

ASSOCIATION FRANÇAISE D'ÉTUDES ET DE RECHERCHES  
SUR LES AÉROSOLS

*20<sup>ème</sup> CONGRES FRANÇAIS SUR LES AEROSOLS*

**CFA 2004**

**7 - 8 décembre 2004**

**Paris, Maison de la mutualité**

**ASFERA**

**UFR Sciences Université Paris XII  
Avenue du général de Gaulle - 94010 Créteil Cédex  
Tél : 01.45.17.13.55 - Fax : 01.45.17.13.61  
[www.asfera.org/info@asfera.org](http://www.asfera.org/info@asfera.org)**

# 20<sup>EME</sup> CONGRES FRANÇAIS SUR LES AEROSOLS C F A 2004

7 et 8 Décembre 2004

## SOMMAIRE

	<i>Pages</i>
Éditorial par le Dr. D. BOULAUD. Président de l'ASFERA.	5
<b>PHYSIQUE DES AEROSOLS</b>	
<b>Diffusion d'une impulsion ultra-brève par un milieu fortement diffusif</b>	<b>9</b>
C. Calba, T. Girasole, C. Rozé et L. Méès UMR 6614/CORIA, CNRS-INSA et Université de Rouen.	
<b>Contribution de la polarisation à l'étude de milieux diffusants peu denses ou optiquement épais</b>	<b>15</b>
N. Rivière*(1), L. Hespel(1) et G. Gréhan(2) (1) ONERA Centre de Toulouse, Département d'Optique Théorique et Appliquée, Toulouse. (2) CNRS UMR 6614, CORIA, Site universitaire du Madrillet, Saint Etienne du Rouvray.	
<b>Cinématique de nanoparticules chargées en champ AC et DC dans des électroprécipitateurs plan-plan avec et sans décharge</b>	<b>21</b>
N. Jidenko and J.P. Borra Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas (CNRS -Univ. Paris XI). Equipe Décharges Electriques et Environnement, Supelec, Gif sur Yvette.	
<b>Etude de la mise en suspension de particules par chute de poudre</b>	<b>27</b>
M. Jacquelin * (1,2), E. Gehin (2) et F. Gensdarmes (1) (1) Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire/Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, Gif-sur-Yvette. (2) Centre d'Etudes et de Recherches en Thermique, Environnement et Système, Université Paris XII, Créteil.	
<b>Etude expérimentale des caractéristiques physiques des aérosols de combustion</b>	<b>33</b>
F.X. Ouf*, <sup>2</sup> A. Coppalle <sup>1</sup> , J. Vendel <sup>2</sup> , M. E. Weill <sup>1</sup> <sup>1</sup> UMR 6614 CORIA, Université et INSA de Rouen, Avenue de l'université, Saint-Etienne du Rouvray, <sup>2</sup> Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, Gif-sur-Yvette.	
<b>Etude de la pénétration des aérosols au travers d'une paroi en béton fissurée par des contraintes sismiques</b>	<b>39</b>
T. Gelain*, F. Gensdarmes, J. Vendel Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Direction de la Sûreté des Usines, des laboratoires, des transports et des déchets, Gif-sur-Yvette.	

## METROLOGIE DES AEROSOLS

- Mesures analytiques sur des particules par spectroscopie d'un plasma induit par laser: application à la mesure de concentration de carbone** 45  
E. Vors\*.  
Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), Direction de l'Energie Nucléaire, Département de Physico-Chimie, Service de Chimie Physique, Laboratoire de Réactivité des Surfaces et des Interfaces, Gif sur Yvette.
- Etude numérique d'un granulo-vélocimètre phase Doppler à points chauds** 51  
C. Hespel, K. Ren, F. Onofri et G. Gréhan  
LESP, UMR 6614/CORIA, CNRS-INSA et Université de Rouen, avenue de l'Université, Saint Etienne du Rouvray.
- Thermométrie par Arc-en-ciel** 57  
S. Saengkaew, L. Méès et G. Gréhan  
LESP, UMR 6614/CORIA, CNRS-INSA et Université de Rouen, Avenue de l'Université, Saint Etienne du Rouvray.
- Néphélomètre à double polarisation : mesures obtenues avec différents aérosols** 62  
D. Daugeron, J.-M. Andre, P. Personne  
Laboratoire de Météorologie Physique (LaMP), UMR CNRS 6016 CLERMONT-FERRAND.
- Le Vibro-Générateur d'Aérosols Homogènes** 69  
N. Zainoun\*, J.M. Chicheportiche, J.P. Renaudeau  
Laboratoire de Mécanique des Fluides, ESCPI-CNAM, CHAMPS SUR MARNE.
- Concept of a fast measuring aerosol spectrometer for the range from 5 to 630 nm (Grimm TR-DMPS 5.600)** 75  
Ch. Gerhart<sup>1</sup>, G.P. Reishl<sup>2</sup>  
<sup>1</sup>Grimm Aerosol Technik GmbH, Dorfstrasse9, D-83404 Ainring, Germany, <sup>2</sup>Institut für Experimentalphysik, universität Wien, Boltzmanngasse 5, A-1090 Wien, Austria

## AEROSOLS ET SANTE

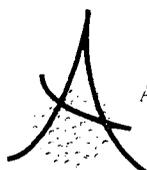
- Aérosols microbiens et environnements intérieurs** 81  
E. Robine  
(1) Laboratoire de Microbiologie des Environnements intérieurs, Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, Champs sur Marne.
- Mise au point d'un outil expérimental pour l'étude des aérosols de Legionella** 84  
T.-L. Ha\* (1,2), E. Robine (2) et E. Géhin (1,3)  
(1) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université Paris XII, Créteil, (2) Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs, centre Scientifique et Technique du Bâtiment, Champs sur Marne, (3) Centre d'Etudes et de Recherche en thermique, Environnement et Systèmes, Université Paris XII, Créteil
- Mesurage des endotoxines dans l'air au cours du travail dans les égouts** 92  
P. Duquenne\*(1), P. Görner(1), D. Ambroise(2), J.F. Fabriès(1), G. Greff-Mirguet(1)  
(1) Laboratoire de Métrologie des Aérosols, INRS, Vandoeuvre, (2) Département Epidémiologie en Entreprise, INRS, Vandoeuvre.
- Modélisation macroscopique de l'influence des paramètres ventilatoires sur la quantité d'aérosol inhalée au cours de la nébulisation** 100  
L. Vecellio None\*, D. Grimbart, P. Diot  
INSERM U-618, IFR 135, Equipe aérosols et cancer broncho-pulmonaire, Laboratoire de Biophysique Cellulaire et RMN, Faculté de Médecine de Tours, Tours

## FILTRATION DES AEROSOLS

- Facteurs influençant le colmatage des filtres THE industriels par les aérosols formés en cas de feux de différents matériaux** 105  
V.M. Mocho\*, L. Bouilloux, V. Renzi  
Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, Direction de la Sécurité des Usines, des laboratoires, des transports et des déchets, Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, GIF-SUR-YVETTE.
- Description des bouffées de particules émises à l'aval d'un dépoussiéreur consécutivement à des décolmatages par à-coup de pression** 112  
X. Simon\* (1,2), D. Bémer (1), S. Callé (2), D. Thomas (2), R. Régnier (1)  
(1) Laboratoire de Filtration des Aérosols, Institut National de Recherche et de Sécurité, VANDOEUVRE LES NANCY, (2) Laboratoire des Sciences du Génie Chimique / Centre National de la Recherche Scientifique, NANCY.
- Influence de perforations sur les performances de filtration des filtres à fibres** 118  
S. Callé\* (1), J. Vinel (1), D. Thomas (1), D. Bémer (2), P. Contal (1) et J.C. Appert-Collin (1).  
Laboratoire de Filtration des Aérosols, (1) Laboratoire des Sciences du Génie Chimique / Centre National de la Recherche Scientifique, NANCY. (2) Institut National de Recherche et de Sécurité, avenue de Bourgogne, VANDOEUVRE LES NANCY.
- Modélisation numérique de l'écoulement et du transport des particules à l'intérieur d'un filtre tissé** 124  
M. Bénesse, L. Le Coq\*, C. Sollic  
Ecole des Mines de Nantes, GEPEA, Nantes.

## AEROSOLS ET ENVIRONNEMENT

- Détermination de la distribution en taille au niveau d'un site de production de l'industrie extractive** 130  
O. Le Bihan\*(1), P. Delalaín (1), L. Botté (2), Y. Lemaitre (2), G. Tymen (3), F. Del gratta (1).  
(1) Direction des risques chroniques, Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques, Parc Technologique ALATA, Verneuil-en-Halatte. (2) Carrières de Chailloué, 61500 Chailloué, (3) Université de Bretagne Occidentale, 00LARAHA, Brest.
- Approche expérimentale et numérique de l'effet de la stratégie de ventilation sur le dépôt des particules dans une pièce** 135  
J. Bouilly\*, K. Limam, C. Béghein et F. Allard  
LEPTAB, Université de La Rochelle, La Rochelle Cedex.
- Aérosols émis lors de l'interaction laser/particule de chrome déposée sur de la silice** Annulé  
S. Palmier\*(1), I. Tovená(1), R. Courchinoux(1), J.L. Rullier(1), B. Bertussi(2), J.Y. Natoli(2), L. Servant(3), D. Talaga(3).  
(1) CEA/CESTA, Le Barp. (2) Institut Fresnel, Université de Marseille, (3) Laboratoire de physico-chimie moléculaire de Bordeaux.
- Caractérisation d'aérosols générés par ablation laser de peintures sur béton** 141  
M. Géléoc\* (1), E. Weisse (1), M. Tabarant (1), F. Gensdarmes (2)  
(1) Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), Service de Chimie Physique, Gif-sur-Yvette, (2) Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, Gif-sur-Yvette.
- Caractérisation des aérosols polluants produits dans un amplificateur de laser de puissance** 147  
F. Gensdarmes (1), G. Basso (1), I. Tovená (2), S. Palmier\*(2)  
(1) Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, Gif sur Yvette. (2) Commissariat à l'Energie Atomique - DAM/CESTA, Département Lasers de Puissance, Le Barp.



## 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](http://www.asfera.org)

### *Le Président*

Notre 20<sup>ème</sup> Congrès Annuel (CFA 2003) se tient donc à la Maison de la Mutualité à Paris, les 7 et 8 décembre 2004. Pour la première fois, notre partenaire habituel, l'INA, nous a fait faux bond et de surcroît nous a prévenus tellement tard que nous avons été amenés à avancer la date de notre congrès d'une journée. J'espère, néanmoins, que ce désagrément ne vous a pas posé trop de problèmes, sachant que les agendas de fin d'année sont souvent très chargés.

Vous disposez, cette année, comme l'année dernière, des Actes au moment de l'ouverture du congrès. C'est là, à nouveau, un grand progrès qui vous permettra de profiter au maximum de ces deux journées très intenses sur le plan scientifique. Ce progrès, nous le devons en grande partie au dévouement de notre secrétaire général et trésorière le Dr. Evelyne Géhin et de son équipe du CERTES de l'Université Paris XII qui assurent depuis plusieurs années l'édition de ces Actes, et qui cette année encore ont réalisé des prouesses.

Ce CFA 2004 réunit plus de 100 participants qui vont assister à 26 communications dont deux conférences plénières présentées, d'une part par Eric Gaffet responsable du Groupe de recherche sur les nanomatériaux du CNRS de Belfort et d'autre part par Enrique Robine du Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs du Centre Scientifique et Technique du Bâtiment. Ces conférences vont sans doute retenir l'attention de l'assistance en abordant des sujets très différents mais touchant, toutes deux, à des thèmes passionnants : le rôle des nanomatériaux dans la métallurgie de demain, d'une part, et la caractérisation des aérosols microbiens dans les environnements intérieurs d'autre part.

Le CFA 2004 est, pour les thèmes, dans la tradition des CFA précédents, nous y retrouvons cinq grandes sessions :

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

Du 6 au 10 septembre 2004 s'est tenue à Budapest, Hongrie, l'European Aerosol Conference 2004 qui a réuni plus de 700 participants. Au cours de cette conférence, Nicolas Jidenko, a présenté brillamment ses travaux sur la caractérisation d'aérosols dans les électroprécipitateurs plan-plan avec et sans décharges, qui lui ont valu le prix Jean Bricard 2004 décerné par notre association. Cette communication est reprise au cours de notre CFA 2004 lors de la session « Physique des Aérosols ». Ce prix sera remis solennellement à

Nicolas Jidenko, 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 Madrid, Evelyne Géhin et moi-même avons représenté l'ASFERA aux bureaux directeurs de l'International Aerosol Research Assembly et de l'European Aerosol Assembly (EAA). A cette dernière réunion, nous avons retenu après un vote serré la proposition faite par l'association allemande ( GaeF ) de tenir l'EAC 2007 à Salzburg en Autriche. Je vous informe à nouveau que la prochaine conférence européenne ( EAC 2005 ) aura lieu à Gand, en Belgique, du 28 août au 2 septembre 2005 et que la future conférence internationale ( IAC 2006 ) se tiendra du 10 au 15 septembre 2006 à Saint Paul aux Etats Unis. Je vous incite à participer activement à ces deux conférences montrant ainsi le dynamisme de notre recherche en Science des Aérosols.

Je vous rappelle que l'ASFERA s'est dotée de son site [www.asfera.org](http://www.asfera.org) qui est opérationnel depuis plus trois ans. Ainsi, pour les prochains CFA comme pour cette année, une grande partie des informations et des renseignements pourra y être trouvée. 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 notre fidèle partenaire : la revue "*Pollution Atmosphérique*" qui publie les résumés des communications dans l'année suivant notre congrès. Je regrette que, cette année, ce malheureux contretemps qui a entraîné un changement de lieu et de date ne nous ait pas permis d'accueillir comme à notre habitude des exposants. Cet inconvénient devrait être surmonté l'année prochaine, je leur donne donc rendez vous en 2005.

Une fois encore, je remercie le bureau de l'ASFERA, qui a construit ce programme du CFA 2004, avec une mention toute particulière pour nos nouveaux membres, élus lors de notre assemblée générale de l'année dernière, qui ont contribué, comme les anciens, au fonctionnement et au rayonnement de notre association.

Mes remerciements vont également vers les étudiants du DESS "SAGA" de l'Université Paris XII qui vont vous accueillir pendant les deux journées de la conférence.

Enfin, ce 20<sup>ème</sup> congrès marque, bien entendu, une date anniversaire pour notre association et je remercie vivement le Professeur André Renoux, président d'honneur de l'ASFERA, d'avoir accepté de nous rappeler, à la fin de la première journée, les faits les plus marquants de cette déjà longue histoire.

Après le passé, n'oublions pas le futur et je vous donne donc rendez vous en 2005 pour notre 21<sup>ème</sup> congrès.

Denis BOULAUD  
Président de l'ASFERA

Le bureau actuel de l'ASFERA qui a assuré la sélection des communications est constitué des membres suivants :

**Le Président**

**Docteur Denis BOULAUD**, Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire

**Le Vice-président**

**Docteur Jean-François FABRIES**, Institut National de Recherche et de Sécurité

**Le Secrétaire Général**

**Docteur Evelyne GEHIN**, Université Paris XII

**Les membres**

**Docteur Jean-Pascal BORRA**, LPGP, CNRS- Univ Paris XI, SUPELEC

**Professeur G. GOUESBET**, LESP INSA Rouen URA, CNRS 230 CORIA

**Docteur Gérard GREHAN**, LESP INSA Rouen URA, CNRS 230 CORIA

**Docteur Sophie MAZOUÉ**, Régie Autonome des Transports Parisiens

**Professeur André RENOUX** (*Président d'Honneur*)

**Docteur Enrique ROBINE**, LMEI, Centre Scientifique et Technique du Bâtiment (CSTB)

**Professeur Dominique THOMAS**, LSGC, Université Nancy 1

**Professeur George TYMEN**, Université de Bretagne Occidentale

**Docteur Olivier WITSCHGER**, Institut National de Recherche et de Sécurité (INRS)

# Diffusion d'une impulsion ultra-brève par un milieu fortement diffusif

C. Calba, T. Girasole, C. Rozé et L. Méès

UMR 6614 - CORIA, CNRS, Université et INSA de Rouen  
Site universitaire du Madrillet, BP 12, avenue de l'Université  
76801 Saint -Etienne du Rouvray Cedex

## Résumé

Cette étude vise à développer des techniques métrologiques basées sur l'utilisation d'impulsions ultra-brèves (femtoseconde) afin de sonder des milieux optiquement denses où la diffusion multiple est majoritaire. L'utilisation d'un éclairage pulsé et d'une détection résolue en temps permet d'observer séparément les différents phénomènes de diffusion et donc d'isoler les photons balistiques qui contiennent l'information des photons multidiffusés qui la brouillent. Les théories de Lorenz-Mie ont été étendues à la description de l'interaction d'une particule avec une impulsion de durée arbitraire. Les fonctions de phase dépendantes du temps ainsi obtenues sont alors introduites dans un code de diffusion multiple basé sur la méthode de Monte Carlo. Celui-ci a pour originalité de prendre en compte les délais temporels dus à l'interaction entre le pulse incident et les particules, en plus des délais dus aux distances inter-particulaires. Les résultats de simulation montrent une répartition d'intensités temporelles sur la face de sortie d'un milieu semi-infini dense, caractérisé par 3 tailles de particules (10, 50 et 100  $\mu\text{m}$ ) et 11 épaisseurs optiques de 1 à 11. La dépendance des résultats à ces paramètres permet d'avancer quelques pistes vers l'inversion de la granulométrie et de la concentration en particules de milieux denses.

## 1 Introduction

Les techniques optiques sont largement utilisées pour caractériser les milieux diphasiques, les sprays ou les particules solides en écoulement. Mais dès lors que le milieu est dense, ou plus exactement fortement diffusif, les techniques classiques, telles que celles basées sur l'extinction (loi de Beer-Lambert [1]) ou la diffusion simple (Anémométrie Phase Doppler, techniques interférométriques, imagerie, ...) échouent, car la diffusion multiple devient dominante et « brouille » le signal mesuré et l'information qu'il contient. Le diagnostic devient alors impossible ou faussé.

Il existe aujourd'hui des sources laser commerciales capables de produire des impulsions extrêmement brèves (de l'ordre de la femtoseconde). On se propose d'utiliser de telles impulsions afin d'obtenir une réelle avancée dans le domaine de la caractérisation des milieux denses par diffusion de la lumière. En effet, l'utilisation d'un éclairage pulsé et d'une détection résolue en temps permet d'observer séparément les phénomènes de diffusion (diffraction, réflexion, réfractions). Une caractérisation résolue en temps à l'échelle de l'impulsion permet également d'isoler les photons balistiques des photons multi-diffusés, pour obtenir des informations inversibles sur le milieu traversé.

Le CORIA possède une solide expérience sur l'interaction entre les ondes électromagnétiques et la matière dispersée : particule unique (diffusion simple, théories de Lorenz-Mie, théories de Lorenz-Mie généralisées [2]) ou un nuage de particules (diffusion multiple, méthodes de Monte-Carlo [3,4]). Ces études, théoriques et expérimentales, étaient jusqu'alors basées sur l'hypothèse d'un éclairage continu. Les théories de Lorenz-Mie ont alors été étendues à la description de l'interaction d'une particule avec un pulse d'une durée arbitraire [5,6], qui nous donne accès aux champs incidents, internes, proches et lointains par calcul rigoureux. Quelques résultats de diffusion simple sont ainsi rappelés dans la section 2.

Les quantités calculées à l'aide de cet outil (coefficient d'extinction, albédo, fonctions de phase dépendant du temps) ont été ensuite utilisées comme paramètres d'entrée dans un code de diffusion multiple de Monte-Carlo mis en place au CORIA [7], dans le cadre d'une collaboration avec le département DOTA/ QDO de l'ONERA (Office National d'Etude et de Recherche en Aéronautique) de Toulouse. La section 3 décrit sommairement la méthode.

La section 4 décrit une configuration expérimentale type avec une étude pour 3 tailles de particules (10, 50 et 100  $\mu\text{m}$  de diamètre) et 11 épaisseurs optiques et aux concentrations de milieux denses. La section 5 conclut cet article.

## 2 La diffusion simple d'une impulsion

### 2.1 Théorie de Mie pour la diffusion d'une impulsion et fonction de phase temporelle.

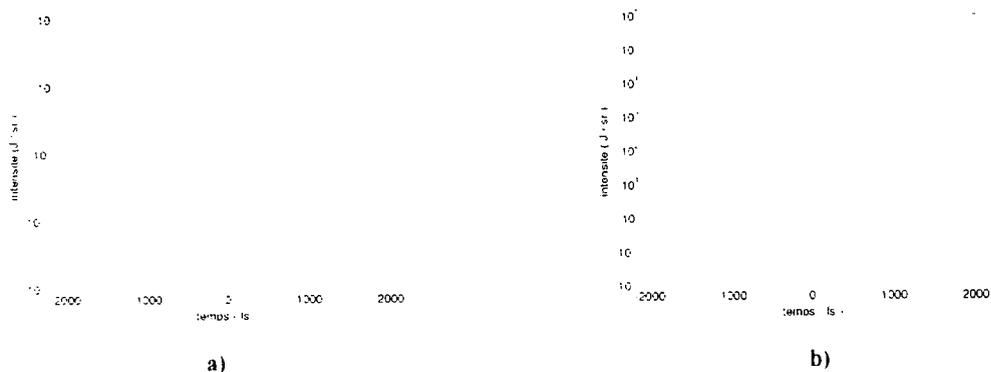
Dans sa version originale, la théorie de Lorenz-Mie (LMT) [8,9] fournit une solution rigoureuse au problème de diffusion d'une onde plane monochromatique par une sphère parfaite, satisfaisant aux équations de Maxwell. Les champs incident interne et diffusé par la particule sont décomposés en sommes d'onde sphériques élémentaires. Le champ diffusé loin de la particule s'écrit ainsi

$$\vec{E}_d(\theta, \varphi) = \sum_{n=1}^{\infty} a_n \vec{M}_{o,e,n} + b_n \vec{N}_{o,e,n} \quad (1)$$

où  $a_n$  et  $b_n$  sont les coefficients de diffusion et  $\vec{M}_{o,e,n}$  et  $\vec{N}_{o,e,n}$  sont des harmoniques sphériques vectorielles, fonction des angles de diffusion  $\theta$  et  $\varphi$ . Les coefficients de diffusion sont déduits de l'écriture des conditions aux limites de la particule et dépendent du rapport  $\alpha = \frac{\pi d}{\lambda}$  entre le périmètre de la sphère et la longueur d'onde incidente, appelé paramètre de taille, et l'indice de réfraction de la particule.

La LMT a ensuite été étendue à d'autres formes de particule, ainsi qu'à la prise en compte d'un éclairage non uniforme par des faisceaux laser focalisés (théories de Lorenz-Mie généralisées [2]).

Plus récemment, cette théorie a été étendue au cas d'une impulsion lumineuse de durée arbitraire. Cette impulsion est décrite comme une onde électromagnétique de fréquence  $\nu_0$  (fréquence porteuse) modulée par une enveloppe temporelle finie se déplaçant à la même vitesse que l'onde. Une transformée de Fourier de l'impulsion permet sa décomposition en ondes monochromatiques élémentaires constituant le spectre large caractéristique des impulsions courtes. Pour chaque fréquence  $\nu$  du spectre, on considère l'interaction de la particule avec l'onde élémentaire (continue de fréquence  $\nu$ ) par la théorie de Mie. On obtient la réponse temporelle à l'impulsion (la fonction de phase temporelle) en appliquant une transformation de Fourier inverse à la réponse spectrale ainsi obtenue. Considérons par exemple la réponse de la particule à un angle de diffusion  $\theta$  pour une onde non polarisée. La figure 1 représente ces évolutions temporelles (fonctions de phase dépendantes du temps) pour deux diamètres de particules, dont l'indice de réfraction est 1.33. Les particules sont non absorbantes, l'angle de diffusion  $\theta$  est  $30^\circ$  et la durée de l'impulsion est 50 fs (à mi-hauteur).

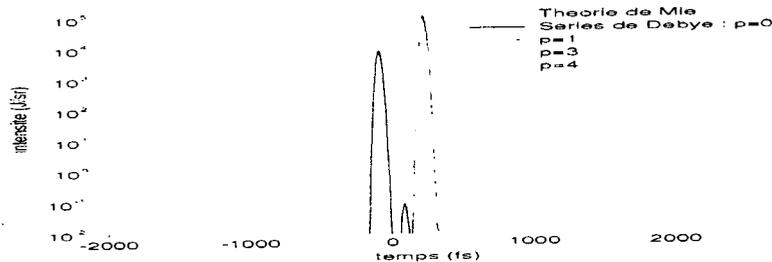


**Figure 1** : intensités diffusées pour un angle de  $30^\circ$  par une particule de a)  $1,2 \mu\text{m}$  et b)  $100 \mu\text{m}$  soumise à un pulse de 50 fs.

Sur la figure 1.a) pour une petite particule, on observe un pic unique alors que sur la figure 1.b) la réponse de la particule prend la forme d'une série de pics séparés dans le temps, chacun correspondant à un mode de diffusion. En 50 fs, la lumière parcourt  $10 \mu\text{m}$  dans la particule, ce qui conduit à une séparation des modes de diffusion (réflexion, réfraction, réflexions internes, ...) dès lors que la taille de la particule est supérieure à cette distance. Cette séparation est nette dans le cas de la particule de  $100 \mu\text{m}$ , figure 1.b). Pour la particule de petite taille (fig. 1.a)), les modes de diffusion restent quasi-simultanés et la séparation ne s'opère pas.

