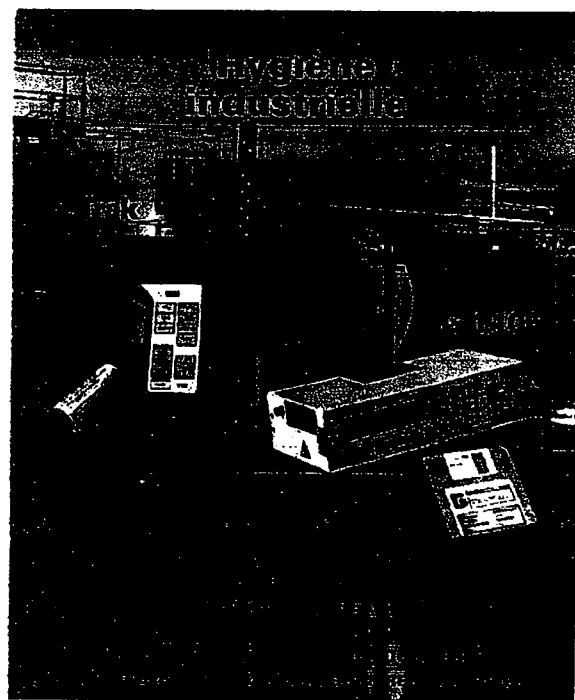
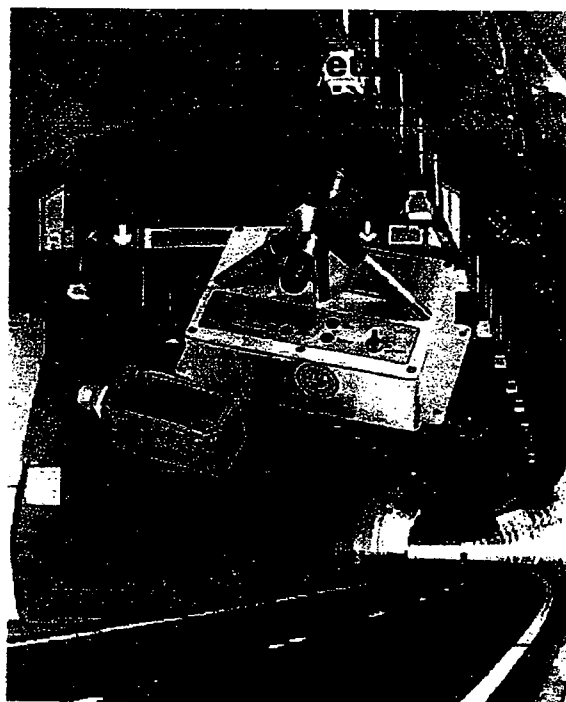


Intertek Testing Services
I.C.S.

B.91,rue du Général de Gaulle
27109 LE VAUDREUIL - France
Tél : 02 32 09 36 26 – Fax : 02 32 09 36 28
Email : ics@itslabtest-fra.com
www.ics-itslabtest.com

Contact : Mr NOIRTIN Arnaud

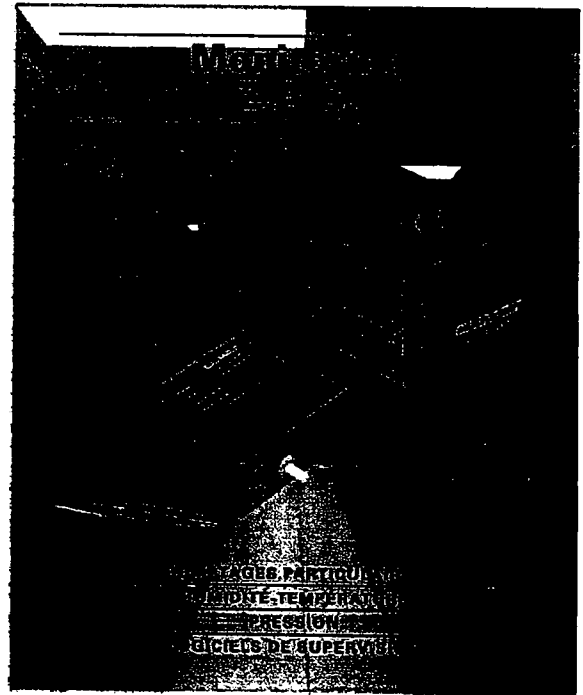
Compteur de poussières



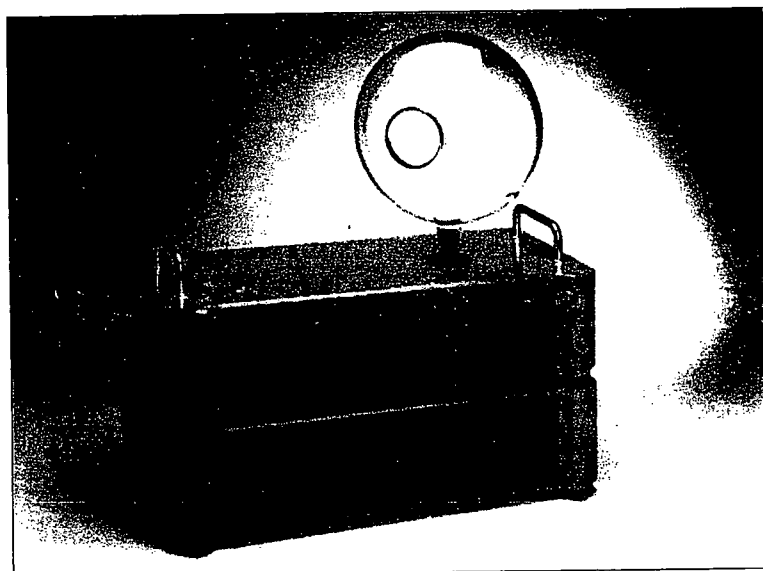
ITS Intertek Testing Services
I.C.S.

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



Contact : Mr BERTIN Pascal



Granulomètre Aérosol Laser LAP 320 avec Sphère échantillon

Principaux Avantages

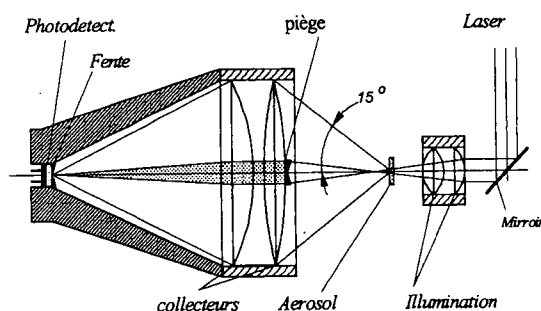
- Granulométrie rapide sans contact des distributions
- Large gamme de concentration
- Influence minimale de la nature du produit par utilisation de la diffraction laser directe
- Haute sensibilité par utilisation de laser He-Ne
- Volume de mesure optimisé
- Pas d'hypothèse a priori sur la distribution granulométrique
- Facile à utiliser avec son logiciel convivial sous Windows
- Conception robuste, petit et léger
- Portable (batteries)

Principe de Mesure

Méthode de mesure unique des dimensions des particules (caractéristiques particulières) indépendante de toute hypothèse sur la courbe de distribution granulométrique. Cette méthode combine haute sensibilité, justesse et rapidité de la mesure. Il est en effet intéressant d'utiliser la corrélation entre caractéristiques physiques et optiques dont la mesure est fiable et pratique. Les instruments de la série LAP sont basés sur une mesure de particules une à une. Ils donnent une granulométrie précise et une mesure de concentration dans les aérosols très concentrés avec une excellente résolution granulométrique.

Applications

- Mesure de la granulométrie (sprays, poussières, poudres)
- Mesure de référence pour la calibration et le test des Aérosols
- Caractérisation et tests des filtres
- Estimation de l'efficacité séparatrice
- Caractérisation des aérosols pharmaceutiques
- R&D en Aérosols