## 2.2 Les séries de Debye

La théorie de Lorenz-Mie (TLM), contrairement à l'optique géométrique, fournit une réponse électromagnétique globale et ne permet pas de distinguer les différents modes de diffusion (diffraction, réflexion, réfraction et réflexions internes). Les séries de Debye qui consistent en une ré-écriture des séries de Mie permettent de faire cette distinction en décomposant chaque terme de la relation (1) en une somme de contributions réfléchie, réfractée, une fois réfléchie interne, etc..., contributions qui sont généralement indexées par un entier  $p$  prenant les valeurs 0 pour la réflexion, 1 pour la réfraction, etc... [10]. Cette réécriture permet par exemple d'isoler la contribution d'un mode  $p$  de diffusion des autres. La figure 2 représente quelques unes de ces contributions en comparaison avec le calcul complet de LMT pour la plus grosse particule de  $100 \mu\text{m}$ .



**Figure 2 :** Comparaison entre la théorie de Lorenz-Mie et calcul par les séries de Debye pour une particule de  $100 \mu\text{m}$  à  $\theta=30^\circ$ .

Pour chaque terme  $p$  des séries de Debye, la réponse prend la forme d'un pic unique à quelques exceptions près. Ces pics se superposent à ceux du signal en TLM et permettent leur identification ( $p=0$  : réflexion+diffraction,  $p=1$  une réfraction,  $p=2$  une réflexion interne, etc...). En général, si on considère les pics jusqu'à l'ordre  $p=20$ , la quasi-totalité de l'intensité de la LMT est reconstituée.

## 3 La diffusion multiple en temporel

### 3.1 Choix de la méthode de Monte-Carlo

La méthode de Monte-Carlo [11,12] est une des méthodes permettant la résolution de l'équation de transfert radiatif. Le programme de Monte-Carlo développé au laboratoire [7] qui procède à partir de calculs rigoureux sur la diffusion simple revêt une originalité : il prend en compte la dimension des particules et le passage de l'impulsion à l'intérieur de celles-ci en prenant donc en compte les fonctions de phase temporelles, contrairement à ce qui se fait habituellement où seuls les temps de parcours de centre à centre de diffuseurs sont pris en compte.

La lumière émise est décomposée en petits pinceaux lumineux appelés « photons » dont chaque trajectoire est construite à partir de densités de probabilité et de tirages aléatoires. Une densité de probabilité est liée à chaque événement pouvant advenir dans la vie du photon et chacune des interactions photon/diffuseur obéit aux lois de diffusion simple.

Le principe est le suivant : on considère un milieu d'épaisseur physique  $L$ . Le photon est une série de pics ( $t_i, a_i$ ) caractérisés par un temps réduit et une amplitude qui se réduit à un pic unique au départ de la source. Le parcours des photons est suivi dans le milieu. A la première interaction, le pic est transformé en une série de  $n$  pics conformément au calcul des séries de Debye. Puis, chaque pic génère une nouvelle série de pics à l'interaction suivante. Pour limiter le nombre de pics transportés, des seuils d'amplitude et de temps sont appliqués.

Cette méthode est simple et s'adapte à toute sortes de géométries mais le temps de calcul est long (nombre de photons à envoyer très élevé pour obtenir une bonne statistique).

### 3.2 Utilité des séries de Debye pour la diffusion multiple

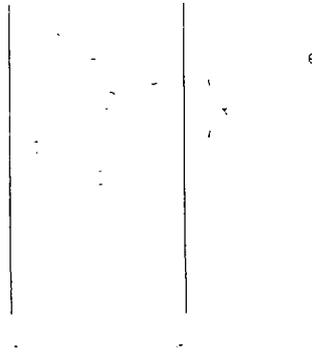
On a vu que les séries de Debye permettent s'isoler les modes de diffusion. L'idée est donc de considérer la réponse de la particule comme une série de pics (21 seront retenus), chaque pic correspondant à un mode de diffusion. La figure de diffusion est pré-calculée pour chaque angle de diffusion (de  $0$  à  $180^\circ$  par pas de  $1^\circ$ ) et pour chaque classe d'une distribution granulométrique donnée. L'avantage réside dans le fait que ces ordres sont parfaitement discrétisés sans chevauchement,

permettant notamment des calculs d'interpolation de taille et d'angle non pré-calculés, sans ambiguïté. La temps de calcul se voit ainsi nettement diminué, en particulier dans le cas où la distribution en taille des particules du milieu diffusant est poly-dispersée. Notons que l'utilisation des séries de Debye demande 21 calculs au lieu d'un seul calcul de LMT. Cependant, l'unicité du pic de diffusion pour chaque mode calculé séparément permet d'exploiter les propriétés de repliement des transformées de Fourier discrètes et de réduire le temps de calcul, de telle sorte que le gain sur le temps de calcul global reste avantageux. Notons également que les séries de Debye seront appliquées pour des tailles de particules supérieures à quelques longueurs d'onde, car en deçà elles perdent leur sens physique et produisent des résultats discutables. Dans la suite nous considérerons des particules de diamètre supérieur à 10  $\mu\text{m}$ .

## 4 La simulation numérique

### 4.1 Configuration expérimentale simulée

On étudie la répartition des intensités temporelles collectées sur la face de sortie d'un milieu semi-infini, en fonction de la distance  $x$  à l'axe du faisceau incident et de l'angle de diffusion  $\theta$  comme le montre la figure 3.



**Figure 3 :** Schéma de la configuration simulée. Le temps sera considéré par rapport à une référence  $t=0$  correspondant à la sortie des photons balistiques (non diffusés). L'angle  $\theta=0^\circ$  correspond à la direction de ces photons, soit la direction de l'onde incidente.

Les paramètres de la simulation sont :

- gouttelettes d'eau : indice réel 1,33 (pas d'absorption)
- onde plane pulsée de 50 fs et de longueur d'onde porteuse  $\lambda_0 = 600 \text{ nm}$
- 70 millions de photons envoyés pour chaque calcul
- épaisseur physique du milieu  $L = 10 \text{ cm}$
- 3 distributions gaussiennes de diamètre de particules centré sur 10, 50 et 100  $\mu\text{m}$  et de largeur à mi-hauteur 6  $\mu\text{m}$ .
- 11 épaisseurs optiques de 1 à 11. L'épaisseur optique est définie comme le Logarithme népérien du rapport entre flux diffusé et flux incident avec une hypothèse de diffusion simple (loi de Beer-Lambert).

Les photons sont collectés à la sortie du milieu afin de représenter l'intensité transmise en fonction de :

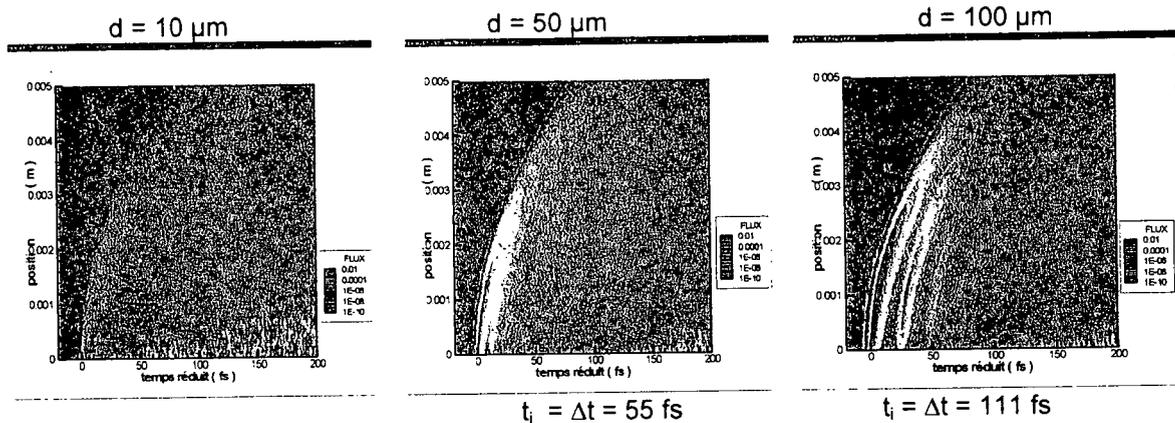
- la position  $x$ , variant de 0 à 8 mm
- l'angle de diffusion  $\theta$ , variant de 0 à 90 °
- le temps  $t$  variant de -100 à 1000 fs par pas de 5 fs (une unité de  $t$  réduit vaut 5 fs sur les figures suivantes)

## 4. 2 Résultats et exploitations

Pour chaque cas de figure étudié, les diagrammes en position et en angle ont été construits de la manière suivante :

a ) les intensités en fonction du temps réduit  $t$  et de la position  $x$ , intégrées sur tous les angles de diffusion.

Pour une forte épaisseur optique, de 8, et les trois diamètres, les diagrammes en position sont représentés figure 4.

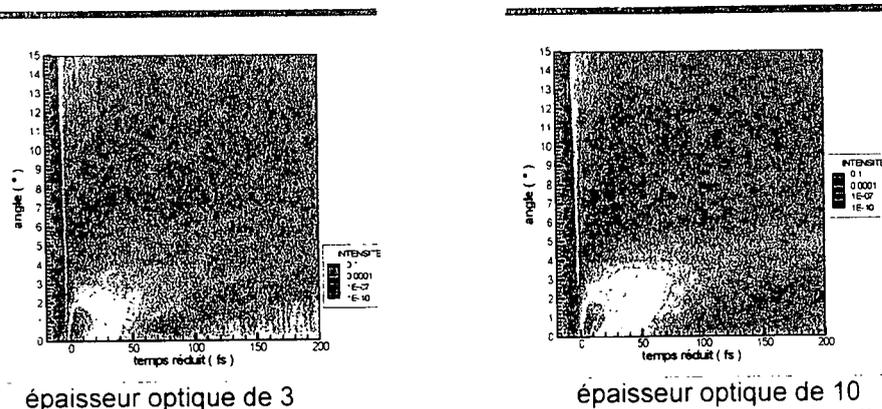


**Figure 4 :** Diagrammes de flux transmit en fonction de la position et du temps, pour 3 diamètres (10, 50 et 100  $\mu\text{m}$  de gauche à droite) et une même épaisseur optique de 8.

La première constatation est que les flux collectés dans le cas du plus grand diamètre sont plus importants. En effet, plus la particule est grosse, plus la diffusion se fait vers l'avant (par diffraction essentiellement), donc plus les flux sont importants aux temps faibles et aux faibles angles considérés ici. On peut également observer sur ces diagrammes des zones de flux élevés étirées vers les grandes distances : une seule dans le cas 10  $\mu\text{m}$ , deux pour 50  $\mu\text{m}$  et trois pour 100  $\mu\text{m}$ . Les zones pour les deux derniers cas de figures sont séparées temporellement d'un temps  $t_i$  proportionnel à la taille de la particule. L'écart  $t_i = 111$  fs entre les pics du cas 100  $\mu\text{m}$  correspond au retard temporel engendré par un parcours de 100  $\mu\text{m}$  dans un milieu d'indice 1,33 par rapport au même parcours dans un milieu d'indice 1 : délai entre diffraction et réfraction dans le cas d'une diffusion simple.

Ces diagrammes en position contiennent donc une information claire sur la taille des particules diffusantes malgré l'épaisseur optique très importante du milieu, illustrant le potentiel de notre approche en terme de granulométrie. Notons toutefois que les diagrammes représentés sont indépendants de la durée de l'impulsion considérée. Il convient d'opérer une convolution des résultats tels qu'ils sont représentés par une enveloppe gaussienne définissant cette durée d'impulsion, ce qui diminue fortement la visibilité des structures observées dans les 2 premiers cas. Autrement dit, les écarts temporels constatés doivent donc être comparés à cette durée pour être pertinents.

b) les intensités en fonction du temps réduit et de l'angle de diffusion, intégrées suivant toutes les positions.



**Figure 5 :** Diagrammes de flux transmit en fonction du temps et de l'angle de diffusion, pour un diamètre de 100  $\mu\text{m}$  et deux épaisseurs optiques (3 et 10).

Pour un même diamètre, 100  $\mu\text{m}$ , les diagrammes angulaires ont été établis suivant deux épaisseurs optiques différentes (figure 5). On retrouve deux zones espacées temporellement du même temps  $t_i$  que pour les figures précédentes. En ce qui concerne la répartition des flux sur les diagrammes, ils sont davantage confinés à des temps et des angles faibles dans le cas de l'épaisseur optique la plus faible : le nombre de collisions étant fortement réduit, la diffusion se produit davantage vers l'avant. L'étalement de la tache obtenue variant avec l'épaisseur optique du milieu présente un potentiel pour la mesure de la concentration du milieu.

## 5 Conclusion

Ce programme de Monte-Carlo avec l'originalité décrite comme prenant en compte l'interaction entre le pulse incident et les particules a permis une étude approfondie dans un cas particulier, en situation de milieu optiquement dense. L'ensemble des simulations, dont une partie est reproduite dans cet article, a permis d'élaborer un début de stratégie d'inversion à partir des intensités collectées pour remonter aux caractéristiques de taille et de concentration en particules. L'effort doit être poursuivi pour étendre le domaine d'étude et définir plus clairement les limites des approches proposées. Par exemple, des limites s'imposent pour les particules de faibles diamètres quant à la mesure de leur taille. Dans le cas des particules de 10 et 50  $\mu\text{m}$ , les zones ne sont pas clairement distinctes pour une impulsion incidente et une résolution temporelle associée de 100 fs. Le programme offre de nombreuses possibilités d'études, pour des configurations variées en terme de géométrie et de détection. Une contrepartie expérimentale à ces travaux est aujourd'hui planifiée, qui devra permettre de valider les résultats de calcul et les approches métrologiques proposées.

## Références bibliographiques

- [1] M. Czerwinski, J. Mroczka, T. Girasole, G. Gouesbet, G. Gréhan. *Light-transmittance prediction under multiple-light-scattering Conditions. I. direct problem : hybrid-method approximation*. Applied Optics, 40 (9), 1514-1524, ( 2001).
- [2] G. Gouesbet et G. Gréhan. *Generalized Lorenz-Mie, from past to future*. Atomization and Spray, 10 (3-5) : 277-333, (2000).
- [3] T. Girasole, C. Rozé, B. Maheu, G. Gréhan and J. Ménard. *Sighting distances in a foggy atmosphere : Comparisons between lighting installations by means of a Monte-Carlo simulation*. Internal Journal of Lighting Research & Technology, 30 ( 1 ) : 29-36, ( 1998).
- [4] C. Lavigne, A. Roblin, V. Outters, S. Langlois, T. Girasole and C. Rozé. *Comparison of iterative and Monte Carlo methods for calculation of the aureole about a point source in the Earth's atmosphere*, Appl. Optics, 38 (30) : 6237-6246, (1999).
- [5] K.S. Shifrin and I.G. Zolotov. *Quasi-stationary scattering of electromagnetic pulses by spherical particles*. Applied Optics, 33, 7798-7804, ( 1994 ).
- [6] L. Méès, G. Gouesbet and G. Gréhan. *Scattering of laser pulses (plane wave or focused Gaussian beam) by spheres*. Applied Optics, 40, 2546-2550, ( 2001 ).
- [7] C. Rozé, T. Girasole, L. Méès, G. Gréhan, L. Hespel, A. Delfour. *Interaction between ultra-short pulses and a dense scattering medium by Monte-Carlo simulation : consideration of particle size effect*. Optics Communications, 220, 237-245, ( 2003).
- [8] C. F. Bohren et D.R. Huffman. *Absorption and scattering of light by small particles*. Wiley, ( 1983, 1998 ).
- [9] A. R. Jones. *Light Scattering for particle characterization*. Progress in Energy and Combustion Science, 25, 1-53, ( 1999 ).
- [10] G. Gouesbet. *Debye series formulation for generalized Lorenz-Mie theory, with the Bromwich method*. Particle&Particle Systems Characterization, 20, 382-386, ( 2004 ).
- [11] E. Veach. *Robust Monte-Carlo methods for light transport*. PHD thesis, Standfort University, ( 1997 ).
- [12] M. F. Modest. *Radiative Heat Transfert*. Mc. Graw-Hill, Inc. University of Pennsylvania ( 1993 ).

# CONTRIBUTION DE LA POLARISATION A L'ETUDE DE MILIEUX DIFFUSANTS

## PEU DENSES OU OPTIQUEMENT EPAIS

N. Rivière\*(1), L. Hespel(1) et G. Gréhan(2)

(1) ONERA Centre de Toulouse, Département d'Optique Théorique et Appliquée, 2 avenue Edouard Belin, BP 4025, 31055 Toulouse cedex 4, nicolas.riviere@onera.fr

(2) CNRS UMR 6614, CORIA, Site universitaire du Madrillet, BP 12, 76801 Saint Etienne du Rouvray cedex

### TITLE

Contribution of the polarisation to the study of slightly dense or optically thick diffusing mediums.

### ABSTRACT

The granulometry determination of a medium is often obtained by non-polarized data inversion. This method imposes constraining assumptions based on the diffusers morphology and a simple diffusion of the light. However, by considering polarized data, the macroscopic parameters of the medium and the diffusers sphericity variation are obtained. Two reference direct codes were developed at the ONERA (METROPOL 1D and MC3D in Monte Carlo) wherein the simple diffusion assumption is useless. A sensitivity study allows us to find parameters from METROPOL which will be included into an optimization module (PARADOX). Concurrently, a two way measurement bench (MELOPEE) is built in order to validate these concepts. One way is reserved for crossed polarization to determine the polarized BRDF or BTDF. Thanks to the other way the Mueller matrix is determined using incident Stokes vector modulation.

### RESUME

La détermination de la granulométrie d'un milieu est souvent obtenue à partir de l'inversion de données non polarisées. Cette méthode impose des hypothèses contraignantes basées sur la morphologie des diffuseurs et sur une diffusion simple de la lumière. Pourtant, en considérant des données polarisées, on accède aux paramètres macroscopiques du milieu et à l'écart à la sphéricité des diffuseurs. Deux codes directs de référence ont été développés (METROPOL 1D et MC3D en Monte Carlo). Ils permettent de s'affranchir de l'hypothèse de diffusion simple. Une étude de sensibilité nous permet de paramétrer le code METROPOL qui sera ensuite incorporé dans un module d'optimisation (PARADOXE). Parallèlement, un banc de mesure polyvalent (MELOPEE) permet de valider les concepts mis en jeu selon deux axes. Une première voie est réservée à la polarisation croisée pour déterminer les BRDF ou BTDF polarisées. La seconde voie est utilisée pour remonter à la matrice de Mueller du milieu par modulation du vecteur de Stokes incident.

## 1. Introduction

Une technique efficace de granulométrie *in-situ* repose sur la mesure de la diffusion simple non polarisée de la lumière par des particules. Leur distribution en taille est alors obtenue en effectuant l'inversion des données de diffusion avec l'hypothèse de sphères homogènes équivalentes d'indice optique connu. Paradoxalement, les milieux diffusants d'intérêt sont principalement constitués par des particules non sphériques, non homogènes et dont l'indice est parfois imprécis. La détermination par cette approche de la granulométrie de ce type de particules est donc soumise à une erreur importante. D'autre part, dans le cas de milieux plus denses où la diffusion multiple existe, une difficulté survient et seuls certains des paramètres radiatifs intégrés tels que l'albédo et la fonction de phase, sont alors accessibles sous certaines hypothèses restrictives. Peu d'études portent sur l'utilisation de données polarisées pour la détermination des granulométries et des paramètres radiatifs de milieux diffusants. Pourtant, la polarisation apparaît porteuse d'information, en diffusion simple sur l'écart à la sphéricité et en diffusion multiple sur la densité optique du milieu. C'est dans ce cadre de travail qu'a débuté notre étude qui vise à déterminer les apports de la polarisation pour la caractérisation des milieux diffusants.

L'inversion des données mesurées de diffusion simple non polarisée pour la granulométrie s'appuie sur de nombreuses techniques usuelles, plus ou moins performantes et stables au bruit de mesure. L'ONERA a développé une méthode originale et stable au bruit de mesure s'appuyant sur un filtrage numérique (Hespel *et al.*, 2000 et 2001). Par contre, à ce jour, l'utilisation de données de diffusion simple polarisée plus difficilement inversibles demeure innovante. De même, si l'identification des paramètres de milieux denses en s'appuyant sur des méthodes d'optimisation est un domaine investigué, la généralisation de cette approche à l'ensemble complet des paramètres macroscopiques tels que l'albédo, la matrice de Mueller et l'épaisseur optique est un challenge.

Dans les deux cas, des codes de référence prenant en compte le cas des diffusions polarisées simple ou multiple ont été développés pour comprendre les phénomènes physiques mis en jeu, réaliser une étude de sensibilité et analyser les données d'intérêt à inverser ou à optimiser. La modélisation de la diffusion multiple polarisée peut être obtenue en résolvant l'ETRP (Equation de Transfert Radiatif Polarisée). Un code Monte-Carlo polarisé de référence (MC3D) est actuellement en cours de développement avec le CORIA. Adapté à la diffusion multiple, il prend en compte des géométries diverses liées au milieu ou à la géométrie d'observation. Ce code est peu adaptable à des méthodes inverses puisque les temps de calcul sont importants. Ce modèle sert donc à générer des données numériques de référence ou à générer des modèles instrumentaux. Il est en particulier utilisé pour déterminer les limites d'application de l'hypothèse de diffusion simple polarisée. Pour finir, il sert à valider un nouvel outil en géométrie 1D (code METROPOL) que nous venons de développer pour l'étude de milieux à diffusion multiple (Figure 1a). Après avoir déterminé les données d'intérêt à optimiser et choisi la démarche d'optimisation qui en résulte, il sera ensuite intégré dans un module d'optimisation (code PARADOXE) pour remonter aux paramètres radiatifs recherchés.

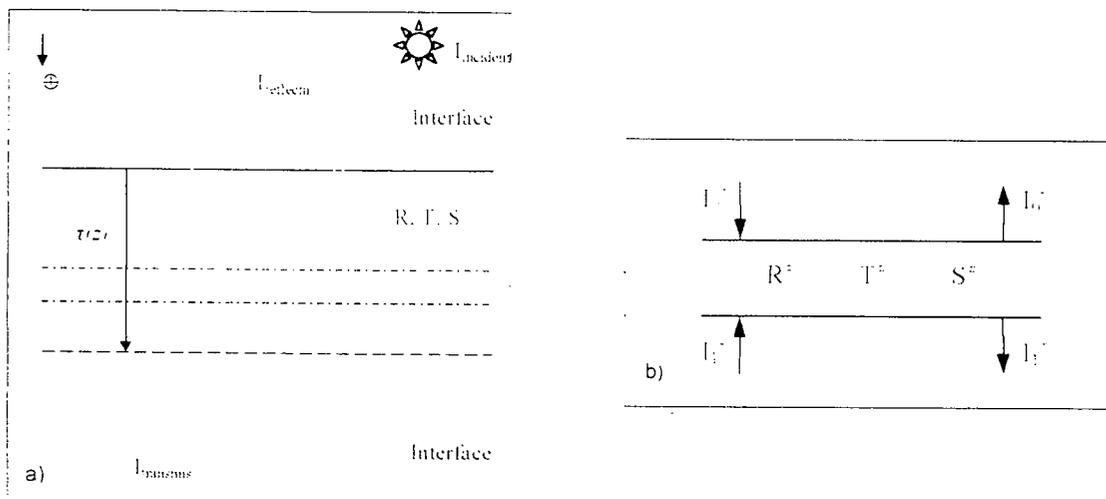


Figure 1 – a) Milieu multicouche 1D avec prise en compte d'interfaces b) Principe d'interaction.