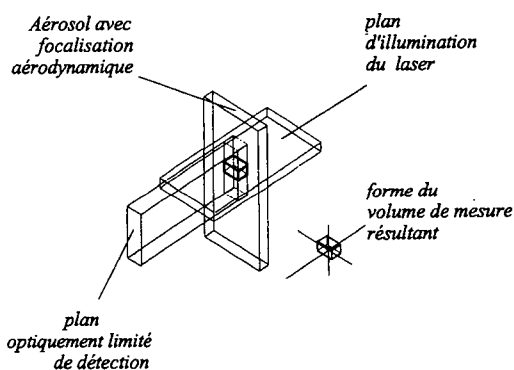


Montage de diffraction aux petits angles dans le LAP

Principe

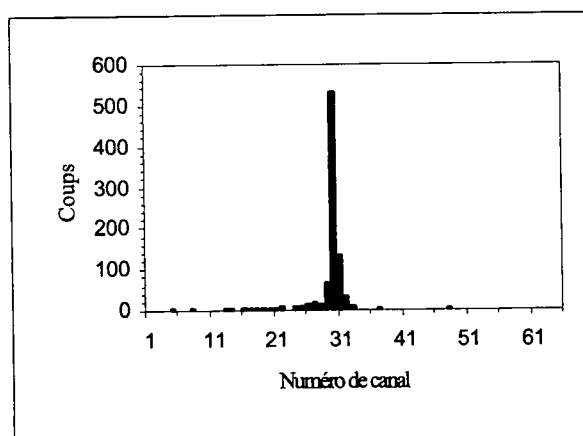
Montage Optique

Le nouveau système optique des instruments de la série LAP utilise la diffraction directe aux petits angles (à cause de ses avantages évidents) et est conçu pour le comptage un à un des particules dans les aérosols de haute concentration [1]. La technique consiste à isoler optiquement les hautes concentrations. Pour cette raison, à la fois l'aérosol et le rayon laser sont focalisés dans un plan et s'interceptent dans un plan qui correspond au plan propre au système de détection limité par une fente d'entrée.



Comment délimiter un petit volume de mesure...

Les avantages particuliers à utiliser un tel dispositif pour délimiter la zone mesurée permettent une isolation optique parfaite de la zone et une intensité lumineuse maximale sur la région choisie d'un aérosol concentré. La figure ci-dessus montre le schéma du principe définissant un volume par la combinaison particulière des plans de détection, de lumière et d'aérosol [2]. Le Laser He-Ne sert de source. Une classification sur 64 canaux de l'intensité lumineuse correspondant à une classe de taille (analyse pulsée multi-canaux) est la base pour le calcul de la granulométrie au moyen d'une courbe de calibration.



Distribution en fréquence de coups comme résultat primaire sur un aérosol PSL 519nm classifié électrostatiquement sert de calibration (où le canal 31 peut être relié à la classe granulométrique 0,519µm)

La gamme de mesure couvre tous les diamètres de 0,3 à 20 microns. On a pu aussi prouver que seules des concentrations supérieures à 10⁵ particule/cc induisent une perte d'efficacité par coïncidence.

Le design compact et son utilisation aisée permettent un usage souple du modèle LAP pour la granulométrie et la concentration particulière des aérosols.

Références

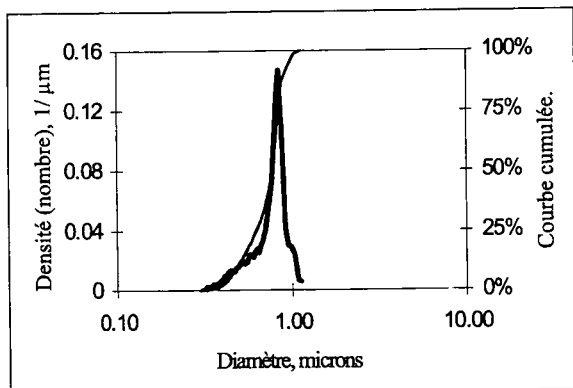
- [1] Rudolph, A und Peters, C. Mesure granulométrique des aérosols. *Chemische Technik* 37 (1991) 5, 182-187.
- [2] Brevet DE 4341573
- [3] Peters, C. und Rudolph, A. Test des filtres avec un nouveau granulomètre laser pour Aérosol. *Filtern & Separieren* 8 (1994) 3.

Applications

Granulométrie et R&D sur Aérosols

Une haute résolution, une gamme étendue de concentration aussi bien que de diamètres sont un avantage certain dans des applications comme:

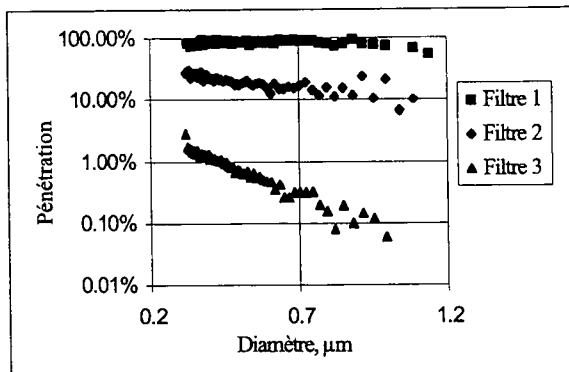
- mesures de référence pour aérosol de test
- expériences en inhalation et toxicologie
- mesure d'aérosol en fonction du temps
- mesure d'efficacité
- études environnementales