## 2. Résolution de l'ETRP

### 2.1 Théorie

L'état de polarisation est défini à partir des composantes du vecteur de Stokes (1852). Le vecteur colonne  $I$  est constitué par les quatre paramètres de Stokes  $I$ ,  $Q$ ,  $U$  et  $V$  (Van de Hulst, 1980). La diffusion de la lumière par un milieu quelconque est décrite par sa matrice de Mueller  $F$  moyennée sur la granulométrie. La matrice de diffusion  $P$  qui caractérise le milieu, relie le vecteur de Stokes incident  $I_0$  et le vecteur diffusé  $I_1$  en tenant compte de l'orientation des diffuseurs. On utilise les matrices de passage  $M_1$  et  $M_2$  pour écrire  $P$  (Equation (1)). Le milieu est aussi défini par ses coefficients d'absorption  $\alpha$ , de diffusion  $\beta$  et d'extinction  $\gamma$ . On en déduit l'albédo de diffusion simple  $\omega = \beta / \gamma$ .

$$I_1 = P \cdot I_0 \quad \text{avec} \quad P = M_1 \cdot F \cdot M_2 \quad (1)$$

La luminance polarisée  $I(\mathbf{x}, \mathbf{s})$  en un point de l'espace de coordonnées  $\mathbf{x}$  et orienté dans la direction  $\mathbf{s}$  vérifie l'ETRP où  $d\omega(\mathbf{s}')$  est l'angle solide normalisé, mesuré sur une sphère unité  $\Omega$ .

$$\mathbf{s} \cdot \nabla I(\mathbf{x}, \mathbf{s}) = -\gamma(\mathbf{x}) \cdot I(\mathbf{x}, \mathbf{s}) + \beta(\mathbf{x}) \int_{\Omega} d\omega(\mathbf{s}') P(\mathbf{x}, \mathbf{s}, \mathbf{s}') \cdot I(\mathbf{x}, \mathbf{s}') \quad (2)$$

Pour un milieu unidimensionnel, la luminance ne dépend que de l'épaisseur de la couche traversée  $z$  et des angles polaires  $\theta$  et  $\varphi$  :  $I(\mathbf{x}, \mathbf{s}) = I(z, \theta, \varphi)$ . En tenant compte de l'épaisseur optique  $\tau(z)$ , on simplifie l'expression de l'ETRP.

$$\mu \cdot \frac{\hat{c}}{\hat{c}\tau} I = I - \omega \int_{\Omega} d\omega \cdot P \cdot I \quad (3)$$

La luminance incidente  $I_{inc}$  se décompose en deux contributions que sont la luminance  $I$  et la luminance diffuse  $D$  (O'Brien, 2001). L'ETRP est donc fonction de la luminance diffuse  $D$  et d'un terme source noté  $S$ .

$$\mu \cdot \frac{\hat{c}}{\hat{c}\tau} D = D - \omega \int_{\Omega} d\omega \cdot P \cdot D - \omega \cdot S \quad , \quad S = \int_{\Omega} d\omega \cdot P \cdot I \quad (4)$$

### 2.2 Résolution

L'orientation des  $\mu$ , discrétisés par une quadrature, est faite de telle sorte qu'ils soient positifs dans le sens de propagation de l'éclairement (vers le bas) et négatifs dans le cas contraire (Figure 1). On obtient un système de deux équations pour ces deux intervalles de valeurs. Le milieu est constitué par  $L$  couches unidirectionnelles et successives. Chacune d'entre elles est caractérisée indépendamment des autres par son épaisseur optique. Les composantes montantes et descendantes des termes sources sont traitées séparément. De plus, des conditions limite favorisent la résolution de l'ETRP (Siewert, 2000). Enfin, le calcul du vecteur de Stokes est séparé en  $\phi$  problèmes indépendants basés sur une décomposition en série de Fourier pour tenir compte de la symétrie azimutale. L'équation intégral-différentielle est valable quelque soit l'ordre  $m = 0, 1, \dots, L$ . La matrice de diffusion s'exprime en fonction des coefficients de Legendre. L'ETRP est donc donnée par l'équation (5) en notant  $\sigma_{\pm}^m(\tau, \mu) = \omega \cdot S_{\pm}^m$ ,  $\beta$  et  $p_i$  les coefficients et polynômes de Legendre.

$$\mu \cdot \frac{\hat{c}}{\hat{c}\tau} D^m(\tau, \mu) = D^m(\tau, \mu) - \frac{\omega}{2} \cdot \sum_{i=m}^L \beta_i \cdot p_i^m(\mu) \cdot \int d\mu' \cdot P_i^m(\mu') \cdot D^m(\tau, \mu') + \sigma_{\pm}^m(\tau, \mu) \quad (5)$$

L'ETRP est résolue à partir de la méthode d'*adding-doubling* qui modélise les interactions linéaires de la lumière avec le milieu selon le principe d'interaction (Figure 1b). L'équation (5) permet de générer les matrices initiales de transmission  $T$ , de réflexion  $R$  et le vecteur source initial  $S$ . Les propriétés de tout le milieu traversé sont calculées à partir des propriétés locales d'une couche infinitésimale. Les

luminances montantes et descendantes s'expriment simplement en fonction des matrices globales  $R$ ,  $T$  et  $S$  dans l'espace de Fourier.

### 3. Premiers résultats et validation

La prise en compte de la polarisation dans la résolution de l'équation du transfert radiatif est essentielle pour remonter aux paramètres radiatifs à optimiser : albédo, matrice de Mueller et épaisseur optique. Le code direct METROPOL (Modélisation de l'Equation de Transfert Radiatif en Optique POLarisée) permet d'étudier des milieux de géométrie 1D dans le cas de la diffusion multiple.

Le code METROPOL est validé dans un premier temps à partir des tables élaborées par Coulson *et al.* (1960). L'interface du bas est substituée par une surface lambertienne et le milieu diffusant est caractérisé par une diffusion de Rayleigh. L'éclairement incident est remplacé par une source naturelle, solaire donc non polarisée. La procédure d'*adding-doubling* a ainsi été validée (Figure 2). La validation du code avec des interfaces (changement d'indice dans les couches) sera faite à partir du code Monte Carlo MC3D. Les premières simulations concernent l'étude de sensibilité, l'objectif étant de paramétrer le code. Le milieu est homogène et d'indice constant. La matrice de Mueller et les fonctions de phase qui la composent sont définies par les polynômes de Legendre issus de la granulométrie (code de Mie). Nous avons représenté sur les Figure 3 et Figure 4 l'évolution du vecteur de Stokes diffusé en fonction de la granulométrie et de l'épaisseur optique.

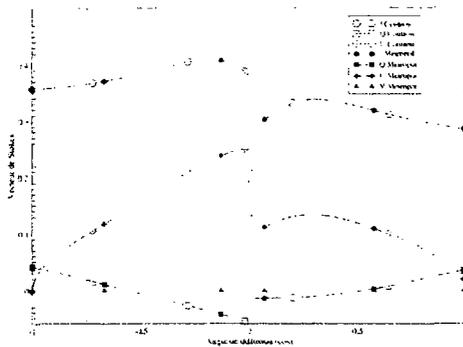


Figure 2 – Validation de METROPOL ( $n = 1 - \omega = 0,25 - \mu = 0,8 - \varphi = 90^\circ$ )

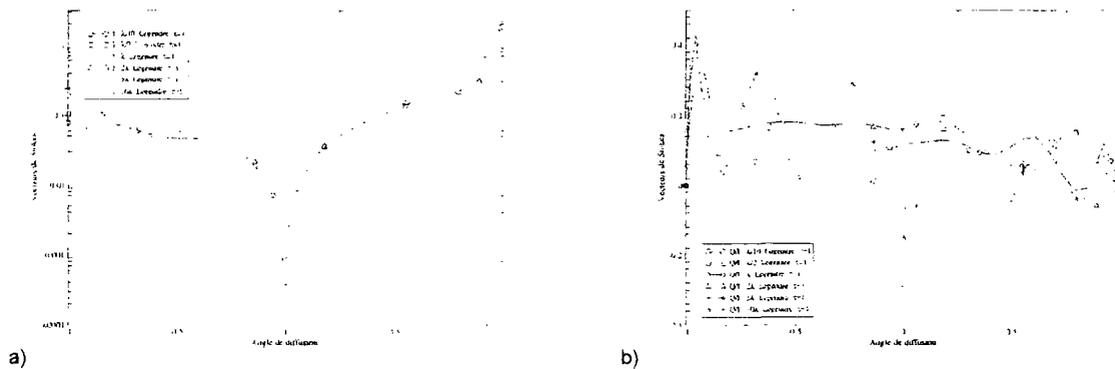


Figure 3 – a) et b)  $Q/I$  du vecteur de Stokes diffusé en fonction de la taille des diffuseurs sphériques.

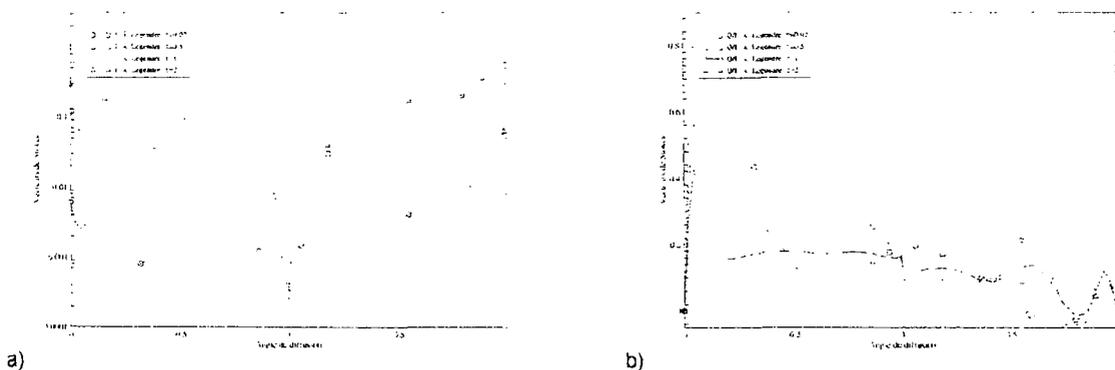


Figure 4 – a) et b)  $Q/I$  du vecteur de Stokes diffusé en fonction de l'épaisseur optique  $\tau$  du milieu.

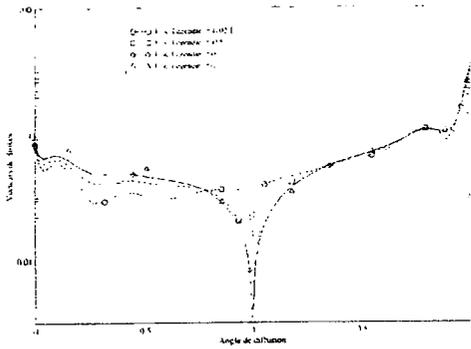


Figure 5 – Normalisation de  $I$  pour différentes épaisseurs optiques.

Le premier élément du vecteur de Stokes  $I$  est peu sensible à la variation de la granulométrie pour un  $\tau$  donné (Figure 3a) contrairement au second paramètre  $Q/I$  (Figure 3b). En revanche, on constate un comportement inverse lorsque l'épaisseur optique augmente. Le niveau global de  $I$  est corrélé avec  $\omega$ . Après normalisation,  $I$  semble peu sensible à la variation de l'épaisseur optique, surtout pour la partie transmise (Figure 5). Pour un  $\tau$  devenant important (supérieur à l'unité),  $Q/I$  est inversement proportionnel à  $\tau$  et tend vers zéro (Figure 4b). Pour de faibles épaisseurs optiques, on retrouve bien en  $I$  la fonction de phase initiale. La dépolarisation est accentuée lorsque  $\tau$  augmente puisque la diffusion multiple devient prépondérante dans le milieu.

#### 4. Stratégie future d'inversion

A terme, METROPOL doit être intégré dans le module d'optimisation PARADOXE (PARAMètres RADiatifs par Optimisation de données eXPérimentales d'Echantillons). Les fonctions de phase  $F_{ij}(\theta)$  et les grandeurs  $\tau$  et  $\omega$  seront tronquées pour limiter l'influence des fonctions présentant un pic vers l'avant trop prononcé. La paramétrisation tient compte de cet artifice mathématique. La matrice de Mueller  $M^*$  est donc entrée sous forme de paramètres (polynômes de Legendre, fonction d'Henry Greenstein, polynômes de degré  $n...$ ). Pour retrouver les paramètres d'intérêt, on les optimise suivant le schéma de principe suivant :

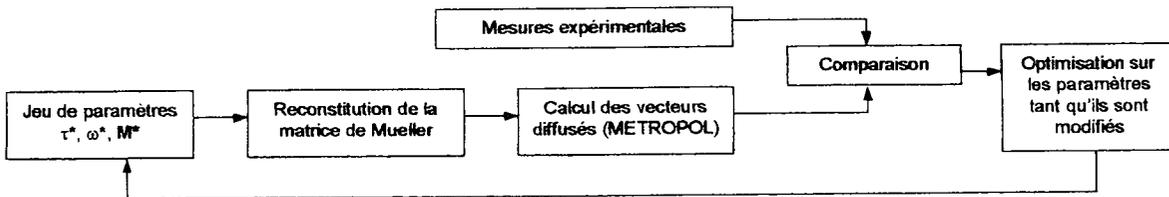


Figure 6 – Principe de fonctionnement de PARADOXE.

#### 5. Banc de mesure MELOPEE

L'ensemble des outils numériques (direct ou inverse) et les concepts associés sont validés à l'aide d'un banc expérimental MELOPEE (Moyen Expérimental en Optique Polarisée d'Etude d'Echantillons). La mesure de la diffusion de la lumière polarisée est effectuée *in-situ* sur ce nouveau banc polyvalent et automatisé. Le passage à la polarisation est développé selon deux axes. Une première voie utilise la polarisation croisée pour évaluer des réflectances (BRDF) et des transmittances (BTDF) polarisées. Une deuxième voie permet de moduler la polarisation (rotation du vecteur polarisation) et de déterminer la matrice de Mueller caractérisant le milieu et le vecteur de Stokes diffusé (Figure 7).

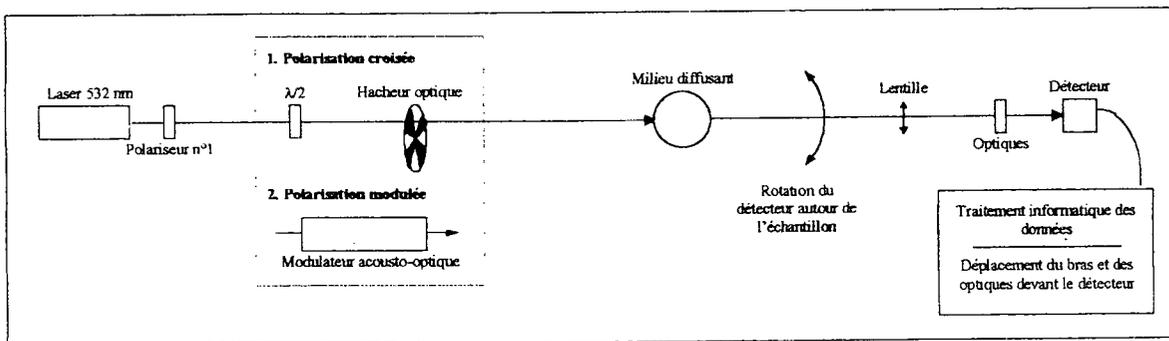


Figure 7 – Banc de mesure MELOPEE.

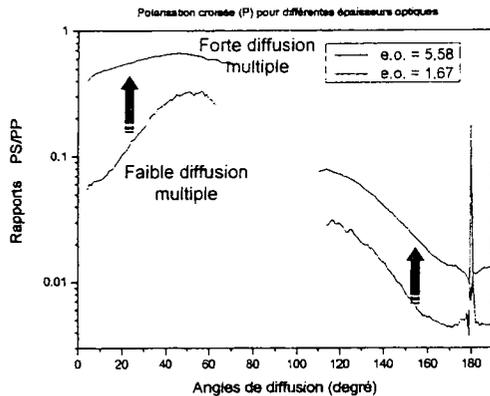


Figure 8 – Etude en fonction de l'épaisseur optique (e.o.) de particules de latex ( $0,5 \mu\text{m}$ ).

Pour la polarisation croisée, on éclaire le milieu diffusant avec un vecteur polarisation bien défini (e.g. P). Il est fixé par le polariseur numéro 1. La lame  $\lambda/2$  permet la rotation du vecteur de la polarisation P à la polarisation S. Deux mesures sont nécessaires pour déterminer la dépolarisation de la lumière lors la traversée du milieu : un polariseur dichroïque situé devant le détecteur subit une rotation de  $90^\circ$  autour de son axe. On mesure donc le flux issu de la diffusion par les particules en polarisation P et S. Le rapport de ces deux signaux nous donne une information sur le taux de dépolarisation du milieu (Figure 8) en plus de nous fournir les BRDF/BTDF polarisées de l'échantillon. La deuxième voie module la polarisation du faisceau incident à la fréquence  $f$  (Kuilk, 1991). Les optiques placées devant le détecteur sont une lame quart d'onde et un analyseur.

Suivant la valeur de leur rotation et/ou leur présence, on obtient les différentes composantes de la matrice de diffusion  $P_{ij}$ . Cette voie est actuellement en phase de validation et devrait être fonctionnelle dans les mois à venir. Elle validera alors le concept de la mesure du vecteur diffusé et de la matrice de Mueller d'un milieu en optique polarisée.

## 6. Conclusion

Le code METROPOL 1D, utilisé pour déterminer les paramètres radiatifs d'intérêt, sera intégré dans le module d'optimisation PARADOXE. Le code Monte Carlo MC3D traitant des géométries diverses permet de valider METROPOL lorsque l'indice du milieu est discontinu. MC3D permet aussi de générer des modèles instrumentaux pour le banc de mesure MELOPEE. L'inconvénient de MC3D réside dans les temps de calcul qui sont trop importants pour une utilisation en inverse du code. La paramétrisation de METROPOL est une étape nécessaire avant son passage dans le module PARADOXE. Le développement du banc MELOPEE sera poursuivi puis celui-ci sera validé et étalonné. L'étude de milieux de référence et de matériaux à densité optique variable sera par la suite réalisée et devra permettre la validation des concepts proposés.

## 7. Références

- Coulson, K.L., Dave, J.V. and Sekera, Z. (1960) Tables related to radiation emerging from a planetary atmosphere with Rayleigh scattering, University of California press Berkeley.
- HespeL, L. and Delfour, A. (2000) Mie light scattering granulometer with adaptive numerical filtering, I. Theory, Applied Optics, **39**(36), pp. 6897-6917.
- HespeL, L., Delfour, A. and Guillaume, B. (2001) Mie light-scattering granulometer with an adaptive numerical filtering method, II. Experiments, Applied Optics, **40**(6), pp. 974-985.
- Kuilk, F., Stammes, P. and Hovenier, J.W. (1991) Experimental determination of scattering matrices of water droplets and quartz particles, Applied Optics, **30**(33), pp. 4872-4881.
- O'Brien, D.M. (2001) Numerical calculation of the transfer of polarized radiation by a scattering and absorbing atmosphere, CSIRO Atmospheric Research Technical Paper, **49**.
- Siewert, C.E. (2000) A discrete-ordinates solution for radiative-transfer models that include polarization effects, Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer, **64**, pp. 227-254.
- Stokes, G.G. (1852) On the composition and resolution of streams of polarized light from different sources, Trans. Camb. Philos. Soc., **9**, 399.
- Van de Hulst, H.C. (1980) Multiple light scattering. Tables, formulas, and applications, Academic Press, San Diego.

# CINEMATIQUE DE NANOPARTICULES CHARGÉES EN CHAMP AC ET DC DANS DES ELETROPRECIPITATEURS PLAN-PLAN AVEC ET SANS DECHARGE ELECTRIQUE

N. Jidenko\*, J.-P. Borra

*Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas (CNRS –Univ. Paris XI)*

*Equipe Décharges Electriques et Environnement, SUPELEC 91111 Gif sur Yvette*

nicolas.jidenko@pgp.u-psud.fr    jp.borra@pgp.u-psud.fr

## TITLE

Kinematics of charged nanoparticles in AC and DC field in plane-plane electro-precipitators with or without discharge

## ABSTRACT

Plane to plane configurations with or without dielectric barriers on the metallic electrodes are used to investigate AC electric precipitation. Charged submicronic particles of controlled electrical mobility are injected between the planes separated by 1 mm. The flow regime is laminar. The collection efficiency is calculated from concentration measurement for different voltages. Below air ionisation threshold (without discharge), experimental and theoretical collection efficiencies are consistent. Above air ionisation threshold with dielectric barriers, discharge current and collection efficiency increase with frequency and voltage related to the number of microdischarges per second and per surface unit. This study intends to check the influence of surface polarisation by microdischarges development on the collection of charged particles. Comparison between theory of collection in homogeneous AC field without microdischarge on the one hand, and measured collection efficiency with microdischarges on the other hand, proves that surface polarisation by microdischarges does not improve the collection efficiency, but enables either an increase of charge by ions repulsion from the surface, whatever the frequency is or an improved mixing at 60 kHz.

## RESUME

Des électroprécipitateurs plan-plan avec ou sans barrières diélectriques sur les électrodes métalliques sont utilisés pour étudier la précipitation électrique AC. Des particules submicroniques de mobilité électrique contrôlée sont injectées entre les plaques espacées de 1 mm. L'écoulement est laminaire. L'efficacité de collection est calculée à partir des mesures de concentration pour différentes tensions. En dessous du seuil d'ionisation de l'air (sans décharge), les efficacités de collection expérimentales et théoriques sont similaires. Au-dessus du seuil d'ionisation de l'air avec barrières diélectriques, le courant de décharge et l'efficacité de collection augmentent avec le nombre de microdécharges par unité de temps et de surface (contrôlé par la fréquence et la tension). Cette étude a pour but d'établir l'influence de la polarisation des surfaces induite par le développement de microdécharges sur la collection de particules chargées. La comparaison entre les efficacités de collection obtenues par un modèle en champ homogène AC sans microdécharge d'une part et les efficacités de collection mesurées en présence de microdécharges d'autre part, montre que la polarisation induite par les microdécharges n'améliore pas l'efficacité de collection, mais permet soit une augmentation de la charge des particules par répulsion d'ions de la surface quelle que soit la fréquence, soit une amélioration du mélange à 60 kilohertz.

## 1. Introduction

Les décharges à barrières diélectriques (DBD) en géométrie plan-plan sont couramment utilisées pour le traitement de gaz ou de surface. Dans l'air à pression atmosphérique, les décharges produisent un plasma froid sous la forme de filaments fins ( $d \sim 100 \mu\text{m}$ ) et rapides ( $\sim 20 \text{ ns}$ ) appelés microdécharges [1-3]. Les DBD produisent des ions et des espèces chimiques réactives et sont un outil de choix pour produire ou conditionner les aérosols : dépôt de couches minces [4] ou de nanotubes [5] ou filtration [6]. Dans ces applications, la charge et le transport des aérosols sont couplés [7]. Les particules sont chargées par collection d'ions gazeux. Les deux mécanismes de charge par champ et par diffusion sont impliqués. Une fois chargées, les particules peuvent alors être collectées dans le réacteur via le champ électrique.

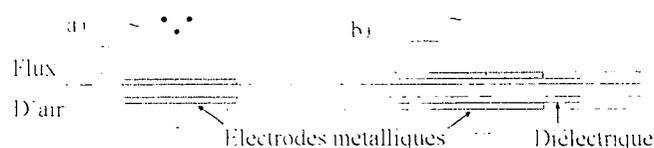
Cette étude porte sur la collection de particules chargées dans des électroprécipitateurs (ESP) plan-plan métalliques ou à barrières diélectriques polarisés en AC et DC dans l'air à pression atmosphérique. L'espace inter-électrodes est fixé à 1 mm. Avec des électrodes métalliques, l'ionisation du gaz conduit à l'arc qui ne rentre pas dans le cadre de cette étude. Dans le cas des ESP à barrières diélectriques (BD), il est possible d'ioniser le gaz en produisant des décharges filamenteuses dans l'espace inter-diélectrique sans passer à l'arc. Les ions ainsi produits ont des mobilités de l'ordre de  $10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  et ne sont pas entièrement collectés sur les surfaces diélectriques dans la gamme de fréquences utilisées (1 et 60 kHz). Le but est de caractériser l'influence sur la collection des particules selon (i) l'intensité et de la fréquence de polarisation avec et sans BD et (ii) le développement de décharges filamenteuses avec BD (notamment l'influence des ions en volume et des charges déposées sur les surfaces produits par les filaments).

En injectant des particules de mobilité contrôlée en régime laminaire, l'efficacité de collection est mesurée en fonction de la tension. Avec des électrodes métalliques, la polarisation est soit continue (DC) soit alternative (AC). Avec barrière diélectrique, la polarisation est uniquement AC.

Un modèle permet d'évaluer les efficacités de collection sans décharge. Le modèle utilisé tient compte des forces électriques et d'entraînement et du profil de vitesse parabolique du gaz dans le réacteur. Pour des particules submicroniques à température ambiante la thermophorèse et la gravité sont négligées. Le régime étant laminaire, les efficacités de collection sont supposées proportionnelles à la tension. Après la validation du modèle de collection en champ DC et AC, la comparaison entre les efficacités de collection théorique en champ homogène AC sans microdischarge d'une part et les efficacités de collection mesurées en présence de microdischarges d'autre part, d'établir l'influence de la polarisation des surfaces induite par le développement de microdischarges sur la collection de particules chargées.

## 2. Dispositif expérimental

Les deux électroprécipitateurs (ESP) avec et sans barrière diélectrique sont représentés sur la Figure 1. Pour l'ESP métallique, les électrodes en laiton mesurent  $1 \cdot 3 \text{ cm}$  et sont espacées de  $d=1 \text{ mm}$ . Pour l'ESP à barrière diélectrique, des électrodes similaires sont recouvertes de plaques d'alumine espacées de  $d=1 \text{ mm}$ . La polarisation des ESP est réalisée grâce à des alimentations DC ou AC sinusoïdale de 1 kHz ou 60 kHz.



**Figure 1: Schémas des précipitateurs a) électrodes métalliques b) avec barrières diélectriques**

Un nébuliseur ( $0,05 \text{ g NaCl/L}$ ) associé à un sécheur par diffusion permet de générer un aérosol unimodal de sel centré sur  $40 \text{ nm}$ . Un sélectionneur de mobilité (SMPS) permet de sélectionner une seule mobilité ( $5,4 \cdot 10^{-7}$ ,  $2,5 \cdot 10^{-7}$ ,  $9,4 \cdot 10^{-8}$  ou  $5,4 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ) : mobilités de particules monochargées de  $20 \text{ nm}$ ,  $30 \text{ nm}$ ,  $50 \text{ nm}$  et  $70 \text{ nm}$ . La vitesse du gaz dans le réacteur est fixée à  $1,33 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  (temps de résidence  $22 \text{ ms}$ ). Peu de particules sont multi chargées. Une mobilité de  $2,4 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  correspond à 95 % de particules de  $30 \text{ nm}$  monochargées et 5 % de particules de  $43,3 \text{ nm}$  doublement chargées.