Mesures d'un aérosol Mono disperse Condensé

Le LAP est excellent pour la granulométrie des aérosols:

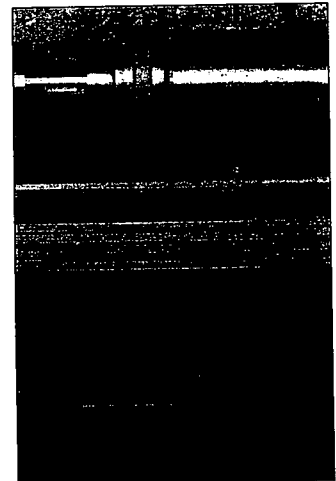
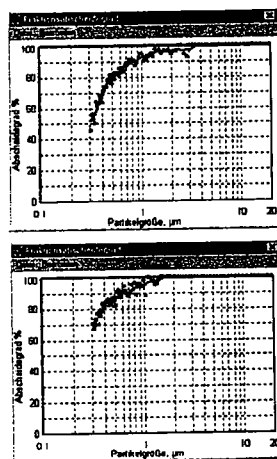
- Mesure de gouttelettes ou sprays
- Analyse de poussières ou poudres



Comportement en Pénétration de différents matériaux de filtration mesuré avec le LAP et des gouttelettes DEHS comme Aérosol test

Test de Filtres

Le LAP est utilisé pour la mesure d'efficacité de 0,3 et 20 microns. Sa capacité à mesurer les hautes concentrations (en nombre) est essentielle pour cette application. Grâce à un nouveau switch un aérosol peut être échantillonné soit à l'amont soit à l'aval du filtre. Une troisième voie est utilisée pour purger l'instrument. Différents temps de cycle peuvent être définis par l'utilisateur.



Détermination de l'efficacité sous charge de poussières avec le LAP 320 et un échantillonneur à switch placé sous un Testeur AFC

L'échantillonnage est contrôlé par l'instrument lui-même. Les courbes d'efficacité sont déterminées en continu par le logiciel de pilotage de l'instrument et affichées ce qui permet la mesure de l'efficacité sur de longues périodes ou pour des tests de charge en :

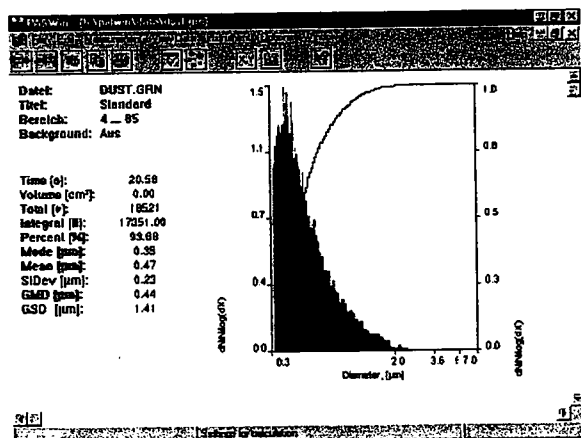
- Assurance Qualité
- Développement de filtres
- Test et classification de filtres

Spécifications

Logiciel PASWin

Sur la base de sa propre pratique, Topas a développé PASWin, un logiciel d'acquisition et de granulométrie ergonomique. Utilisation de base pour le néophyte et possibilité pour l'expert de créer et d'éditer des calibrations. Les caractéristiques principales sont:

- Fonctionne sous Windows 3.x/9x/NT
- Calcul et affichage en temps réel de la granulométrie (nombre, surface, volume) sous forme de tableaux et graphes
- L'utilisateur peut fixer le nombre de classes, le type d'axe (logarithmique ou linéaire) et les bornes d'intégration
- Max. 128 canaux
- Agrégation de classes
- Calcul et affichage en temps réel
- Fonctions statistiques
- Comparaison de résultats
- Mesure de blanc et soustraction
- Compatibilité avec les autres logiciels sous Windows (DDE échange dynamique des données, presse-papiers)
- Test de l'instrument