La concentration de particules est mesurée par un compteur à noyau de condensation. L'efficacité de collection est définie par  $100 \cdot (C_{\infty} - C_p) / C_{\infty}$  avec  $C_p$  et  $C_{\infty}$  les concentrations en sortie respectivement avec et sans tension appliquée. Les pertes par diffusion ne sont donc pas prises en compte dans le calcul de l'efficacité.

En champ AC homogène, une particule chargée oscille dans l'espace inter-électrodes. En fonction de sa position d'injection et de l'amplitude de son mouvement, la particule peut être collectée sur la surface supérieure ou inférieure, ou sortir du réacteur. Les particules déposées sont collectées pendant la première alternance de champ. Si l'amplitude du mouvement des particules est inférieure à  $d/2$ , seules les particules les plus proches des surfaces sont collectées. La résolution de la relation fondamentale de la dynamique (RFD) donne l'amplitude ( $z_p$ ) de l'oscillation des particules selon leur taille, leur charge et le champ électrique appliqué. Le temps de relaxation hydrodynamique de la particule (120 ns à 70 nm) étant très inférieur à l'inverse de la pulsation ( $1/\omega = 1/2 \cdot \pi \cdot F \sim 3 \mu s$  à 60 kHz) l'amplitude de l'oscillation peut s'exprimer en fonction de la mobilité  $\mu_p$ . L'efficacité de filtration est obtenue en intégrant le flux de particules entre  $-d/2$  et  $-d/2 + z_p$  et entre  $d/2 - z_p$  et  $d/2$  :

$$\eta = \frac{3}{2 \cdot d} \left[ z_p - \frac{d}{6} + \frac{4 \cdot (z_p - \frac{d}{2})^3}{3 \cdot d^2} \right] \quad \text{si } \frac{1}{2} z_p < d/2 \quad \text{avec } \frac{1}{2} z_p = \frac{\mu_p \cdot E}{2 \cdot \pi \cdot F} = \frac{\mu_p \cdot V}{2 \cdot \pi \cdot F \cdot d}$$

$$\eta = 1 \quad \text{si } \frac{1}{2} z_p > d/2$$

### 3. Résultats

#### 3.1. Validation du profil de vitesse en DC:

La Figure 2 représente l'efficacité de collection selon la tension appliquée dans le précipitateur métallique en DC pour des particules de sel monochargées de diamètre 30nm ( $\mu_p = 2,5 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  Figure 2a) et 70 nm ( $\mu_p = 2,5 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  Figure 2b). La relation théorique décrivant l'évolution de l'efficacité de filtration n'est pas donnée mais elle est représentée par les courbes en traits pleins.

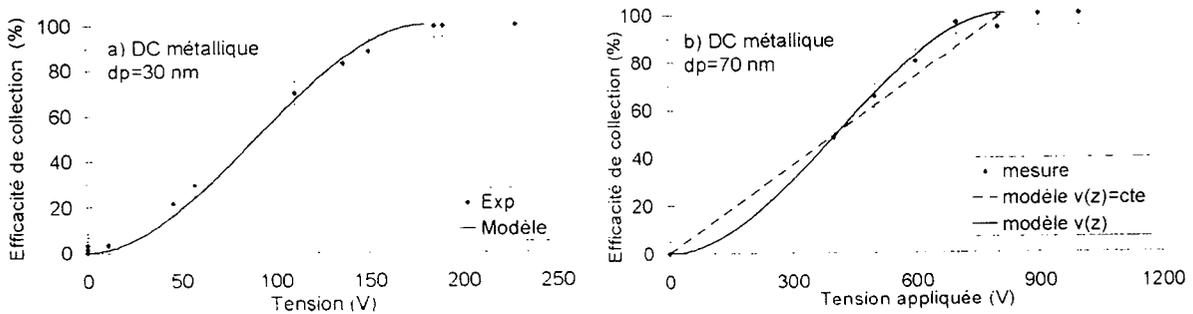
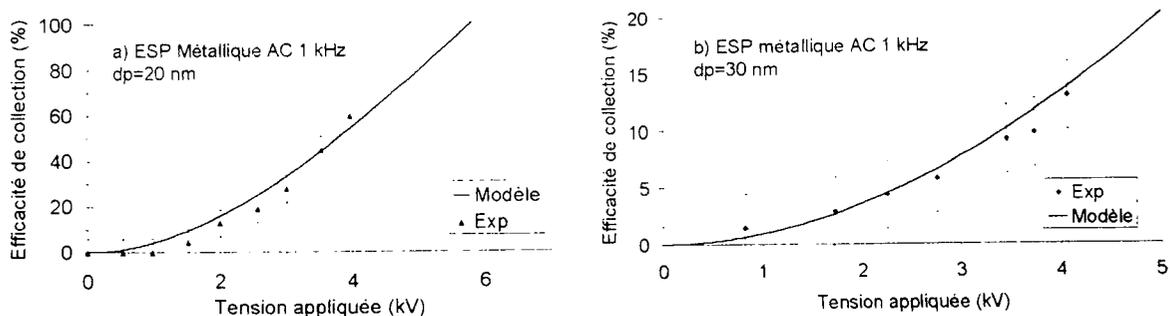


Figure 2: Efficacité de collection selon la tension appliquée dans un ESP DC métallique a)  $\mu_p = 2,5 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  b)  $\mu_p = 2,5 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$

Les valeurs calculées et mesurées sont en bon accord. La prise en compte du profil de vitesse dans le réacteur est nécessaire (cf. Figure 2 b).

#### 3.2. Confirmation du modèle de collection en champ AC homogène sans décharge

La Figure 3 représente l'efficacité de collection selon la tension appliquée dans le précipitateur métallique pour des particules de sel monochargées de diamètre 20nm (a) et 30nm (b). Les courbes en traits pleins correspondent à l'efficacité de filtration théorique.



**Figure 3: Efficacité de collection selon la tension AC dans un ESP métallique a)  $d_p=20$  nm b)  $d_p=30$  nm**

Les points expérimentaux sont très proches de la courbe théorique, le modèle AC est donc validé.

La différence d'évolution des efficacités DC et AC s'explique car, le flux de particules est plus important au centre du réacteur. Or la collection des particules au centre nécessite une tension plus importante en AC, d'où l'évolution en  $V^3$  de l'efficacité de collection en fonction de la tension. Les efficacités de filtration à 60 kHz étant trop faibles elles ne sont pas présentées.

### 3.3. Comparaison des résultats avec décharges et du modèle sans décharge

Le but est de caractériser l'efficacité de collection des particules initialement chargées (dont la charge évolue peu, cf. ci-dessus) selon (i) la tension et la fréquence (ii) le développement des décharges filamenteuses et leur dépôt de charge. L'espace inter-électrodes est fixé à 1 mm et le débit de gaz à  $0,8 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ . La collection est caractérisée à deux fréquences 1 et 60 kHz. A 60 kHz, l'élévation de température est contrôlée par refroidissement externe ( $T_e < 50^\circ\text{C}$ ) afin de limiter la thermophorèse.

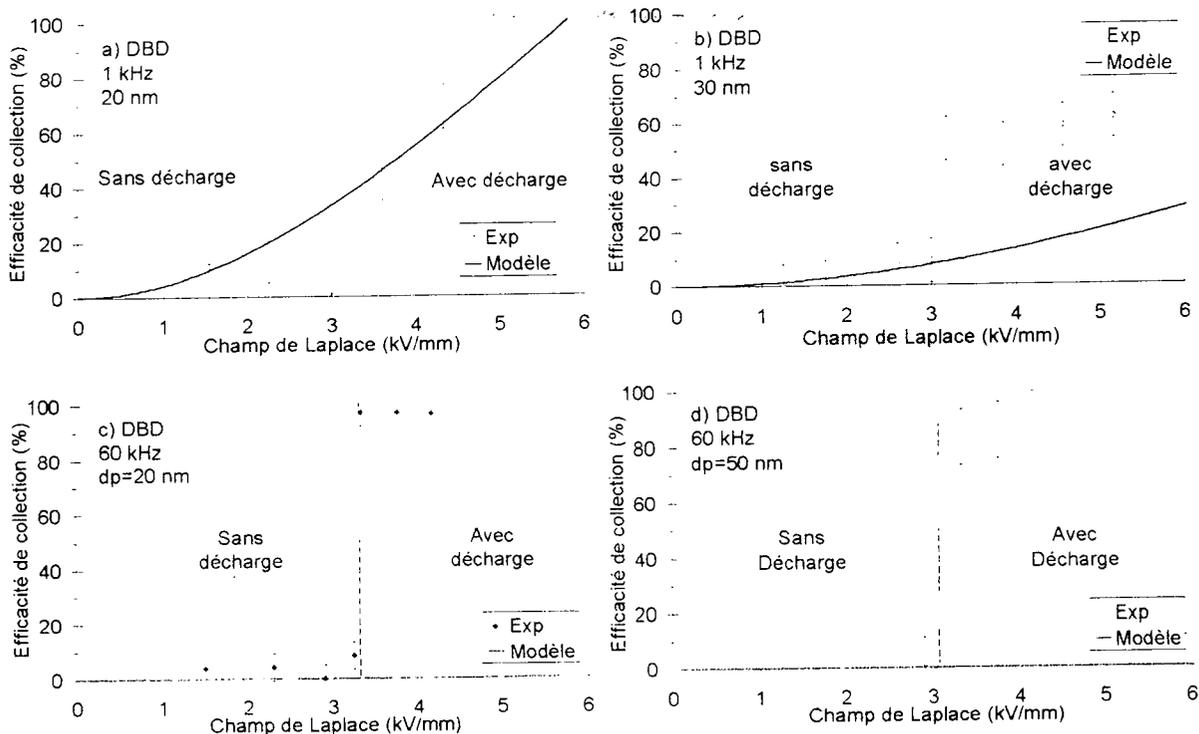
La Figure 4 représente les efficacités de collection en fonction du champ de Laplace (champ électrique homogène du à la tension appliquée, c'est à dire sans prendre en compte l'influence des dépôts de charges dus aux microdécharges) à 1 kHz pour des particules de 20 nm (a) et 30 nm (b) et à 60 kHz 20 nm (c) et 50 nm (d).

En deçà de la tension d'ionisation (à gauche des traits pointillés verticaux), le modèle s'applique également au DBD plan-plan fonctionnant sans décharge. Cela confirme qu'en l'absence de microdécharges, les diélectriques sont polarisés uniquement par la tension appliquée (sans dépôt de charge des microdécharges). En l'absence de décharge, la collection des particules chargées diminue donc avec l'augmentation de la fréquence de polarisation relative à la diminution du temps de dérive des particules jusqu'aux surfaces.

Au-delà de la tension d'ionisation (à droite des traits pointillés verticaux), on distingue.

- A 1 kHz pour des particules monochargées de 20 nm, les efficacités théoriques en champ homogène et mesurées sont similaires à 10% près. Il semble donc que les dépôts de charges et les brusques variations de champ dans l'axe des microdécharges n'affectent pas l'efficacité de collection. Ainsi pour une mobilité donnée l'efficacité de collection dépend uniquement du champ de Laplace. Ce résultat est primordial, car appliqué à la filtration (injection de particules neutres) il peut permettre de calculer la mobilité théorique moyenne des particules, pour une efficacité de filtration mesurée permettant ainsi l'évaluation des conditions de charges des particules en termes de  $n_i \cdot \tau$  moyen selon les condition de décharge (nombre de décharge par unité de temps et de surface et charge par microdécharge).

Pour des particules de 30 ou 50 nm, l'efficacité de filtration augmente en présence de microdécharges. Aux vues de la similitude des résultats et du modèle pour des particules de 20 nm monochargées, on peut conclure qu'elles restent monochargées. Ainsi, pour expliquer l'augmentation d'efficacité de collection pour les particule de 30 et 50 nm, seule l'augmentation de la mobilité des particules peut être considérée et conduit aux estimations de charge moyenne suivantes:  $1,8 e^-$  à 30nm et  $2 e^-$  à 50 nm. Certaines particules acquièrent donc des charges supplémentaires.



**Figure 4 : Efficacité de collection selon la tension de Laplace à 1 kHz a)  $d_p=20$  nm b)  $d_p=30$  nm et à 60 kHz c)  $d_p=20$  nm d)  $d_p=50$  nm**

- A 60 kHz, les efficacités de collection sont  $10^3$  fois plus importantes que les efficacités calculées en champ homogène.

Quatre processus peuvent être impliqués dans l'amélioration de l'efficacité de collection:

- A haute fréquence, la densité d'ions dans le gaz et le nombre de charge par particule qui en résulte sont plus importants. Toutefois, dans cette gamme de taille l'augmentation du nombre de charge est limitée et ne permet pas d'expliquer les augmentations d'efficacités mesurées à 60 kHz.
- Les microdécharges peuvent induire un vent électrique et des turbulences dus au déplacement des ions [8-9]. Ces turbulences modifient le profil d'écoulement du gaz et peuvent homogénéiser la répartition des particules. Ainsi, des particules initialement en dehors des volumes de collection peuvent être transportées dans le volume de collection propre à leur mobilité améliorant ainsi l'efficacité de collection.
- Les charges déposées sur les surfaces par les filaments peuvent freiner et accélérer les particules chargées et faciliter leur collection. Les fortes hétérogénéités de champ électrique et leurs brusques variations peuvent ralentir les particules et/ou ramener les particules dans les volumes de collection.
- Enfin, les forces thermophorétiques peuvent être impliquées. En effet, après extinction de la décharge, la concentration de particules augmente jusqu'à sa valeur initiale. A 1 kHz, la concentration remonte en moins d'une minute, mais à 60 kHz il faut plusieurs minutes. Cela permet d'affirmer que la température (seule variable modifiée après l'extinction) est critique pour l'efficacité de filtration à 60 KHz. Les forces thermophorétiques, soit dans le réacteur, soit dans les tubes de sortie, peuvent expliquer une part de l'augmentation d'efficacité observée. Toutefois, les gradients de température dans les tubes sont trop faibles ( $< 10 \text{ K.mm}^{-1}$ ) pour induire des pertes supérieures à 20%.

Même si les températures moyennes de gaz en sortie sont inférieures à  $50^\circ\text{C}$  et que la surface est plus chaude que le gaz, il existe des gradients thermiques importants sur les diélectriques: la température aux pieds des microdécharges est très supérieure à la température moyenne. Il peut exister des pertes par thermophorèse dans le réacteur mais l'évaluation de ces pertes est délicate en raison des variations du profil de température entre la surface à température moyenne et le gaz qui s'échauffe pendant son transit dans le réacteur.

#### 4. Conclusions

En deçà du champ seuil d'ionisation de l'air, nécessaire au développement des microdécharges et quelle que soit la polarisation DC ou AC, les efficacités théoriques et mesurées augmentent (i) avec la mobilité des particules, quel que soit le champ électrique (ii) avec l'intensité du champ électrique et (iii) avec la réduction de fréquence relative à l'augmentation du temps de dérive des particules. Les efficacités de collection théoriques et mesurées sont identiques, ce qui confirme que la collection est uniquement le résultat d'une compétition entre les forces électriques et les forces d'entraînement.

Au delà du champ seuil d'ionisation (c'est-à-dire en présence de microdécharges), le courant de décharge et les efficacités de collection augmentent avec le nombre de microdécharges par unité de temps et de surface contrôlées par la tension et la fréquence.

Les résultats semblent indiquer qu'il est possible de décrire les efficacités de collection à 1 kHz en négligeant les modifications locales de champ électrique induites par la polarisation de surface aux pieds des microdécharges filamenteuses (c'est-à-dire en supposant une évolution purement sinusoïdale du champ électrique). En effet, pour des particules monochargées de 20 nm à des fréquences inférieures à 1 kHz, les efficacités de collection théoriques et mesurées sont similaires, les microdécharges ne semblent pas avoir d'incidence majeure sur la charge et la collection.

Cependant avec des particules plus grosses et même à 1 kHz, les microdécharges améliorent l'efficacité de collection. Il s'agit vraisemblablement d'un effet de charge. Les particules déjà chargées peuvent acquérir des charges supplémentaires par collection d'ions gazeux créés par les microdécharges et non collectés en raison de la présence des dépôts de charge sur les surfaces. L'augmentation de la mobilité électrique se traduit par une probabilité de collection plus grande.

L'influence des microdécharges sur la collection des particules (quelle que soit leur taille) est encore plus marquée à haute fréquence. Quatre processus peuvent expliquer l'amélioration des efficacités de collection à haute fréquence. Le nombre de charge par particule peut augmenter de façon plus notable qu'à faible fréquence car le nombre d'ions disponibles par particule augmente. Toutefois, la charge ne permet pas, à elle seule, de rendre compte des efficacités de collection mesurées. Les turbulences induites par le développement des microdécharges peuvent entraîner un effet de mélange des particules favorable à la collection des particules les plus éloignées des surfaces. Les forces électrostatiques induites par les dépôts de charge des particules peuvent modifier la trajectoire des particules favorisant leur collection. Enfin, les forces thermophorétiques liés aux gradients de température induits par les microdécharges peuvent également être favorables à la collection des particules.

Ces observations confirment la compétition entre la collection et l'extraction des particules dans les applications associant décharges filamenteuses et aérosol. Ces résultats peuvent donc être appliqués au dépôt de couches minces par collection de nanoparticules produites par interaction plasma-gaz en volume ou au contrôle des particules produites par interaction plasma-surface.

#### REFERENCES

- [1] Kogelschatz U, Eliasson B and Egli W 1999 From ozone generators to flat television screens: history and future potential of dielectric-barrier discharges *Pure Appl. Chem.* Vol 71 No10 1819-1828
- [2] Wagner H-E, Brandenburg R, Kozlov K V and Michel P 2001 *J. Phys. D: Appl. Phys.* 34 3164-3176
- [3] Gibalov V. and Pietsch 2000 The development of dielectric barrier discharges in gas gaps and on surfaces *J. Phys. D: Appl. Phys* 33 2618-2636
- [4] Massines F and Gouda G 1998 *J. Phys D. Appl. Phys.* 31 3411-3420
- [5] Nozaki T., Okazaki K., Kortshagen U. and Heberlein J. GEC 2003 San Francisco
- [6] Parker K.R. 1997 *Applied electrostatic precipitation*; Edition Parker
- [7] Yoo K H et al. 1997 Charging and collection of submicron particles in two-stage parallel plate electrostatic precipitators *Aerosol science and technology* 27 308-323
- [8] Goldman M and Goldman A., 1978 Corona discharges in *Gaseous Electronics I*, Ed Hirsh M N Vol 89b 119-166
- [9] Blanchard D. and Atten P., 2001 Thèse de l'université Joseph Fourier, « Collecte des particules et caractérisation des couches de poussière dans un précipitateur électrostatique »

# ETUDE DE LA MISE EN SUSPENSION DE PARTICULES PAR CHUTE DE POUDRE

M. Jacquelin \* (1,2), E. Gehin (2) et F. Gensdarmes (1)

(1) Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire/Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, B.P 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

(2) Centre d'Etudes et de Recherches en Thermique, Environnement et Système, Université Paris XII, 61 av. du Général de Gaulle, 94010 Créteil cedex, France.

E-mail : marjorie.jacquelin@irsn.fr

## Title

Study of airborne particles generated by free falling powder.

## Abstract

This study comes within the general framework of the studies and research on the safety of the facilities. Nuclear industry, in particular the laboratories and factories of the fuel cycle, handles great quantities of radioactive materials in divided form (powders). The safety analyses of non-reactor nuclear facilities need data on resuspension in order to estimate the potential sources of airborne contamination. There are very few reliable data in the literature on resuspension factor for particles released in case of a scenario with an accidental free fall spill of powder.

The aim of this study is to determine the different mechanisms involved in the airborne particle generation under conditions of falling powder. In order to determine the main parameters that affect significantly these mechanisms, first experiments are developed on the effect of the falling mass, the kind of powder and the impaction surface (water or solid surface).

## Résumé

Cette étude s'inscrit dans le cadre général des études et recherches sur la sûreté des installations. L'industrie nucléaire, notamment les laboratoires et usines du cycle du combustible, manipule de grandes quantités de matières radioactives sous forme divisée (poudres). Les analyses de sûreté des installations nucléaires nécessitent des données sur la mise en suspension afin d'estimer l'impact des sources potentielles de contamination. Il y a très peu de données dans la littérature sur le facteur de mise en suspension pour le dégagement de particules dans le cas d'un scénario de chute accidentelle de poudre.

Le but de cette étude est de déterminer les différents mécanismes impliqués dans la génération de particules dans des conditions de chute de poudre. Afin de déterminer les principaux paramètres qui affectent de manière significative ces mécanismes, les premières expériences sont développées sur l'effet de la masse, de la nature de la poudre et de la surface d'impact (réceptif d'eau ou surface plane).

## I. Introduction

L'évaluation de la mise en suspension se fait par l'utilisation de coefficients de mise en suspension déterminés expérimentalement. La mise en suspension intéresse les liquides et les solides. Dans le cas des solides, la mise en suspension peut se produire par exemple par écoulement d'air sur un tas de poudre ou par chute de matière. Ce dernier scénario de mise en suspension a été peu étudié jusqu'à nos jours. Les études existantes ne permettent pas systématiquement de fournir des données directement utilisables pour les situations industrielles, notamment du fait des échelles de grandeur. Par ailleurs, dans le cas de la chute de poudre, les mécanismes conduisant à la mise en suspension sont divers : frottement de l'air, compression de l'écoulement, fluidisation, impact au sol, ... Le phénomène à étudier est donc complexe. A l'heure actuelle la mise en suspension est évaluée en utilisant des coefficients issus d'études expérimentales spécifiques, qui ne sont pas toujours représentatives des situations industrielles actuelles (Sutter *et al.*, 1982 ; Heitbrink *et al.*, 1992). Certaines études ont conduit à des corrélations empiriques (Plinke *et al.*, 1991 ; Ballinger *et al.*, 1988 ; Cowherd *et al.*, 1989) mais celles-ci ne sont valables que pour les produits testés et les conditions dans lesquelles ont été réalisées les expériences. Plus récemment, des travaux ont été réalisés par l'IRSN et serviront d'expériences de référence (Gensdarmes *et al.*, 2003).

Les poudres sont des matériaux dits divisés car elles sont composées d'une multitude de particules solides. Cette particularité confère aux poudres certaines propriétés qui sont dues à la fois aux particules (niveau microscopique) mais aussi à la poudre elle-même (niveau macroscopique) (Fayed et Otten, 1997). De plus, les poudres ont des propriétés issues des trois états de la matière ; en effet une poudre résiste dans une certaine mesure à l'écrasement comme les solides, elle peut s'écouler comme les liquides et elle peut être compressée comme les gaz.

Une poudre peut être mise en suspension sous la forme d'un nuage de particules, cela devient donc un aérosol qui est principalement caractérisé par sa distribution granulométrique (Renoux et Boulaud, 1998), c'est-à-dire un diamètre médian ( $d_{50}$ ) et un écart-type géométrique ( $\sigma_g$ ) caractérisant l'étendue de la distribution granulométrique.

La mise en suspension d'une poudre résulte de la compétition entre des forces d'attraction et des forces de séparation agissant sur une particule ou un ensemble de particules (Seville *et al.*, 2000 ; Israelachvili, 1991). Il y a divers types de forces d'attraction entre des matériaux solides. Parmi celles-ci, on retrouve des forces impliquées dans les phénomènes de cohésion des poudres telles que la force de Van der Waals, les forces de cohésion, les forces électrostatiques, les forces de capillarité et la force de gravité. Les forces de séparation intervenant dans la mise en suspension peuvent être d'origine aérodynamique telles que les forces de traînée et de portance qui sont dues à l'action d'un écoulement d'air sur les particules. On trouve aussi parmi les forces de séparation les forces électrostatiques et les forces résultant de l'impact (choc, transfert de quantité de mouvement).

Le phénomène de mise en suspension induit une notion de transfert quand les particules sont transportées et maintenues dans l'air par de petits tourbillons provenant de l'écoulement, sur des distances plus ou moins longues. Dans la littérature, la quantité de matière mise en suspension est exprimée en termes de coefficients de mise en suspension. Dans notre cas, pour la chute de poudre, le principal coefficient utilisé pour quantifier la mise en suspension est la fraction mise en suspension  $K_{MES}$ , définie par le rapport entre la quantité de matière mise en suspension ( $\Delta m$ ) et la quantité initiale chutant ( $m_0$ ) ; elle s'exprime par :

$$K_{MES} = \frac{\Delta m}{m_0}$$

Il y a peu d'études dans la littérature traitant de la mise en suspension par chute de poudre. Celles-ci sont délicates à comparer car, comme le montre le tableau 1, les conditions expérimentales ainsi que les coefficients utilisés sont multiples et très différents d'une étude à l'autre.

Tableau 1 : Synthèse des différentes études.