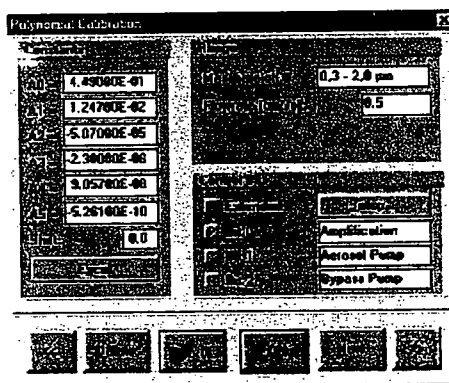


Fenêtre principale du logiciel PASWin

Spécifications

Gamme	0,3 à 20µm (0,3..2µm, 0,5..20µm)
Concentration	<10 5 Particules/cm ³
Canaux	Max. 128 (64) ou choix utilisateur
Flux	3 lpm
Source	laser 2mW He-Ne 632.8nm
Interface	RS 232
Adaptateur secteur	110..230VAC 12VDC 4.2A
Dimensions	220x380x200 mm
Poids	9.4 kg

- Micro processeur et PC compatible IBM pour analyse de signal en temps réel
- Calibré sur aérosols PSL (standards) et gouttelettes DEHS (di-ethylhexyl-Sebacate)
- Type de calibration: soit polynomiale soit définie par l'utilisateur avec plus de trois canaux fixés par lui
- Version 1 lpm disponible

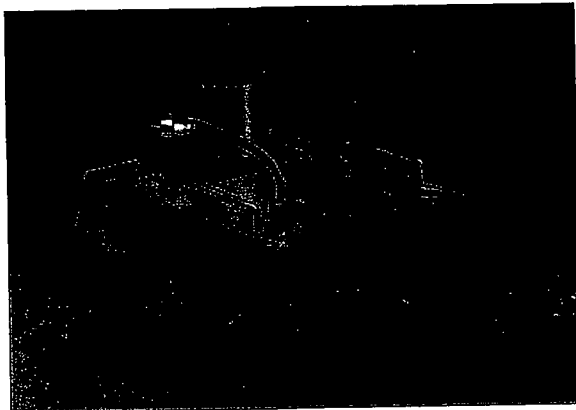


Edition des données de calibration polynomiale sous PASWin

<http://www.granuloshop.com>

Spécifications non contractuelles modifiables sans préavis.
© Copyright 2001 Topas GmbH et ACIL Sarl pour la version française.





SAG 410 Solid Aerosol Generator

The SAG 410 is a general-purpose dry powder disperser that may be used for a variety of applications in aerosol and powder science, industrial processes and quality assurance tasks.

Principle

The technique for the dispersion of dry dust and powders comprises two steps, viz. the continuous supply of material to the disperser and the dispersal of the material as an aerosol.

A proven method for metering powder to the disperser is to use a moving toothed belt whereby the well defined spaces between the teeth ensure a constant and reproducible supply of powder, even at low feed rates. The resulting particle concentration of the output aerosol can easily be adjusted over a wide range by changing the speed of the feed belt.

The powder is removed from the belt by an ejector nozzle (similar to the type specified in DIN ISO 5011) and the shear forces created in the ejector nozzle disperse and deagglomerate the powder to form an aerosol.

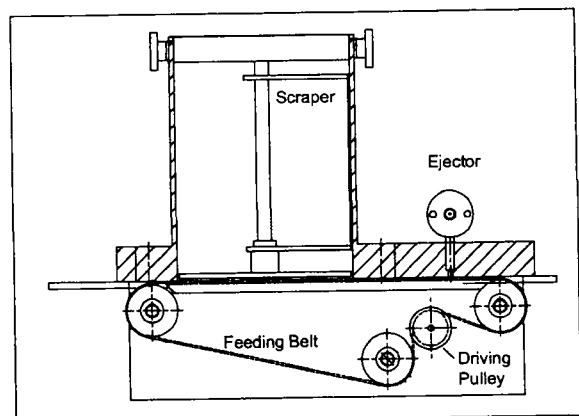
A specially designed scraper ensures an even filling of the belt spaces and minimises the influence of the powder level in the reservoir.