Auteurs	Type de poudres	Paramètres étudiés	Coefficient mesuré
Sutter <i>et al.</i> , 1982	TiO <sub>2</sub> et UO <sub>2</sub> appauvri	Teneur en eau, débit de matière et hauteur de chute (1 et 3 m), masse (25 à 1000 g)	$K_{MES}$
Cowherd <i>et al.</i> , 1989	14 poudres différentes	Teneur en eau, distribution granulométrique, masse volumique tassée et angle de repos de la poudre, hauteur fixe (0,25 m)	$\Delta m$
Plinke <i>et al.</i> , 1991	Ciment, farine, sable et calcaire	Teneur en eau, hauteur de chute (0,25 à 1,5 m), débit de matière (0,1 à 10 kg/s)	$K_{MES}$
Heitbrink <i>et al.</i> , 1992	2 poudres d'Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Hauteur de chute (0,3 à 1,5 m), diamètre de la fuite et surface d'impaction, masse (12 à 200 g)	Concentration de particules en nombre
Gensdarmes <i>et al.</i> , 2003	Billes de verre	Masse de poudre (10 à 250 g), hauteur de chute (1,4 et 3 m) et type de prélèvement	$K_{MES}$

## II. Démarche expérimentale

La démarche que nous avons adoptée pour la réalisation de la première série d'expériences a été de tester certains des paramètres recensés dans la littérature pour pouvoir apprécier les effets de ceux-ci sur la mise en suspension dans nos conditions expérimentales. Pour cela, nous avons tout d'abord réalisé les différentes expériences en faisant varier la masse initiale de poudre, la nature de la poudre et la surface d'impaction sur deux niveaux. Ceci nous a permis d'élaborer un premier plan d'expériences.

### III. Dispositif expérimental et méthodes de mesure

Les différentes expériences menées visent à déterminer les fractions mises en suspension. Pour cela, on cherche à collecter l'ensemble des particules mises en suspension lors de la chute de poudre. Ces expériences sont réalisées dans l'enceinte expérimentale représentée figure 1 et font intervenir différentes techniques de mesure que nous allons détailler.

L'installation utilisée pour réaliser les expériences de mise en suspension est une enceinte rectangulaire close de hauteur égale à 1,42 m dont la base a une aire de 0,65 m<sup>2</sup> (0,83x0,78 m<sup>2</sup>), le volume utile étant égal à 0,92 m<sup>3</sup>.

Cette enceinte est équipée sur sa face supérieure d'un système permettant le versement de la poudre, composé d'un entonnoir dont l'ouverture de 15 mm de diamètre est obturée à sa base par une languette amovible. Dans cette étude, les écoulements durent quelques secondes avec des débits massiques compris entre 12 et 17 g/s.

De plus, deux surfaces d'impact (surface solide et récipient d'eau) sont utilisées afin de pouvoir séparer les particules mises en suspension par l'arrachement depuis la colonne de poudre pendant l'écoulement de celles entraînées au moment de l'impact au sol. En effet, l'utilisation d'un récipient d'eau permet d'éliminer en grande partie l'effet de l'impact sur la mise en suspension des particules.

Les poudres utilisées (alumine SPM 71 et billes de verre) pour les premières expériences ont été choisies d'après leurs caractéristiques géométriques (méthode Coulter - Multisizer II) et leurs distributions granulométriques relativement proches (figure 2).

Billes de verre : particules sphériques dont les caractéristiques granulométriques sont :  $d_{ev50}$  en volume = 29,8  $\mu\text{m}$  ;  $\sigma_g = 1,50$  et  $\rho_{\text{matériau}} = 2,5 \text{ g/cm}^3$ .

Alumine : particules irrégulières dont les caractéristiques granulométriques sont :  $d_{ev50}$  en volume = 31,6  $\mu\text{m}$  ;  $\sigma_g = 1,43$  et  $\rho_{\text{matériau}} = 3,9 \text{ g/cm}^3$ .



Figure 1: Photo de l'enceinte expérimentale.

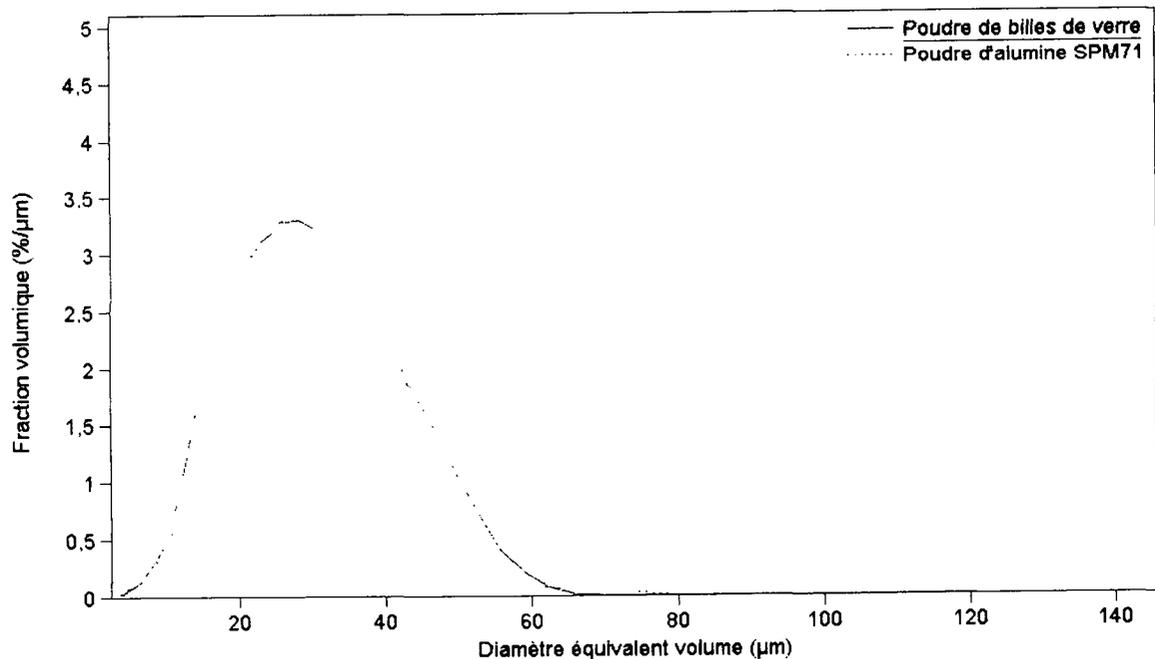


Figure 2 : Granulométries des poudres utilisées.

La collecte de la totalité des particules mises en suspension s'effectue à l'aide d'un préleveur à grand débit sur lequel est placé un filtre de diamètre 142 mm et ceci dans un intervalle de temps

aussi court que possible. Le prélèvement est déclenché 30 s après l'ouverture de l'entonnoir. L'axe du préleveur est placé horizontalement à une hauteur de 20 cm par rapport au bas de l'enceinte. Les paramètres de prélèvement pour les filtres utilisés sont : un débit de prélèvement de 230 l/min (soit 13,8 m<sup>3</sup>/h), un taux de renouvellement de l'enceinte de 15,02 h<sup>-1</sup> et un temps de prélèvement fixé à 23 min (le temps nécessaire pour prélever 99% de la masse d'aérosols initialement présents est égal à 18,4 min).

Par la suite, la masse mise en suspension ainsi récupérée est déterminée par pesées différentielles du filtre de prélèvement. Les distributions granulométriques sont ensuite déterminées par la méthode Coulter permettant de mesurer le diamètre équivalent en volume ( $d_{ev}$ ) des particules d'un échantillon.

En parallèle du prélèvement, nous utilisons un compteur optique de particules Grimm qui mesure en quasi-temps réel la concentration numérique de l'aérosol sur différentes classes granulométriques (de 0,3 à 20  $\mu$ m) avec un temps d'intégration de 6 s. Cette mesure nous permet de suivre l'évolution de l'aérosol dans l'enceinte.

#### IV. Résultats expérimentaux et discussion

Les résultats que nous présentons sur les figures 3 et 4 sont ceux obtenus lors des premières expériences durant lesquelles trois paramètres ont été étudiés. Nous avons pu ainsi voir l'effet de la masse, de la surface d'impaction et de la nature de la poudre sur la mise en suspension par la détermination des fractions mises en suspension pour chacune des expériences. Pour chaque série, les expériences ont été réalisées trois fois dans les mêmes conditions.

La figure 3 présente les fractions mises en suspension ( $K_{MES}$ ) en fonction des masses de poudre que nous avons comparées à celles obtenues par Gensdarmes *et al.* lors d'expériences effectuées dans la même enceinte en 2003 avec des billes de verre de même granulométrie chutant sur une surface plane.

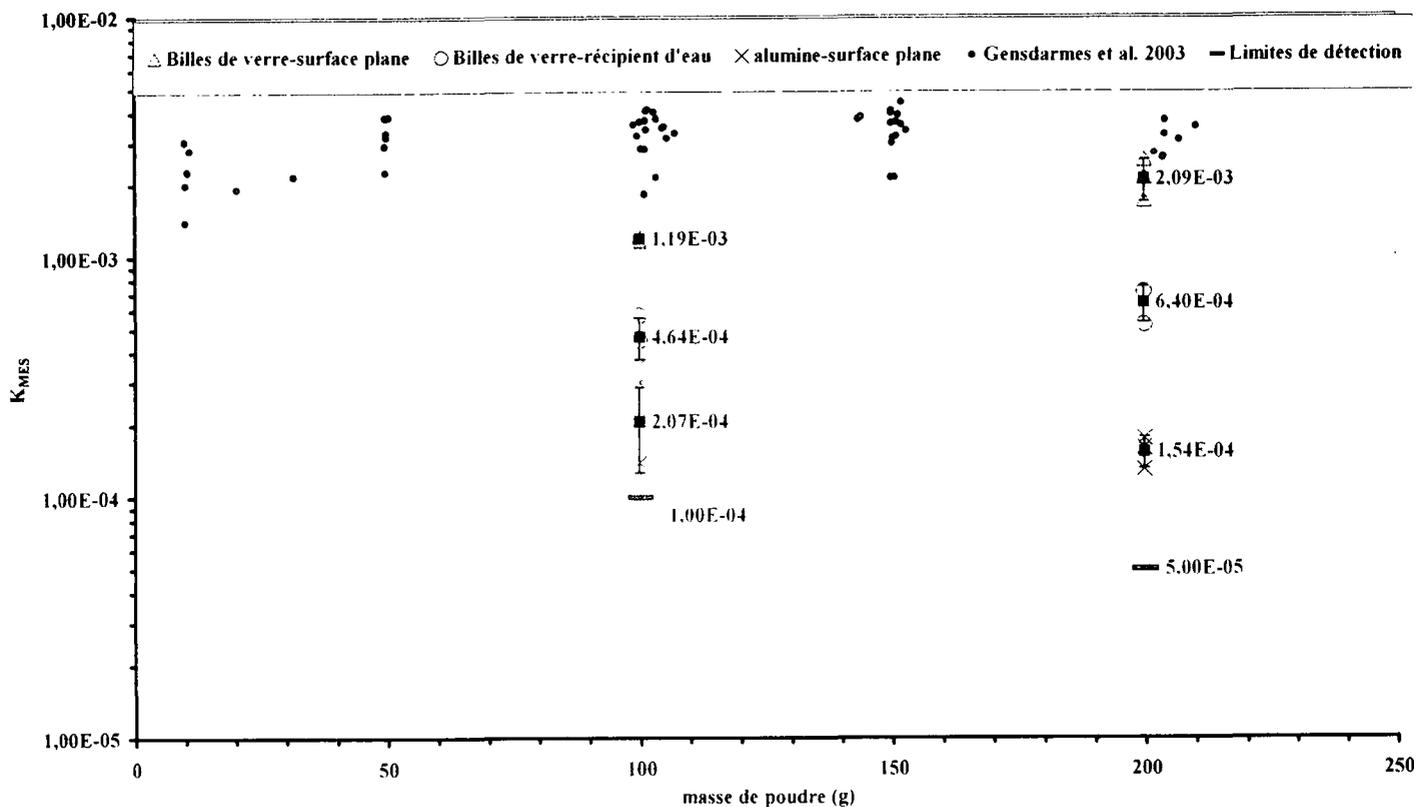


Figure 3 : Comparaison des fractions mises en suspension pour les 2 poudres.

La figure 3 présente les résultats des expériences réalisées pour deux masses de poudre de billes de verre (100 et 200 grammes) et deux surfaces d'impact (surface solide et récipient d'eau). La valeur moyenne pour chacune des séries est aussi représentée ainsi que la variation associée, égale à un écart-type. Les fractions mises en suspension ( $K_{MES}$ ) obtenues dans le cas des chutes de 100 et 200 grammes d'alumine sur une surface solide sont aussi représentées sur cette même figure.

Pour la chute de poudre de billes de verre sur une surface plane, on constate que la masse semble avoir un effet légèrement positif sur le  $K_{MES}$  ; on constate que pour une augmentation de la masse d'un facteur 2, on obtient pour le  $K_{MES}$  des facteurs compris entre 1,4 et 1,8. En revanche, on observe pour la poudre d'alumine une tendance inverse de la masse sur le  $K_{MES}$ . Dans ce cas, le coefficient diminue d'un facteur 1,3 lorsqu'on fait chuter une masse de poudre plus importante.

La surface d'impact semble avoir un effet non négligeable. Comme on peut le voir sur la figure 3, le fait de placer un récipient d'eau réduit le  $K_{MES}$  d'un facteur 2,6 pour une masse de 100 g et d'un facteur 3,3 pour une masse de 200 g. La présence d'un récipient d'eau au niveau de l'impact nous permet de pouvoir discriminer la mise en suspension due à la dispersion de particules durant la chute de celle due à l'impact, en éliminant en grande partie l'effet de ce dernier. Ce système est en cours de validation. D'après les valeurs obtenues, la dispersion au cours de la chute représente entre 31% (pour une masse de 200 g) et 39% (pour une masse de 100 g) de la masse mise en suspension.

Nous pouvons aussi constater que les fractions mises en suspension pour la poudre d'alumine sont inférieures d'un ordre de grandeur à celles obtenues, dans les mêmes conditions (masse et surface d'impaction identiques), pour la poudre de billes de verre. Ces différences observées pour la poudre d'alumine peuvent être dues à la forme irrégulière des particules, mais également à un effet de la densité des particules qui influence leur sédimentation dans l'enceinte. En effet, les particules d'alumine et les billes de verre n'ont pas le même comportement aérodynamique car, bien qu'ayant des diamètres équivalents en volume quasiment identiques (respectivement 31,6 et 29,8  $\mu\text{m}$ ), leurs diamètres aérodynamiques ne sont pas égaux du fait à la fois de leurs densités (3,9 et 2,5  $\text{g}/\text{cm}^3$ ) et de la forme des particules. Dans la littérature (Mark *et al.*, 1985 ; Witschger *et al.*, 2002), on trouve pour l'alumine des facteurs de forme dynamiques compris entre 1 et 1,5 et pour les billes de verre le facteur de forme dynamique est pris égal à 1. Cela conduit à des valeurs de diamètres aérodynamiques de 47,1  $\mu\text{m}$  pour les billes de verre et entre 51,0 et 62,4  $\mu\text{m}$  pour l'alumine.

La figure 3 montre que les  $K_{MES}$  que nous obtenons sont légèrement inférieurs à ceux obtenus par Gensdarmes *et al.*, ceci peut être dû aux conditions de prélèvement utilisées (temps d'attente avant le prélèvement et débit). En effet, dans leur étude Gensdarmes *et al.* effectuaient leurs prélèvements 15 s après le début de la chute et à un débit de 350 l/min. Ces différences peuvent avoir un effet non négligeable sur la masse collectée du fait notamment de la sédimentation des particules et du taux de renouvellement d'air de l'enceinte.

La figure 4 rassemble les mesures de distributions granulométriques effectuées pour les différentes expériences. Les mesures de granulométries obtenues pour l'aérosol collecté sur le filtre de prélèvement dans les différentes conditions expérimentales sont comparées à la distribution de la poudre initiale.

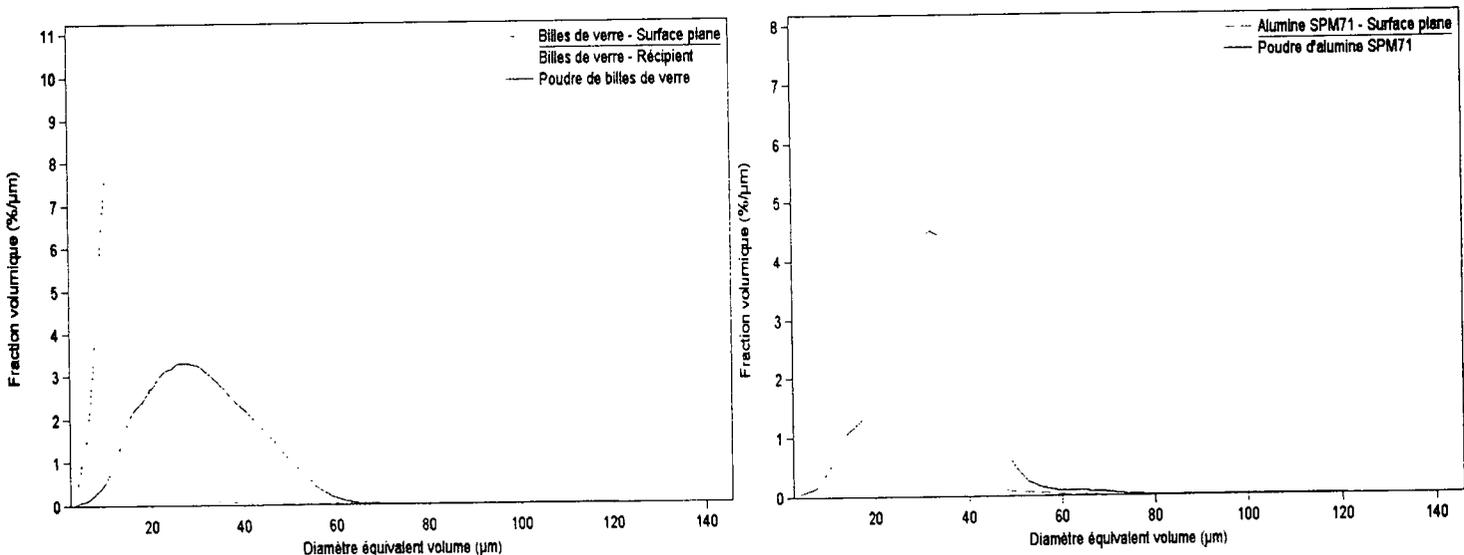


Figure 4 : Comparaison des granulométries de la poudre et de l'aérosol collecté pour les 2 poudres.

Pour les mesures de granulométries présentées sur la figure 4, on observe que les particules mises en suspension ont des granulométries bien différentes de celles des poudres dont elles sont issues. Les caractéristiques sont rassemblées dans le tableau 2.

Tableau 2 : Caractéristiques granulométriques des différentes poudres et aérosols collectés.

Caractéristiques	Billes de verre			Alumine SPM 71	
	Poudre initiale	Surface plane	Récipient d'eau	Poudre initiale	Surface plane
D <sub>ev</sub> médian en volume (µm)	29,8	13,3	13,9	31,6	11,7
Écart-type géométrique	1,50	1,41	1,70	1,43	1,73

## V. Conclusion

La revue bibliographique menée dans le cadre de cette étude a permis d'avoir une vision d'ensemble sur les études traitant de la mise en suspension. Il est important de noter le peu d'études réalisées sur le sujet, ainsi que la diversité des installations et des conditions expérimentales dans lesquelles ces études ont été réalisées. Ceci rend difficile la comparaison des résultats obtenus par les différents auteurs.

Les résultats expérimentaux obtenus jusqu'à maintenant mettent en évidence l'influence des premiers paramètres étudiés. Néanmoins, les tendances observées doivent être confirmées par des expériences complémentaires. Par ailleurs, différents paramètres restent encore à étudier (le diamètre de la fuite, le type de versement, le facteur de forme, la masse volumique, ...) afin de pouvoir estimer leur influence sur la mise en suspension. Pour cela, nous envisageons d'utiliser d'autres poudres et de faire varier les paramètres de prélèvement.

## VI. Références bibliographiques

- Ballinger M.Y., Buck J.W., Owczarski P.C. et Ayer J.E. (1988) Methods for describing airborne fractions of free fall spills of powders and liquids. *Pacific Northwest Laboratories, Richland, WA, NUREG/CR-4997, T188 0047796, 45 pages.*
- Cowherd C. Jr, Greninger M.A., Englehart P.J., Kent R.F. et Wong K.F. (1989) An apparatus and methodology for predicting the dustiness of materials. *Am.Ind.Hyg.Assoc.J.*, **50**, 123-130.
- Fayed M.E. et Otter L. (1997) handbook of powder science & technology. Second edition. *Ed. Chapman & Hall, New York.*
- Gensdarmes F., Vendel J., Witschger O. et Monnatte J. (2003) Etude de la mise en suspension d'une poudre de billes de verre polydispersées. Actes du 19<sup>ème</sup> Congrès Français sur les Aérosols, Paris, 68-73.
- Heitbrink W.A., Baron P.A et Willeke K. (1992) An investigation of dust generation by free falling powders. *Am.Ind.Hyg.Assoc.J.*, **53**, 617-624.
- Israelachvili J.N. (1991) Intermolecular & surface forces. *Ed. Academic Press, Londres.*
- Mark D., Vincent JH, Gibson H. et Witherspoon W.A. (1985) Applications of closely graded powders of fused alumina as test dusts for aerosol studies. *J. Aerosol Sci.*, **16**, 125-131.
- Plinke M.A.E., Leith D., Holstein D.B. et Boundy M.G. (1991) Experimental examination of the factors that affect dust generation. *Am.Ind.Hyg.Assoc.J.*, **52**, 521-528.
- Renoux A. et Boulaud D. (1998) Aérosols : physique et métrologie. *Ed. Lavoisier Tec & Doc, Paris.*
- Seville J.P.K., willett C.D. et Knight P.C. (2000) Interparticle forces in fluidisation : a review. *Powder Technology*, **113**, 261-268.
- Sutter S.L., Johnston J.W. et Mishima J. (1982) Investigation of accident –generated aerosols: releases from free fall spills. *Am.Ind.Hyg.Assoc.J.*, **43**, 540-544.
- Witschger O., Wrobel R., Fauvel S., Basso G. et Gensdarmes F. (2002) Détermination expérimentale de facteurs de forme dynamique par comparaison des techniques Coulter et impacteur en cascade. Actes du 18<sup>ème</sup> Congrès Français sur les Aérosols, Paris, 43-48.

# ETUDE EXPERIMENTALE DES CARACTERISTIQUES PHYSIQUES DES AEROSOLS DE COMBUSTION

F.X. Ouf (1,2), A. Coppalle (2), J. Vendel (1), M.E. Weill (2)

(1) *Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire  
DSU/SERAC*

*Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols  
BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex*

(2) *UMR 6614 CORIA*

*Site universitaire du Madrillet – Avenue de l'université BP 12  
76801 Saint Etienne du Rouvray Cedex*

*Coordonnées de l'auteur : téléphone : 33 (0)1 69 08 13 80, Fax : 33 (0)1 60 19 30 61  
E-mail : francois-xavier.ouf@irsn.fr*

## TITLE

Experimental study of physical properties of combustion aerosol

## ABSTRACT

Fire protection assessment is of major interest in industrial environments. As a result, smoke production is the object of growing attention and further investigation on soot particles properties is necessary. In this context, the present study deals with the experimental characterization of soot produced during a fire in a ventilated enclosure like a nuclear installation. In this assumption, the particles generated can have a double impact, the first one is on the filtration and the second one is on the fire propagation.

The aim of this study is to link the soot properties to the fire conditions and especially the influence of fuel and ventilation flow rate. As a consequence the size distribution, morphology, concentration and optical properties have been studied for three different fuels. We present here the ventilation flow rate and the type of fuel influences on the size distribution, concentration and morphology of the aerosol generated.

## RESUME

L'étude de la sûreté d'une installation face à des situations d'incendie représente un sujet majeur de préoccupation pour les industriels. Les fumées générées lors de ces incendies sont de plus en plus étudiées et un approfondissement des connaissances sur les particules de suie est nécessaire. Dans ce contexte, la présente étude vise à caractériser expérimentalement les particules de suie produites lors d'un incendie dans un local ventilé, local représentatif d'une installation nucléaire. Dans cette hypothèse, les particules générées peuvent présenter un double impact : le premier sur les organes de filtration présents dans les lignes de ventilation et le second sur la propagation de l'incendie.

L'objectif de cette étude est de lier les propriétés des suies aux conditions de l'incendie et tout particulièrement au type de combustible et aux conditions de ventilation. Pour cela la granulométrie, la morphologie, la concentration et les propriétés optiques ont été étudiées pour trois combustibles différents. Nous présentons ici l'influence du débit de ventilation et du type de combustible sur la granulométrie, la concentration et la morphologie des particules générées.

### 1. Contexte et objectifs de l'étude

Dans le cadre d'hypothétiques incendies dans les installations nucléaires, les particules de suie générées représentent à la fois le principal vecteur de propagation de l'incendie et le principal contaminant. Les dispositifs actuels permettant d'épurer ces particules sont des filtres dits à Très Haute Efficacité (THE). L'IRSN a conduit un programme d'étude sur le comportement de ces filtres en conditions réelles d'incendie. Les résultats ont souligné des différences de performances de filtration qui ont été attribuées à la nature des aérosols émis. En effet les caractéristiques des particules de suie générées dépendent directement du combustible et des conditions du feu. Jusqu'à présent, l'IRSN a développé un outil expérimental pour étudier

le comportement des filtres et cette installation permet une caractérisation de l'aérosol produit ainsi que de son évolution dans les gaines de ventilation.

Les objectifs visés sont d'étudier l'évolution des aérosols hors flammes, puis d'établir une corrélation entre les conditions environnementales de la combustion et les particules produites. Il s'agit tout particulièrement d'établir des classes de combustibles et de pouvoir prédire les propriétés physiques des aérosols issus de leur combustion. Pour cela, ces propriétés physiques : granulométrie, concentration, morphologie et propriétés optiques (coefficients d'extinction, diffusion, indice de réfraction) seront établies pour différents scénarii d'incendie. Afin de mener à bien cette étude nous utiliserons tout d'abord des "combustibles-référence" issus de la bibliographie qui permettront de valider notre installation. A la suite de cette validation nous pourrons alors considérer des combustibles plus "réalistes" tels le PMMA (PolyMethyl MethAcrylate) ou encore des mélanges de solvants. Sans prétendre apporter les réponses aux questions posées par le phénomène d'émission, le présent travail vise à fournir des connaissances supplémentaires sur des grands groupes de combustibles et à relier scénarii d'incendies et caractéristiques des suies.

## 2. Morphologie des particules de suie

Si les particules de suie rencontrées dans les procédés industriels ont été largement étudiées, peu de données ont été recueillies pour les situations accidentelles d'incendie. Avant d'aborder ce problème il convient cependant d'effectuer une brève description des particules en présence.

Les particules de suie, longtemps assimilées à des sphères, présentent en réalité des morphologies variées et complexes. L'analyse des clichés de microscopie électronique de particules de suie de divers combustibles confirme cette complexité (cf. figure 1).

Les particules de suie sont en réalité des agrégats de particules primaires, des sphérules de quelques dizaines de nanomètres de diamètre. La structure complexe de ces agrégats a longtemps rendu difficile leur étude, il a fallu attendre que le concept d'objet fractal soit introduit pour décrire leur morphologie. Le terme fractal n'est cependant pas totalement applicable aux particules de suie. En effet un objet fractal présente la même structure quelle que soit l'échelle ce qui n'est pas le cas des suies, il convient donc plutôt de qualifier ces particules d'objet quasi-fractal. La notion de fractalité des particules de suie rend compte de leur complexité ; ainsi on peut relier le nombre de particules primaires de l'agrégat  $N_p$  au rayon  $R_p$  de ces particules primaires par la relation suivante (Jullien et Botet, 1987) :

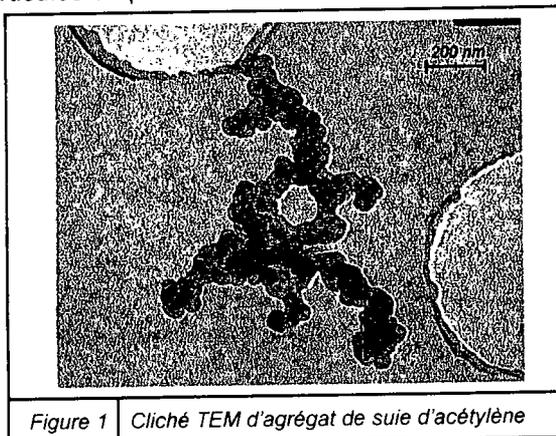


Figure 1 Cliché TEM d'agrégat de suie d'acétylène

$$N_p = k_f \left( \frac{R_g}{R_p} \right)^{D_f} \quad (2.1)$$

avec  $N_p$  : nombre de particules primaires dans l'agrégat  
 $R_g$  : rayon de giration de l'agrégat  
 $R_p$  : rayon des particules primaires  
 $k_f$  : préfacteur  
 $D_f$  : dimension fractale

Ces paramètres conditionnent les propriétés optiques des agrégats de suie. Nous reviendrons ainsi sur leur établissement dans le paragraphe 5.3.

A travers cette brève présentation de la nature des particules de suie on entrevoit toute la difficulté d'étudier ces particules, difficulté due tant aux conditions d'étude qui sont ici extrêmes qu'à la nature complexe des particules de suie. Nous présentons dans le chapitre suivant le dispositif expérimental et l'instrumentation sélectionnée pour cette étude.

## 3. Installation expérimentale

L'installation expérimentale, dénommée BANCO (BANc de COImatage), est composée d'un foyer d'environ  $1 \text{ m}^3$  surmonté d'une ligne de ventilation (Ouf et al, 2004). Les débits étudiés sont compris entre 50 et  $500 \text{ m}^3/\text{h}$  et quatre points de mesure permettent d'étudier l'évolution de l'aérosol produit dans le foyer.

L'instrumentation sélectionnée pour caractériser les aérosols de combustion vise essentiellement à déterminer la granulométrie et les niveaux de concentration des aérosols étudiés. Nous avons utilisé l'ELPI (Electrical Low Pressure Impactor) et le "SMPS" (Scanning Mobility Particle Sizer) qui sont deux granulomètres ainsi que le "TEOM" (Tapered Element Oscillating Microbalance) qui nous informe sur la concentration massique. Ces trois dispositifs sont couramment utilisés en métrologie des aérosols mais ne sont pas développés pour une utilisation en conditions extrêmes ; une dilution préalable des échantillons s'est donc imposée et le système de dilution commercial DEKATI FPS 4000 a retenu notre attention.

#### 4. Résultats de l'étude expérimentale : influence du combustible et des conditions de ventilation

Les premiers essais ont consisté en la validation de notre installation sur un combustible de référence. Ce combustible, l'acétylène et son brûleur associé sont issus des travaux de Sivathanu et Faeth (Sivathanu et Faeth, 1990). De même le toluène, combustible liquide issu de notre étude bibliographique, a été choisi comme transition entre l'acétylène, de combustion parfaitement maîtrisable, et un combustible plus réaliste mais moins contrôlable : le PMMA. Le travail a été orienté selon deux axes d'étude, l'influence de la nature du combustible et l'influence des conditions de ventilation du foyer. Chacun des trois combustibles a ainsi été étudié à quatre débits de ventilation, 100, 200, 300, 450 m<sup>3</sup>/h et l'ensemble de nos résultats expérimentaux ont été obtenus dans des conditions de sur-oxygénation par rapport aux conditions stœchiométriques. Nous présentons ici les résultats obtenus au cours de cette étude ainsi que l'analyse morphologique des particules de suie obtenues.

##### 4.1 Acétylène

###### 4.1.1 Granulométrie fonction du débit de ventilation

L'acétylène étant notre combustible de référence, nous avons débuté notre étude par sa caractérisation. Le brûleur utilisé génère une flamme de diffusion turbulente contrôlée par un débit de combustible imposé. L'intérêt majeur de ce type de flamme est de représenter un générateur quasi-reproductible de particules de suie et nous a permis de valider notre installation et son instrumentation associée. Nous présentons ici les résultats obtenus à environ 2 m de la flamme dans la zone de fumée. Sur la figure 2 sont représentées les granulométries obtenues à l'aide de l'ELPI et du SMPS pour les quatre débits de ventilation.

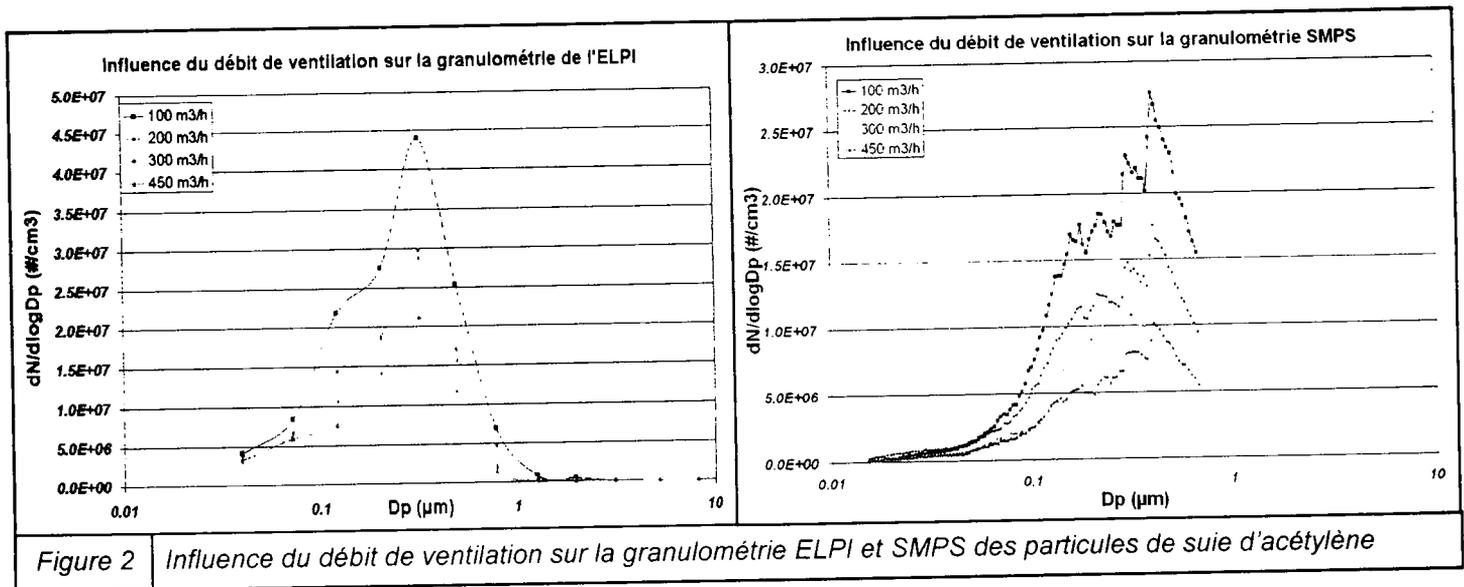


Figure 2 Influence du débit de ventilation sur la granulométrie ELPI et SMPS des particules de suie d'acétylène

Le mode principal de la granulométrie ne semble pas être affecté par le changement de débit de ventilation ; cependant on voit dans chacune des conditions de ventilation un second mode se superposant au mode principal et qui reste encore à ce jour à expliquer. Les premières voies d'explication peuvent être les phénomènes de condensation dus au temps de résidence des suies plus importants à faibles débits (petites vitesses dans la ligne) qu'à forts débits (grandes vitesses d'entraînement de l'aérosol) le second mode étant plus prononcé pour les faibles débits. Des essais, à l'aide d'un dispositif éliminant les condensats (thermodénuder) sont en cours et permettront d'infirmier ou de confirmer cette hypothèse.

#### 4.1.2 Evolution de la concentration

En parallèle des mesures granulométriques, des mesures de concentrations massique et en nombre sont menées lors de nos essais. Nous présentons ici une fois encore l'évolution de ces concentrations en fonction du débit de ventilation. En parallèle nous établissons la relation entre débit (massique et en nombre) de particules de suie produites et débit de ventilation. Ces deux évolutions sont présentées sur la figure 3.

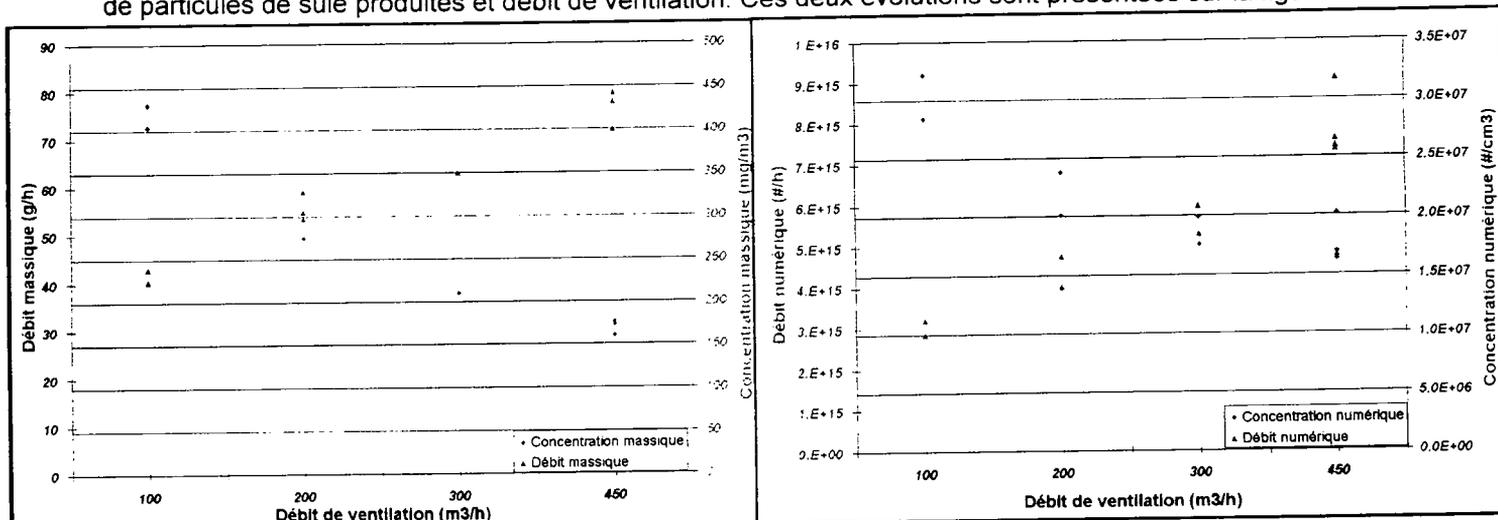


Figure 3 Influence du débit de ventilation sur la concentration et le débit massique et numérique de particules de suie

Les débits massique et numérique de production de particules de suie sont ici plus importants pour les forts débits de ventilation. Ce résultat est confirmé par l'évolution de la concentration en fonction du débit de ventilation qui n'est pas totalement linéaire. En effet d'après la littérature (Barakat et al, 1997), le débit de ventilation devrait logiquement agir comme une dilution impliquant une évolution linéaire de la concentration. La ventilation semble donc avoir un effet direct sur la production de particules de suie et des recherches sont actuellement menées afin d'expliquer ce phénomène.

#### 4.2 Toluène et PMMA

Afin de ne pas alourdir ce document nous présentons conjointement les résultats obtenus pour les deux combustibles que sont le toluène et le PMMA. Ici encore la granulométrie et la concentration des aérosols produits ont été étudiées en fonction du débit de ventilation. Le toluène, combustible liquide, est brûlé dans un récipient métallique et 400 ml de toluène sont nécessaires à chacun des essais. Le PMMA est quant à lui un combustible se présentant sous forme de granules et un kilogramme est utilisé par essai. Les granulométries obtenues à l'aide de l'ELPI pour le PMMA et le toluène sont présentées sur la figure 4.

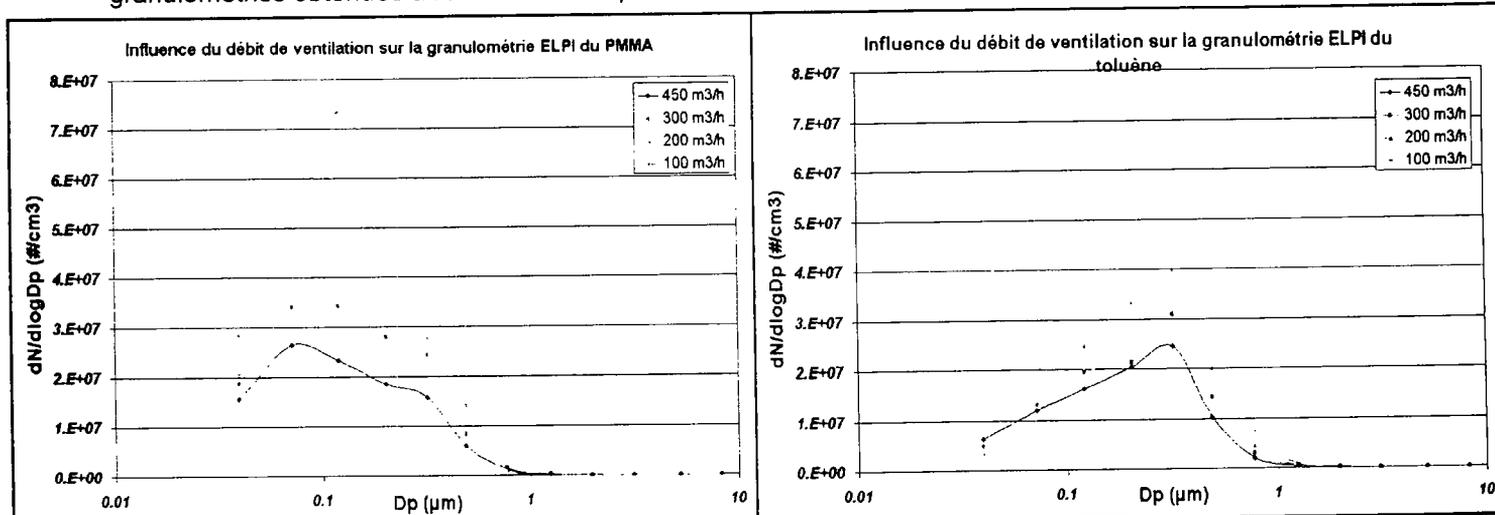


Figure 4 Influence du débit de ventilation sur les granulométries ELPI des particules de suie de PMMA et toluène

Une fois encore la ventilation ne semble pas modifier la position du mode sauf pour le PMMA à petit débit de ventilation. Cette fois encore deux distributions semblent se superposer avec pour le PMMA un second mode présent autour de 0,5 µm au-dessus du mode principal de 0,1 µm, tandis que le toluène

présente un mode principal proche de  $0,3 \mu\text{m}$  et un second mode centré sur  $0,1 \mu\text{m}$ . On peut donc supposer deux phénomènes différents d'évolution entre ces deux combustibles. Nous nous sommes intéressés à l'évolution de la concentration massique des particules de suies en fonction du débit et les résultats obtenus sont présentés sur la figure 5.

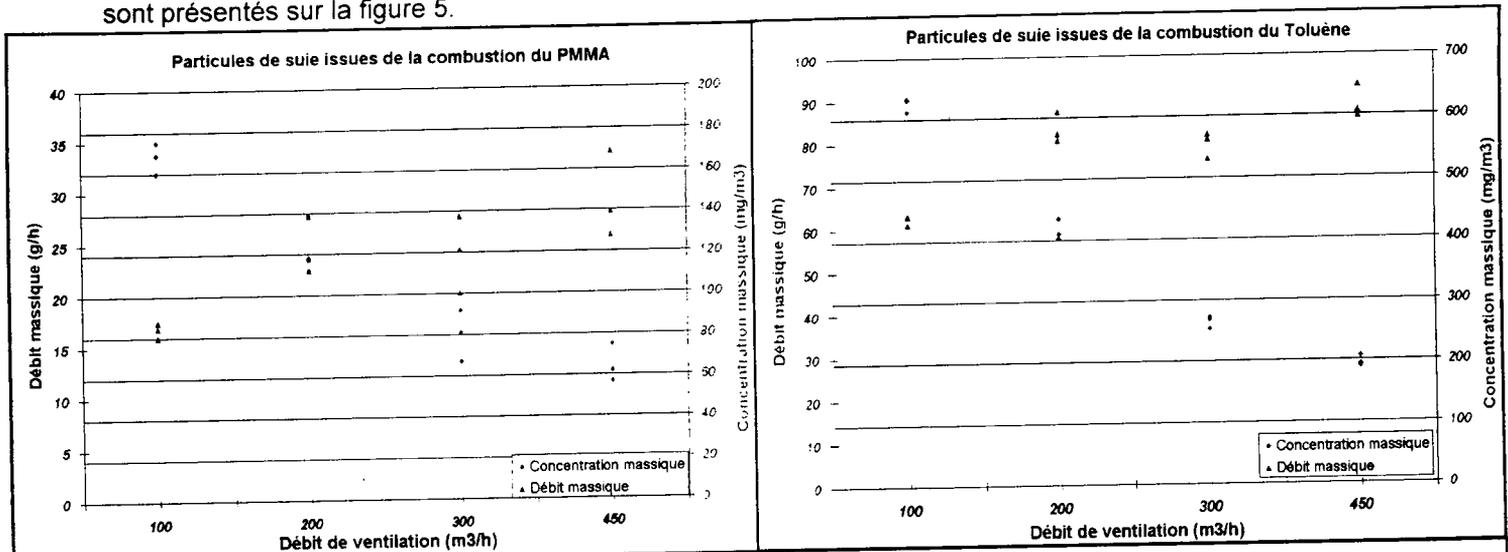


Figure 5 Influence du débit de ventilation sur la concentration et le débit massique de particules de suie PMMA et toluène

Les résultats concordent avec les résultats issus de l'étude de l'acétylène et une fois encore le débit de ventilation semble avoir un effet sur la production d'agrégats de suie.

### 4.3 Morphologie des particules de suie

Comme nous l'avons indiqué dans le paragraphe 2 les paramètres caractérisant la complexité des agrégats sont la dimension fractale et le préfacteur. Ces deux dimensions sont nécessaires à l'établissement des propriétés optiques des particules de suie et leur détermination passe par l'analyse des clichés de microscopie électronique (Hu et al, 2003). Nous décrivons ici rapidement le protocole et les résultats obtenus pour les trois combustibles précédemment cités. Le prélèvement s'effectue sur un filtre à orifices calibrés (nucléopore de  $0,8 \mu\text{m}$ ) qui est ensuite métallisé avant d'être dissous dans du chloroforme. Les agrégats sont alors déposés sur une grille de microscopie électronique. On effectue une cinquantaine de clichés d'agrégats afin de couvrir la gamme la plus représentative de morphologie de ces agrégats. Un logiciel de traitement des clichés permet ensuite de déterminer quatre des paramètres intervenant dans la relation 2.1. Ainsi, connaissant  $R_p$  (détermination directe sur les clichés) on peut déterminer tout d'abord  $N_p$  et  $R_g$ . L'établissement de la fonction  $\ln(N_p) = f(\ln(R_g/R_p))$  nous permet de déterminer  $\ln(k_f)$  et  $D_f$  respectivement ordonnée à l'origine et pente de la fonction linéaire ainsi établie. Un exemple de fonction est présenté sur la figure 6 et le tableau 1 synthétise les résultats issus de cette étude sur les trois combustibles étudiés.

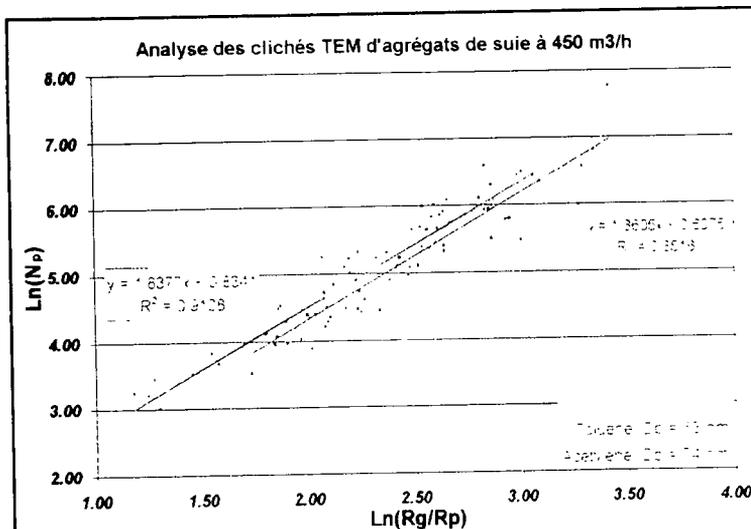


Figure 6 Analyse des clichés TEM d'agrégats de suie

Tableau 1	Tableau récapitulatif des données issues de l'étude		
Combustible	Acétylène	Toluène	PMMA
Débit de ventilation (m³/h)	450	450	450
Masse/volume ou débit de combustible	5.5 L/min	400 ml	1000 g
Température au point de prélèvement (°C)	50	50	100
Diamètre des particules primaires $D_p = 2 \cdot R_p$ (nm)	74	63	52
Moyenne géométrique du nombre de particules par agrégat $N_p$	130	198	202
Dimension fractale $D_f$	1.84	1.86	1.79
Préfacteur fractal $k_f$	2.3	1.83	2.59
Concentration massique (mg/m³)	160	190	60
Concentration numérique (particules/cm³)	1.60E+07	2.40E+07	1.90E+07
Efficacité de production de suies (kg suies/kg carbone consommé)	0.2	0.17	0.0125

Les résultats obtenus ici ont été comparés avec des données issues de la littérature. Les caractéristiques morphologiques (dimension fractale et préfacteur) des agrégats d'acétylène et de toluène sont assez proches des résultats obtenus lors des travaux de Koylu (Koylu et Faeth, 1992). Le principal point de disparité se situe au niveau des diamètres des particules primaires qui sont dans notre cas pour l'acétylène et le toluène une fois et demi plus grands que les diamètres issus de la littérature, cependant la morphologie des agrégats reste très proche.

L'efficacité de production (rapport entre masse de suie produite et masse de carbone consommé) de ces deux combustibles a été de même comparée à la bibliographie et on relève moins de 6 % d'écart avec les données de Koylu prises comme référence. La comparaison avec la littérature est cependant beaucoup plus limitée pour les granulométries. Il en est de même pour le PMMA où quasiment aucune information n'est disponible.