Applications

- Inhalation and toxicology studies
- Determination filter efficiencies
- Aerosol research
- Optimization of combustion processes
- Flow visualisation, LDV and PIV applications
- Mixing and coating processes
- Performance, evaluation and calibration of dust samplers and monitors

Special Features

- Constant and reproducible feed rate over a wide range – suitable for wide range of applications.
- Refillable during operation – ideal for long term studies.
- High concentration even at small flow rates – speeds up testing in low flow applications.
- Easy to strip down and clean – permits quick change between aerosol materials
- Optional remote control unit for manual or computer control – Allows the generator to be isolated from the operator.

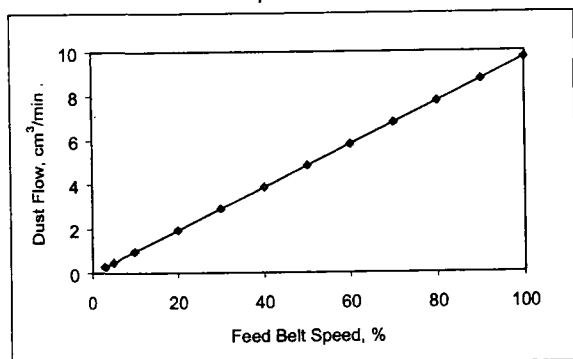


Schematic of the SAG 410 Solid Aerosol Generator

Calibration and Specifications

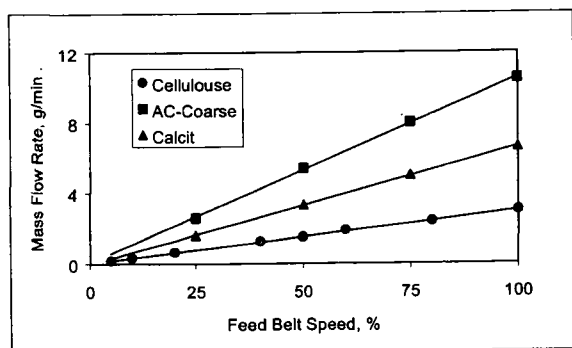
Calibration

The user can adjust the required volumetric flow rate of dust by controlling the speed of the feed belt. The following diagram shows the volumetric flow vs. the feed belt speed.



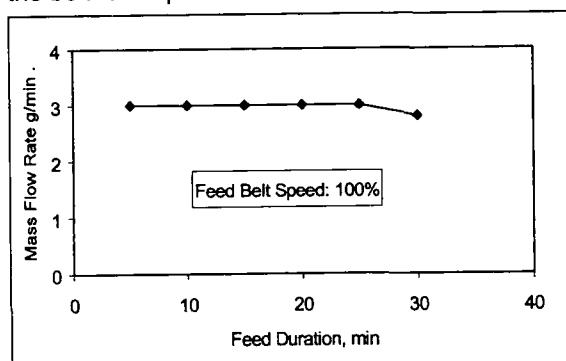
Volumetric Dust Flow Rate vs. Feed Belt Speed

The mass flow rate of the solid material depends on its bulk density. It can be easily determined by measuring the mass of material that is fed over a specific time interval for various belt speeds. The following diagram shows an example for such a calibration.



Mass Flow Rate vs. Feed Belt Speed - Determined for Different Powders

The design of the SAG 410 ensures a highly accurate and constant metering of the powder that is nearly independent of the powder level in the reservoir. The powder reservoir can be refilled during operation without any effect on the aerosol concentration. By refilling the reservoir regularly, a continuous operation with a constant output can be achieved over long periods. The required volumetric flow rate can be set by adjustment of the belt feed speed.



Constant Mass Flow With Changing Powder Level in Reservoir (Last Value Corresponds to Minimum Powder Level)

Specifications

Particle type	Non-sticky dry powders
Powder reservoir	0.32m ³ (approx. 220g ^{*)})
Nonstop operation	1 ... 50h ^{**)}
Feeding range ^{*)}	3 ... 640g/h (SAG 410) 50 ... 4000g/h (SAG 410/H)
Aerosol flow rate	0.5 ... 2.5m ³ /h (SAG 410) 5 ... 20 m ³ /h (SAG 410/H)
Particle concentrations ^{**)}	1.2 ... 1200g/m ³ (SAG 410) 2.5 ... 800g/m ³ (SAG 410/H)
Power supply	90 ... 260VAC
Size	320 x 400 x 200mm
Weight	9.5kg (20lb)

^{*)} depends on bulk density ^{**)} depends on belt speed

Look at our World Wide Web site at <http://www.topas-gmbh.de> now.