## **Conclusion et perspectives**

Ce travail se place dans le cadre des études de sûreté incendie pour lesquelles l'établissement des propriétés physiques des particules de suie générées lors des incendies est nécessaire à la compréhension des conséquences de ces situations accidentelles. Dans cette étude, trois combustibles différents ont été étudiés (gazeux, liquide, solide). Les résultats montrent le caractère sub-micronique et le caractère fractal des agrégats générés. La dimension fractale est proche de 1,8 et ce quel que soit le combustible. Cette dimension fractale, inférieure à 2, représente bien la morphologie complexe de ces particules qui sont loin d'être parfaitement sphériques (pour une sphère  $D_f = 3$ ). Il convient de plus de noter une bonne cohérence des résultats de ce travail avec les données issues de la littérature.

L'influence du débit de ventilation sur la granulométrie semble assez mineure ; cependant la présence d'un second mode pour chaque condition de ventilation reste encore à expliquer. En parallèle les mesures effectuées sur les concentrations et débits de particules de suie ont fait apparaître une concentration d'agrégats plus importante lorsque le débit de ventilation augmente.

La suite de cette étude portera sur trois axes de recherche. Tout d'abord des essais seront menés à environ six mètres du foyer afin d'étudier l'influence du temps de résidence des particules dans la conduite de ventilation. Le travail s'orientera ensuite sur l'impact de la concentration en oxygène de l'air d'alimentation du foyer sur les propriétés des agrégats de suie. En parallèle de ces deux axes d'étude la détermination des propriétés optiques des particules à l'aide d'un banc expérimental et d'une méthode d'inversion (Van-hulle, 2001) sera effectuée pour chacun des combustibles et des conditions d'incendie. Les distributions granulométriques et la morphologie des particules de suie seront alors utilisées afin de déterminer l'indice de réfraction à deux longueurs d'onde.

## **Références bibliographique**

- BARAKAT M., SOUIL J.M., BREILLAT C., VANTELON J.P. (1997) Propriétés d'extinction des fumées produites par le fioul domestique en combustion vive, *Rev. Gén. Therm.*, **36**, 415-432
- JULLIEN R., BOTET R. (1987) *Aggregation and fractal aggregates*, ISBN 9971-50-248-8
- KOYLU U.O., FAETH G.M. (1992) Structure of Overfire Soot in Buoyant Turbulent Diffusion Flames at Long Residence Times, *Combust. Flame*, **89**, 140-156
- HU B., YANG B., KOYLU U.O., (2003) Soot Measurements at the Axis of an Ethylene/air Non-premixed Turbulent Jet Flame, *Combust. Flame*, **134**, 93-106
- OUF F.X., COPPALLE A., VENDEL J., WEILL M.E. (2004), Characterization of Combustion Aerosol in a Ventilated Enclosure: Influence of Fire Conditions, *J. Aerosol Sci.*, **35 (SII)**, 817-818
- SIVATHANU Y.R., FAETH G.M. (1990) Soot Volume Fractions in the Overfire Region of Turbulent Diffusion Flames, *Combust. Flame*, **81**, 133-149
- VAN-HULLE P. (2001) Caractérisation des aérosols émis par la combustion des hydrocarbures : application à la mesure de l'indice de réfraction des suies *Thèse de doctorat, Université de ROUEN*

## Etude de la rétention des aérosols par une paroi en béton fissurée

T. Gelain, F. Gensdarmes, C. Motzkus, J. Vendel.

Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire  
Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement  
BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex.  
thomas.gelain@irsn.fr

### TITLE

Experimental study on aerosol penetration through cracked concrete wall.

### ABSTRACT

Within the framework of the safety assessment of the nuclear fuel facilities, we investigate the leakage of a reinforced concrete wall, cracked by shear stresses characteristic of a seism. The purpose of this study is to measure the retention of the aerosol particles in a cracks network formed by shear stresses. The measurement are carried out for upstream and downstream pressure drops ranging from 10 to 200 hPa, which are representative of the wind effect or the fire risk onto a building.

We study retention for 0.15 to 4  $\mu\text{m}$  aerosol diameters (flow velocity  $v < 1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ) to study different deposition laws.

The preliminary results show that 3 phenomena exist, brownian diffusion (for the 1 $\mu\text{m}$  aerosol diameter), sedimentation and inertial impaction.

We compared three correlations, describing these phenomena, with the experimental results ; these correlations describe the experimental results evolutions, but we have to correct them to calculate exactly the same results.

### RÉSUMÉ

Dans le cadre de l'évaluation de la sûreté des laboratoires et usines du domaine nucléaire, nous étudions l'étanchéité de voiles en béton armé fissurés par des contraintes de cisaillement caractéristiques d'un séisme. Pour cela, nous mesurons les débits de gaz et la rétention des particules dans les fissures du béton pour des différences de pressions amont - aval comprises entre 10 hPa et 200 hPa représentant d'une part, l'effet du vent sur un bâtiment, d'autre part, le risque incendie dans une installation.

L'objectif général de ce travail est de valider un modèle de calcul de la rétention des aérosols par des fissures dans des parois en béton.

La rétention est étudiée pour des diamètres d'aérosols égaux à 0,15, 1 et 4  $\mu\text{m}$ , ce qui permet d'étudier le cas d'un aérosol "pénétrant" (par analogie avec la filtration) et le cas d'un aérosol dont l'évolution est dominée par l'inertie des particules.

Les résultats pour les diamètres égaux à 1  $\mu\text{m}$  et 4  $\mu\text{m}$  montrent que trois phénomènes interviennent, la diffusion (pour le cas 1 $\mu\text{m}$ ), la sédimentation et l'inertie.

Pour ces trois phénomènes, nous avons utilisé des corrélations de la littérature pour les comparer à nos résultats expérimentaux.

Ces corrélations décrivent correctement l'évolution des résultats expérimentaux, mais nécessitent d'être affinées pour déterminer exactement les mêmes résultats.

## INTRODUCTION

Dans le cadre de l'évaluation de la sûreté des laboratoires et usines du domaine nucléaire, nous étudions l'étanchéité de voiles en béton armé fissurées par des contraintes de cisaillement caractéristiques d'un séisme. Pour cela, nous mesurons les débits de gaz et la rétention des particules dans les fissures de la paroi en béton pour des différences de pressions amont - aval comprises entre 10 hPa et 200 hPa représentant d'une part, l'effet du vent sur un bâtiment, d'autre part, le risque incendie dans une installation.

L'objectif général de ce travail est de valider un modèle de calcul de la rétention des aérosols par des fissures dans des parois en béton. Ce sujet est complexe car de nombreux facteurs contribuent à la rétention des aérosols par les fissures. On peut citer tout d'abord le dépôt à l'intérieur de la fissure, le dépôt à l'entrée de la fissure et l'évolution des caractéristiques de la fissure due au dépôt des particules (obstruction). Ces phénomènes ont été étudiés avec des géométries idéales telles que les capillaires ou les fentes (Morewitz, 1982 ; Clement, 1995 ; Carrié et Modera, 2002), mais rarement avec des fissures réelles et bien caractérisées (Farrar et Girrens, 1992).

Notre démarche consiste, après avoir déterminé les caractéristiques aérauliques du réseau de fissures (ouverture, régime de l'écoulement,...), à mesurer la rétention des particules par les fissures pour différents diamètres de particules et différentes vitesses d'écoulement. Finalement, nous interprétons les mesures expérimentales de rétention d'aérosols en utilisant les caractéristiques aérauliques des fissures et les différents modèles de dépôt existant dans la littérature.

## RETENTION DES AEROSOLS DANS LE RESEAU DE FISSURES

L'étude est réalisée sur une paroi en béton armé ( $130 \times 77 \times 10 \text{ cm}^3$ ) présentant un réseau de fissures d'une étendue totale égale à 11,8 m, et dont l'ouverture équivalente aéraulique a été déterminée égale à  $49,2 \mu\text{m}$ .

Nous représentons sur la figure 2 un schéma du dispositif expérimental que nous avons mis en œuvre pour mesurer la rétention d'un aérosol monodispersé dans un réseau de fissures caractérisé.

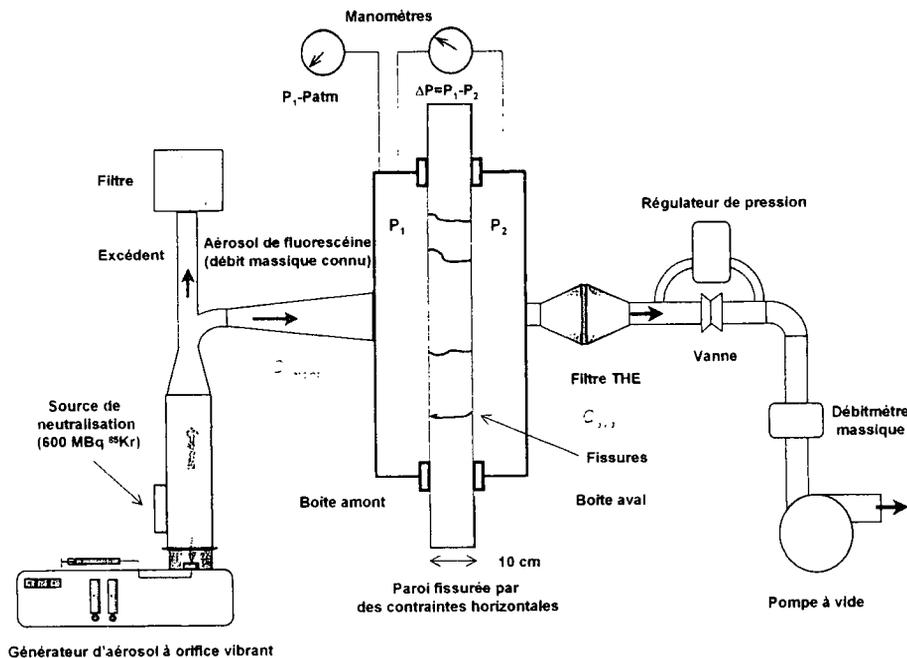


Figure 1 : montage expérimental pour la rétention d'aérosols

Ce montage présente une partie amont et une partie aval.

La partie amont est constituée d'une boîte étanche en acier "inox" accolée à la paroi fissurée. Cette boîte est reliée à un générateur d'aérosols à orifice vibrant par l'intermédiaire d'un cône permettant de diminuer les vitesses d'injection et d'éviter l'impaction sur la paroi. Le générateur permet de produire des aérosols de diamètres allant, dans notre cas, de 0,15 à 4 µm.

La partie aval est constituée également d'une boîte étanche en "inox" accolée à la paroi fissurée. Celle-ci est reliée à un porte-filtre muni d'un filtre THE (Très Haute Efficacité) permettant de collecter les aérosols pénétrants. A l'extrémité du circuit se trouve une pompe à vide, précédée d'un débitmètre massique, permettant de créer la dépression entre la boîte amont et la boîte aval.

Les premiers essais ont été réalisés avec des aérosols monodispersés de diamètre aérodynamique (dae) 1 µm et 4,1 µm. Sur la figure 2, nous représentons les granulométries de ces aérosols mesurées avec un APS (Aerodynamic Particle Sizer).

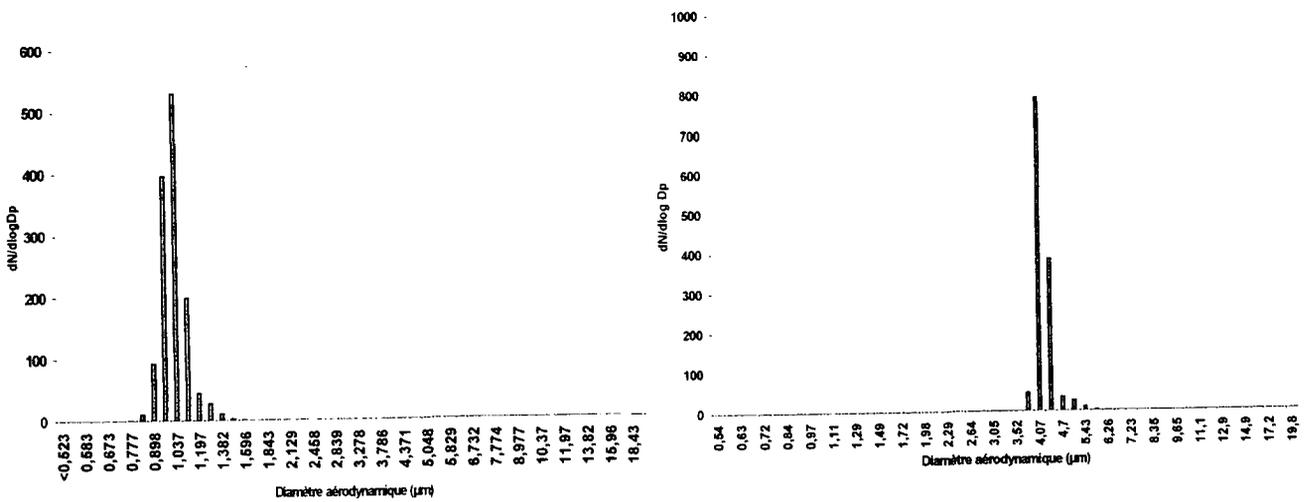


Figure 2 : granulométrie des aérosols générés (dae = 1 µm ;  $\sigma = 1,1$  et dae = 4,1 µm ;  $\sigma = 1,1$ ).

Le calcul de la rétention se fait en utilisant le rapport des débits massiques d'aérosols en aval et en amont de la paroi.

$$F_r = 1 - \frac{q_{\text{aval}}}{q_{\text{amont}}} \quad (2)$$

Nous avons réalisé plusieurs mesures de la concentration d'aérosols en amont par fluorimétrie afin de vérifier la reproductibilité.

Les résultats de ces mesures sont présentés dans le tableau 1 pour l'aérosol de diamètre 1 µm et dans le tableau 2 pour l'aérosol de diamètre 4,1 µm ;  $\sigma$  représente l'écart-type géométrique de la distribution.

Tableau 1 : détermination de la concentration amont pour l'aérosol généré (dae = 1 µm ;  $\sigma = 1,1$ )

Essai	Dae (µm)	$\sigma$	Concentration (g.l <sub>air</sub> <sup>-1</sup> )
1	1,1	1,2	1,5.10 <sup>-8</sup>
2	1,0	1,1	1,6.10 <sup>-8</sup>
3	1,0	1,1	1,9.10 <sup>-8</sup>
4	1,0	1,1	1,8.10 <sup>-8</sup>
5	1,0	1,1	1,7.10 <sup>-8</sup>
6	1,0	1,1	1,6.10 <sup>-8</sup>
Concentration moyenne (g.l <sub>air</sub> <sup>-1</sup> )			1,7.10 <sup>-8</sup>
Ecart-type			1,4.10 <sup>-9</sup>
Coefficient de variation			8,2%

Tableau 2 : détermination de la concentration amont pour l'aérosol généré ( $d_{ae} = 4,1 \mu\text{m}$  ;  $\sigma = 1,1$ )

Essai	Dae ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma$	Concentration ( $\text{g.l}_{\text{air}}^{-1}$ )
1	4,0	1,2	$1,5 \cdot 10^{-6}$
2	4,1	1,1	$1,6 \cdot 10^{-6}$
3	4,1	1,1	$1,6 \cdot 10^{-6}$
4	4,1	1,1	$1,5 \cdot 10^{-6}$
5	4,1	1,1	$1,5 \cdot 10^{-6}$
Concentration moyenne ( $\text{g.l}_{\text{air}}^{-1}$ )			$1,5 \cdot 10^{-6}$
Ecart-type			$3,6 \cdot 10^{-8}$
Coefficient de variation			2,4%

Les tableaux 1 et 2 montrent que les concentrations mesurées pour chaque diamètre sont stables ; on détermine une concentration amont de  $1,7 \cdot 10^{-8} \text{ g.l}_{\text{air}}^{-1}$  avec un coefficient de variation de 8,2% pour l'aérosol de  $1 \mu\text{m}$ , et une concentration amont de  $1,5 \cdot 10^{-6} \text{ g.l}_{\text{air}}^{-1}$  avec un coefficient de variation de 2,4% pour l'aérosol de  $4,1 \mu\text{m}$ .

Ces résultats nous permettent donc de considérer le générateur à orifice vibrant comme stable et de prendre pour concentrations amont celles déterminées dans les tableaux 1 et 2.

Concernant le débit massique aval, nous utilisons également une méthode par fluorimétrie. Celle-ci consiste à dissoudre la fluorescéine recueillie sur le filtre de prélèvement dans une solution ammoniacquée de  $\text{pH} > 9$ , puis à mesurer sa fluorescence à l'aide d'un fluorimètre. Cette fluorescence est liée à la concentration de fluorescéine dans la solution ce qui permet alors de déterminer le débit massique en aval de la paroi.

Les débits massiques amont et aval sont connus avant et après les boîtes accolées à la paroi. Nous avons donc également pris en compte le dépôt d'aérosols à l'intérieur des boîtes, du cône d'injection et du porte-filtre en réalisant des frottis.

## RESULTATS

Les résultats de rétention des aérosols de diamètres égaux à  $1 \mu\text{m}$  et  $4,1 \mu\text{m}$  que nous avons obtenus sont présentés sur la figure 3. On trace l'évolution de la fraction retenue en fonction de la vitesse dans la fissure pour chaque diamètre.

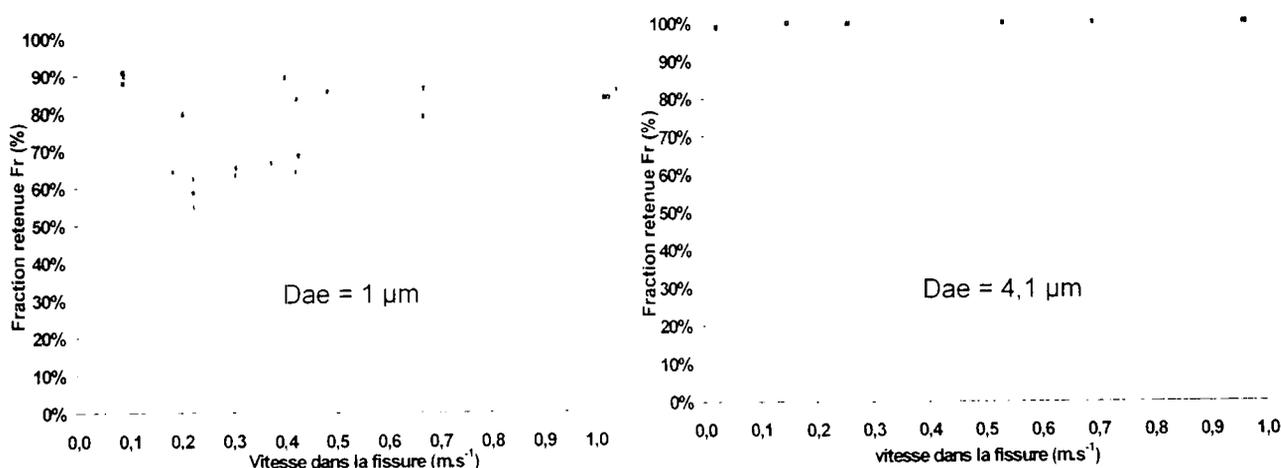


Figure 3 : rétention des aérosols de diamètres égaux à  $1 \mu\text{m}$  et  $4,1 \mu\text{m}$  par la paroi fissurée

Pour le cas  $1 \mu\text{m}$ , la figure 3 montre une évolution de la fraction retenue en deux phases, une phase de décroissance de 90% à 50% pour des vitesses inférieures à  $0,2 \text{ m.s}^{-1}$ , puis une augmentation plus lente de 50% à 85% avec une stabilisation à 85% pour des vitesses supérieures à  $0,2 \text{ m.s}^{-1}$ .

Pour le cas  $4,1 \mu\text{m}$ , la figure 3 montre que la fraction retenue est constante et proche de 100% quelle que soit la vitesse dans la fissure.

## INTERPRETATION DES RESULTATS

Dans le cadre de l'étude réalisée sur la paroi en béton fissurée, et compte tenu des diamètres de particules utilisés, trois phénomènes prépondérants se distinguent :

- la diffusion brownienne,
- la sédimentation,
- l'inertie.

Pour calculer la fraction retenue dans le cas de la diffusion brownienne, nous avons considéré la corrélation de Ingham (Ingham 1976) (1) (2) établie dans le cas de conduites de section rectangulaire en régime laminaire :

pour  $\delta > 0,05$

$$Fr = 1 - (0,9104e^{-2,8278\delta} + 0,0531e^{-32,147\delta} + 0,01528e^{-93,475\delta} + 0,00681e^{-186,805\delta}) \quad (1)$$

pour  $\delta \leq 0,05$

$$Fr = 1,526\delta^{\frac{2}{3}} - 0,15\delta - 0,0342\delta^{\frac{4}{3}} \quad \text{avec} \quad \delta = \frac{8DL}{3Qe} \quad (2)$$

où D est le coefficient de diffusion ( $m^2 \cdot s^{-1}$ ), e l'ouverture de la fissure (m), l l'étendue de la fissure (m), L la longueur de la fissure (m) et Q le débit du gaz porteur ( $m^3 \cdot s^{-1}$ ).

Pour calculer la fraction retenue dans le cas de la sédimentation, on trouve une relation établie dans un contexte assez proche du cas de la fissure idéalisée, soit la batterie de sédimentation (Baron 2001) :

$$Fr = \frac{V_s L}{Ue} \quad \text{avec} \quad V_s = \tau g \quad \text{et} \quad \tau = \frac{d_p^2 (\rho_p - \rho_g)}{18\mu} \quad (3)$$

où  $V_s$  est la vitesse de sédimentation ( $m \cdot s^{-1}$ ), U la vitesse dans la fissure ( $m \cdot s^{-1}$ ),  $d_p$  le diamètre de la particule (m),  $\rho_p$  et  $\rho_g$  les masses volumiques respectivement de la particule et du gaz porteur ( $kg \cdot m^{-3}$ ) et  $\mu$  la viscosité dynamique du gaz (Pa.s).

Pour calculer la fraction retenue dans le cas inertiel, peu de relations ont été établies dans un contexte proche de celui d'une fissure. Nous nous sommes donc rapprochés du contexte de l'échantillonnage, pour lequel des corrélations ont été réalisées dans le cas de prélèvement en milieu ambiant. Entre autres, nous nous intéresserons à la corrélation établie par Hengal et Willeke dans le cas d'une aspiration super-isocinétique (Baron 2001) :

$$Fr = 1 - e^{-\tau_{st}^2} \quad \text{avec} \quad \tau_{st} = 0,09 \left( Stk \frac{U - U_0}{U_0} \right)^{0,5} \quad \text{et pour } 0,02 \leq Stk \leq 4 \text{ et } 0,25 \leq U_0/U \leq 1. \quad (4)$$

où  $U_0$  est la vitesse dans le milieu ambiant ( $m \cdot s^{-1}$ ) et Stk le nombre de Stokes.

L'application de ces corrélations est présentée sur la figure 4.

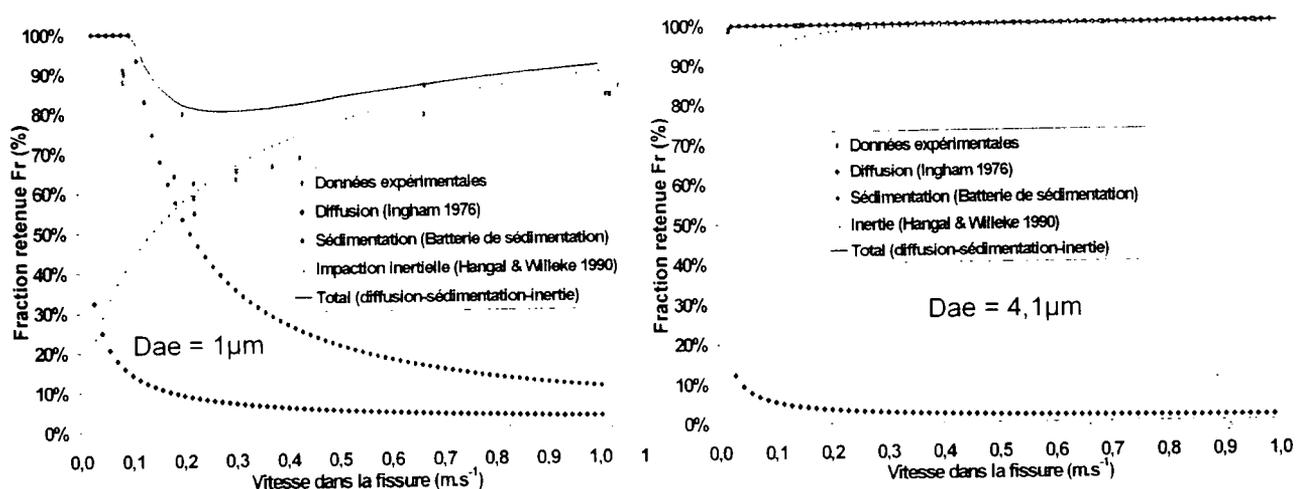


Figure 4 : application des modèles de dépôt aux cas d'aérosols de 1 µm et 4,1 µm

On constate sur la figure 4, pour le cas 1  $\mu\text{m}$ , que la courbe théorique, combinant l'ensemble des phénomènes de dépôt, suit une évolution similaire à celle de la courbe expérimentale.

Cependant, on observe que cette courbe théorique est légèrement au-dessus de la courbe expérimentale avec un écart maximal entre les deux de 20 % à la vitesse de 0,2  $\text{m.s}^{-1}$ .

Dans la première phase de l'évolution de la courbe expérimentale, le phénomène de sédimentation est prépondérant, bien que les deux autres phénomènes ne soient pas négligeables.

Dans la deuxième phase, c'est plutôt l'inertie qui devient prépondérante, alors que les phénomènes de diffusion et de sédimentation deviennent très vite négligeables.

Deux causes peuvent expliquer la différence entre les deux courbes :

- l'utilisation d'une ouverture aéraulique équivalente qui souvent est plus faible que l'ouverture réelle et par conséquent peut avoir tendance à favoriser le dépôt dans les lois de dépôt,
- l'utilisation de lois établies pour des géométries différentes de celle d'une fissure, et notamment celles établies dans le cadre de l'échantillonnage.

Pour le cas 4,1  $\mu\text{m}$ , la courbe expérimentale est parfaitement représentée par la courbe théorique regroupant l'ensemble des modèles de dépôt.

Cependant, il est important de remarquer que l'évolution de cette courbe théorique est imposée par le modèle de sédimentation qui, pour ce diamètre de particule et cette gamme de vitesse, calcule une fraction déposée quasiment égale à 100%, soit une fraction pénétrante nulle.

## CONCLUSION

Pour le cas 1  $\mu\text{m}$ , on a pu observer 2 phases successives de décroissance et de croissance de la fraction retenue en fonction de la vitesse dans la fissure, chacune des phases faisant intervenir de manière prépondérante un phénomène différent, soit pour la phase de décroissance le phénomène de sédimentation et pour la phase de croissance le phénomène d'inertie. Le phénomène de diffusion est également présent, mais influe très peu sur les évolutions.

Les modèles de dépôt permettent de décrire correctement l'évolution expérimentale avec toutefois un écart maximal supérieur de 20% qui peut être attribué à deux causes, l'utilisation d'une ouverture aéraulique équivalente qui sous estime l'ouverture réelle et donc surestime la fraction retenue, et l'utilisation de modèles inertiels plutôt adaptés à des géométries cylindriques (tubes de prélèvement).

Pour le cas 4,1  $\mu\text{m}$ , les résultats expérimentaux déterminent une fraction retenue constante et proche de 100%, ce qui est confirmé par les modèles de dépôt. Néanmoins les résultats théoriques sont dominés par le modèle de sédimentation qui calcule une fraction retenue constante de 100%.

Cette étude doit se conclure par la mesure de rétention d'aérosol de 0,15  $\mu\text{m}$  par un réseau de fissures, ce qui permettrait de traiter le dernier cas de figure mettant en jeu la prépondérance du phénomène de diffusion par rapport aux phénomènes de sédimentation et d'inertie. On n'est certes pas encore dans un domaine totalement diffusionnel, mais l'hypothèse n'est pas forte.

Ainsi il pourrait être intéressant, compte tenu de cette hypothèse, de déterminer, à partir des résultats obtenus et des modèles de dépôt par diffusion brownienne, les caractéristiques réelles de la fissure, puisque ces modèles en dépendent.

Dès lors, il serait possible d'intégrer ces caractéristiques dans les lois de sédimentation et d'inertie pour les comparer aux résultats obtenus pour le cas 1  $\mu\text{m}$ .

## REFERENCES

- Baron, P.A. and Willeke, K. (2001) Aerosol measurement.
- Carrié, F.R. and Modera, M.P. (2002) Experimental investigation of aerosol deposition on slot- and joint-type leaks. *Journal of Aerosol Science*, **33**, 1447 – 1462.
- Clement, C.F. (1995) Aerosol penetration through capillaries and leaks: theory. *Journal of Aerosol Science*. **26**, 369 – 385.
- Farrar, C.R. and Girrens, S.P. (1992) Aerosol penetration through a seismically loaded shear wall. *Advanced Engineering Technology*. MEE – 13/MS J576.
- Ingham, D.B. (1976) Simultaneous diffusion and sedimentation of aerosol particles in rectangular tubes". *J. Aerosol Sci.*
- Morewitz, H.A. (1982) Leakage of aerosols from containment buildings. *Health Phys.* **42**(2), 195 – 207.

# MESURES ANALYTIQUES SUR DES PARTICULES PAR SPECTROSCOPIE OPTIQUE D'UN PLASMA INDUIT PAR LASER.

E. Vors

CEA, Direction de l'Energie Nucléaire, Département de Physico-Chimie, Service de Chimie Physique, Laboratoire de Réactivité des Surfaces et des Interfaces, 91191 Gif sur Yvette Cedex. evors@cea.fr.

## TITLE

Analytical measurements on particles by optical spectroscopy of a laser induced plasma.

## ABSTRACT

The purpose of this work is to study the ability of optical spectroscopy of a laser induced plasma to make in situ - without sample taking - elemental analysis of particles circulating in a high temperature and high pressure helium loop. First results obtained with a specific laboratory set-up are presented here. The beam of a pulsed laser is focused through a window in a gas stream laden with particles and the plasma emission light is analysed with a spectrometer. Emission spectra are registered for all laser shots. Spectra corresponding to particles are identified. It is shown how, after calibration of the system, this statistical approach gives access to mass concentration of the studied element (mass per unit of volume of gas).

## RESUME

Ce travail a pour but d'étudier l'aptitude de la spectroscopie optique de plasma induit par laser à faire l'analyse élémentaire in situ - sans prélèvement d'échantillon - des particules circulant dans une boucle d'hélium à haute température et haute pression. Les premiers résultats obtenus avec un dispositif de laboratoire spécifique sont présentés ici. Un faisceau issu d'un laser impulsionnel est focalisé, à travers un hublot, dans un gaz chargé de particules et la lumière émise par le plasma est analysée avec un spectromètre. Les spectres d'émission sont enregistrés à chaque tir laser. Les spectres correspondant aux particules sont identifiés. On montre comment, après étalonnage du système, cette approche statistique donne accès à la concentration massique de l'élément étudié (masse par unité de volume de gaz).

## 1. Introduction

Quand le faisceau d'un laser impulsionnel est focalisé sur la surface d'un solide, d'un liquide ou dans un gaz, il se forme un plasma dont le spectre d'émission est constitué de raies caractéristiques des éléments présents dans la matière sondée. On analyse les espèces dissociées sous forme d'atomes et ions dans le plasma. La méthode est appliquée depuis de nombreuses années dans notre laboratoire à l'analyse élémentaire des solides et des liquides [1,2]. Elle a aussi été appliquée par d'autres équipes à l'analyse élémentaire de particules contenant des métaux toxiques [3] et du carbone [4].

Dans le dispositif de laboratoire, on focalise, en passant à travers un hublot, un faisceau laser dans une cellule à travers laquelle circule un flux gazeux chargé de particules contenant du carbone. La lumière émise par le plasma est recueillie, à travers le même hublot et en sens inverse, dans un spectromètre. Les spectres d'émission du plasma sont enregistrés tir à tir. Seuls certains tirs impactent des particules et on effectue une détection statistique des particules.

Dans la future boucle d'hélium, l'élément recherché en priorité sera le carbone présent dans des particules de graphite de taille micrométrique. Les particules étudiées en laboratoire sont des particules d'hydrogénocarbonate de sodium de taille supérieure à  $1 \mu\text{m}$ . Elles sont générées de la façon suivante : une solution aqueuse d'hydrogénocarbonate de sodium est nébulisée grâce à une céramique vibrant à une fréquence ultrasonore. Le solvant des gouttelettes produites est évaporé par un flux d'air de séchage [5].

## 2. Dispositif expérimental

### 2.1. Montage optique

La figure 1 donne le schéma du dispositif optique. On utilise un laser Nd:YAG doublé émettant, à la longueur d'onde  $532 \text{ nm}$ , des impulsions de durée  $6 \text{ ns}$  à la cadence de  $10 \text{ Hz}$ . Le faisceau laser est focalisé par la lentille L et la lumière émise par le plasma est collectée dans la fibre optique par une lentille L'. Les revêtements des miroirs M1 et M2 réfléchissent la longueur d'onde laser. Le miroir M2 et le hublot sont transparents à la longueur d'onde de la raie du carbone à observer (située à  $247,86 \text{ nm}$ ).

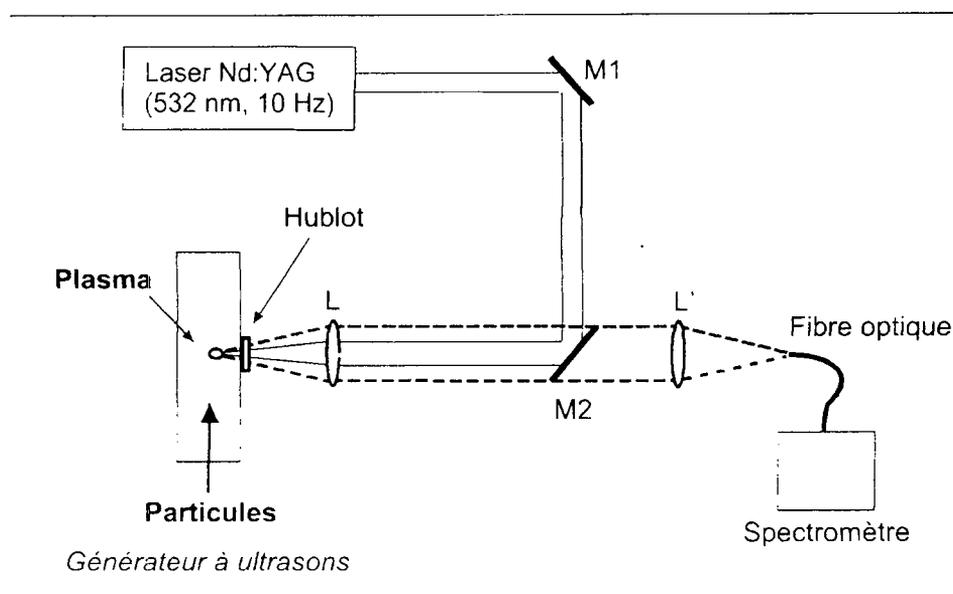


Fig. 1 - Montage optique

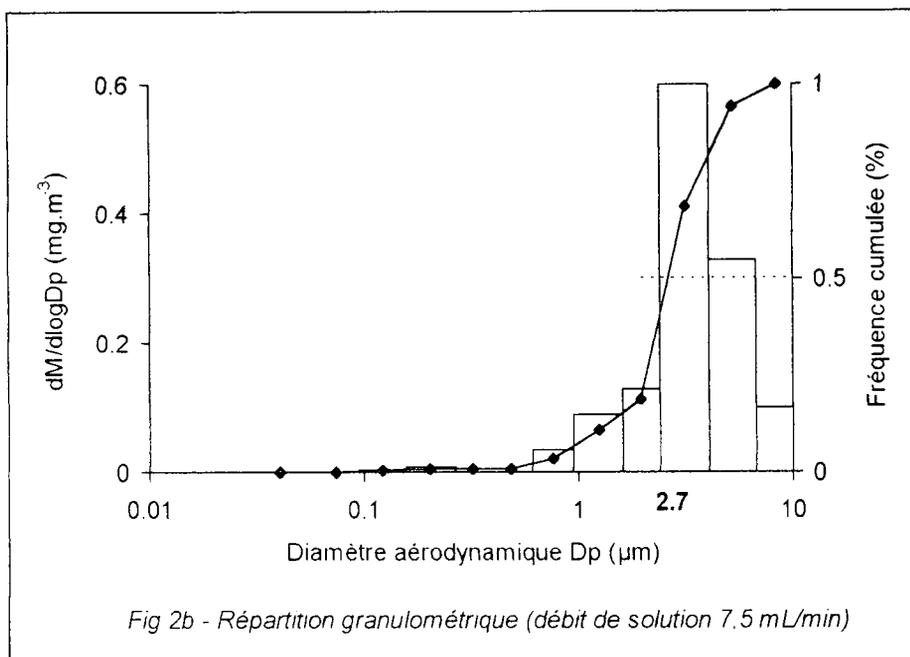
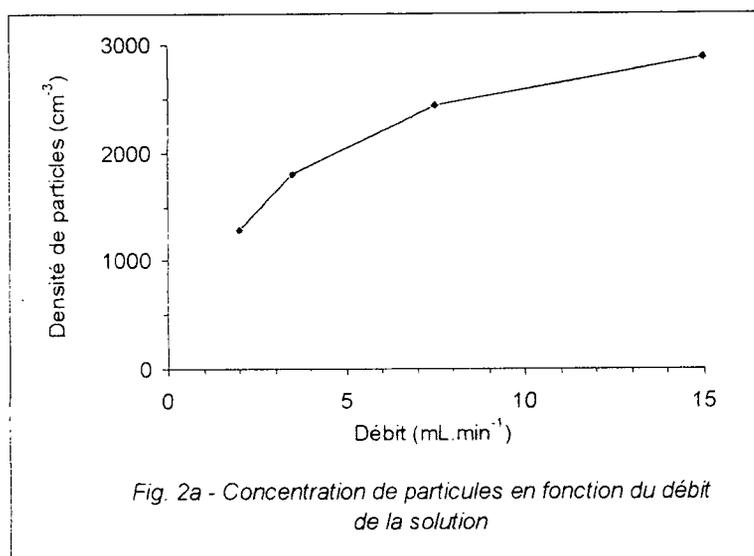
Le spectromètre permet d'enregistrer des spectres dans un domaine entourant une longueur d'onde choisie. La détection du signal se fait avec une caméra CCD intensifiée avec résolution temporelle : l'intensificateur est activé pendant une porte temporelle présentant un retard (par rapport à l'impulsion laser) et une durée réglables, ce qui permet d'optimiser les intensités des raies enregistrées.

### 2.2. Générateur de particules

Les particules proviennent d'un générateur à ultrasons de la société Sinaptec dont le principe est le suivant. Une solution aqueuse de  $\text{NaHCO}_3$  arrive à faible débit sur une céramique vibrant à  $80 \text{ kHz}$  qui la disperse en gouttelettes (d'une vingtaine de  $\mu\text{m}$  de diamètre) qui sont ensuite asséchées dans un flux gazeux. Les cristaux de sel produits ont des diamètres médians supérieurs à  $1 \mu\text{m}$ . Le taux de production des particules sèches est fonction du débit de la solution et le diamètre médian des particules dépend de la concentration de la solution.

Le fonctionnement du générateur a été caractérisé avec un granulomètre à impaction (impacteur électrique basse pression Dekati). La figure 2 donne, pour une solution de  $\text{NaHCO}_3$  de concentration  $1,08 \text{ g.L}^{-1}$  et un flux d'air de séchage de  $13 \text{ m}^3.\text{h}^{-1}$  :

- sur la fig. 2a, la moyenne de la densité de particules sèches (en  $\text{cm}^{-3}$ ) en fonction du débit de solution,
- et, sur la fig. 2b, la répartition granulométrique de la concentration massique (en  $\text{mg}$  par  $\text{m}^3$  de gaz) correspondant à un débit de solution de  $7,5 \text{ mL.min}^{-1}$  ; cette répartition suit une loi log-normale (de diamètre aérodynamique médian  $2,7 \mu\text{m}$  et d'écart-type géométrique 1,3).



**Fig. 2 - Caractérisation des particules sèches.**

La répartition granulométrique de la figure 2b correspond à une concentration massique totale (sur l'ensemble des plateaux de l'impacteur) de  $0,28 \text{ mg.m}^{-3}$  et une densité de particules de  $2375$  particules par  $\text{cm}^3$  (valeurs calculées par le logiciel d'acquisition).

Quand la concentration de la solution varie de  $0,54$  à  $5,4 \text{ g.L}^{-1}$ , le diamètre aérodynamique médian varie de  $\approx 2$  à  $\approx 4 \mu\text{m}$

### 3. Résultats préliminaires et discussion

La méthode de détection statistique que nous employons impose de comptabiliser les spectres relatifs aux particules de  $\text{NaHCO}_3$ . Or le sodium possède deux raies (situées à 588,99 et 589,59 nm) beaucoup plus sensibles que la raie du carbone à 247,86 nm. On a donc mis au point la méthode statistique sur les raies du sodium.

Pour la production de particules correspondant à la figure 2b, on a effectué des enregistrements spectre à spectre sur une série de 500 tirs laser, avec une énergie laser de 120 mJ et, pour la porte temporelle de mesure, un délai de 10  $\mu\text{s}$  et une durée de 50  $\mu\text{s}$ . La figure 3 présente, pour les raies du sodium, les spectres identifiés comme relatifs aux particules. Pour sélectionner les spectres de particules il faut définir un critère pertinent sur le seuil d'intensité de raie. Ici, on s'est positionné en un pixel du spectre situé hors des raies et on a calculé la valeur brute du bruit en soustrayant les valeurs maximale et minimale de l'amplitude de ce pixel sur la série de tirs. Puis on a retenu comme étant dus aux particules les spectres dans lesquels les amplitudes des pixels correspondant aux raies dépassent la valeur du bruit.

- Sur la fig. 3a, est montrée la moyenne des 94 spectres de la série qui ont été attribués aux particules,
- et, sur sur la fig. 3b, sont montrés en exemple trois des spectres attribués aux particules.

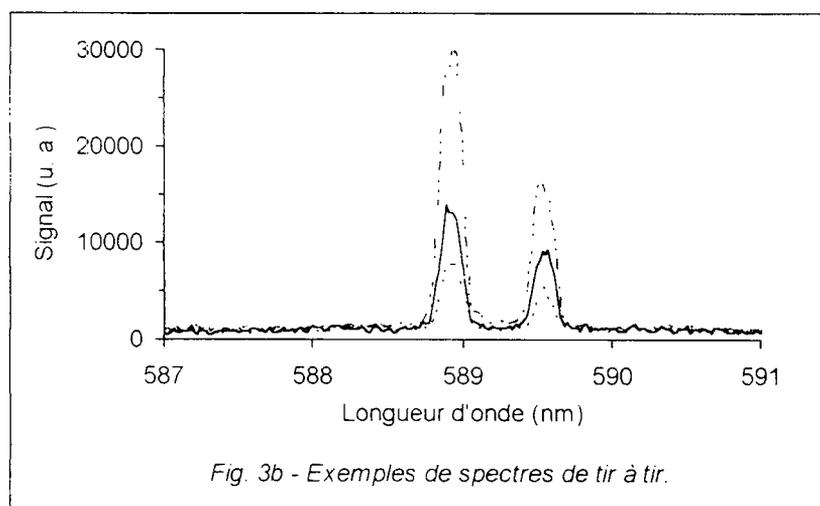
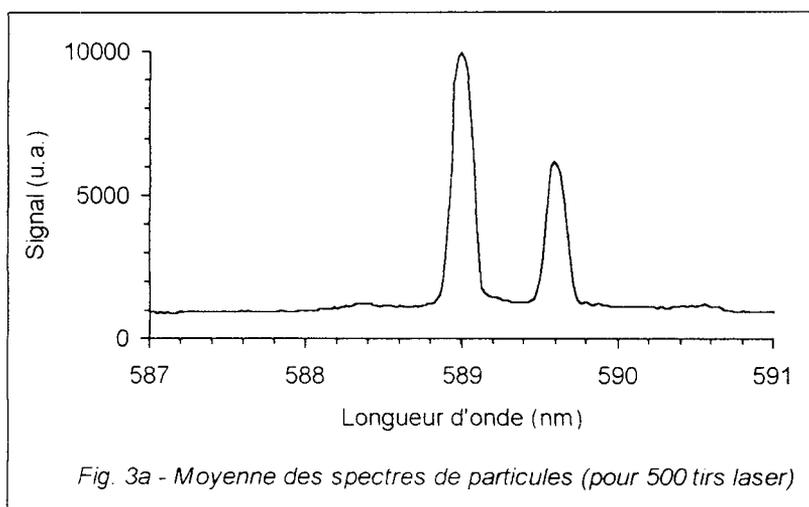


Fig. 3 - Pour les raies du Na : spectres attribuées aux particules.

La fréquence d'échantillonnage  $F_{est}$  définie par :

$$F = \frac{n_{sp}}{n_t} \quad (1)$$

où  $n_{sp}$  est le nombre de tirs conduisant à des spectres de particules.

La valeur réelle  $x$  de la concentration de l'élément (masse de l'élément réellement présente par unité de volume de gaz) se calcule, connaissant  $x_{sp}$  et la fréquence d'échantillonnage  $F$ , par l'équation suivante [3,6] :

$$x = x_{sp} \cdot F \quad (2)$$

où  $x_{sp}$  est la concentration apparente de l'élément, calculée à partir de la moyenne, sur les seuls spectres de particules, de l'amplitude de la raie étudiée.

Dans le cas présent, on a  $F = 0,19$ , et  $x = 0,08 \text{ mg.m}^3$  (proportion de Na correspondant à la concentration de  $0,28 \text{ mg.m}^3$ ). Par conséquent, l'amplitude des raies de la figure 3a correspond à une concentration apparente de Na de  $0,42 \text{ mg.m}^3$ .

La fréquence d'échantillonnage  $F$  définie ci-dessus est identifiable à la probabilité  $P$  pour qu'un tir laser échantillonne au moins une particule.

Dans l'hypothèse d'une loi de Poisson, on peut écrire :

$$P = 1 - e^{-\mu} \quad (3)$$

où  $\mu$  est le nombre moyen de particules dans le volume d'interaction laser-matière.

En première approximation, le volume d'interaction laser-matière est assimilable au volume du plasma  $V_p$ . On a alors :

$$\mu \cong V_p N \quad (4)$$

où  $N$  est la densité de particules (nombre de particules par unité de volume).

Le plasma subit une expansion à partir de l'instant d'arrivée de l'impulsion laser.  $V_p$  est le volume du plasma à l'instant correspondant au délai entre l'impulsion laser et l'ouverture de la porte temporelle de détection. En identifiant la valeur de  $F$  trouvée précédemment à la probabilité  $P$  on peut donc estimer la valeur de  $V_p$  :

$$V_p \cong -\frac{\ln(1-F)}{N} \quad (5)$$

Dans le cas présent, avec  $F = 0,19$  et  $N = 2375 \text{ cm}^{-3}$  :  $V_p \cong 10^{-4} \text{ cm}^3 \cong 0,1 \text{ mm}^3$ .

La loi de Poisson permet d'évaluer la probabilité  $P_n$  pour qu'un spectre sélectionné soit dû à l'impaction de  $n$  particule(s) :

$$P_n = \frac{\mu^n}{n!} e^{-\mu} \quad (6)$$

On a, dans le cas présent :  $P_1 \cong 0,17$ . Par conséquent, seuls  $\cong 2\%$  des spectres sélectionnés sont dus à l'impaction de plus d'une particule.

Bien entendu, les résultats des calculs ci-dessus, basés sur l'identification de la fréquence d'échantillonnage  $F$  avec la probabilité  $P$ , repose sur le choix du critère de sélection des spectres de particules. Pour vérifier la validité de ce critère, on peut, en faisant varier la densité  $N$ , vérifier la proportionnalité de la relation entre la valeur de  $\ln(1-F)$  et  $N$  (éq. 5). Ce travail est actuellement en cours.

#### 4. Conclusion et perspectives

L'étude préliminaire présentée ici démontre la possibilité d'effectuer, avec notre dispositif, l'analyse élémentaire de particules avec la méthodologie d'analyse statistique conditionnelle décrite. L'intérêt de cette méthodologie, qui utilise la moyenne des seuls spectres de particules au lieu de moyenniser l'ensemble des spectres de la série de tirs laser, réside dans le fait qu'elle permet d'accéder à la valeur réelle de la concentration de l'élément en tenant compte du fait que tous les tirs laser n'échantillonnent pas de particule.

Le travail en cours consiste à améliorer la méthode de détection statistique sur les raies du sodium. Ensuite, nous optimiserons le signal sur la raie à 247 nm du carbone. Pour cela nous augmenterons l'énergie laser disponible et optimiserons le système optique. Nous optimiserons aussi les paramètres de la porte temporelle de mesure (retard et durée).

L'étape suivante consistera à établir une courbe d'étalonnage destinée à donner une correspondance entre les amplitudes de raies et la concentration massique de carbone. Cet étalonnage permettra de déterminer la limite de détection du carbone dans les aérosols par la méthode LIBS. Signalons que les ordres de grandeur des limites de détection trouvées dans la littérature sont de l'ordre de quelques  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  à quelques centaines de  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ .

Enfin, l'influence de la taille des particules sur les signaux détectés par LIBS sera également étudiée. D'une part, les signaux dus aux particules, étant fonction de la masse de l'élément par particule, sont aussi fonction de la taille des particules. D'autre part, il a été établi [7] que, lorsque sa taille dépasse une certaine limite, la particule n'est plus entièrement vaporisée par le faisceau laser. Au-dessus de cette taille limite, la mesure par LIBS sous-estime la concentration. La taille limite est évidemment fonction de la nature de la particule, de l'énergie laser et des dimensions de la zone dans laquelle le faisceau laser est focalisé.

#### Remerciements

La caractérisation du fonctionnement du générateur de particules avec l'impacteur a été effectuée avec l'aide de M. Géleoc (CEA, Service de Chimie Physique).

#### Références

- [1] Fichet, P., Mauchien, P., Wagner, J.F., Moulin, C. (1999). Appl. Spectrosc., 53, 1111.
- [2] Fichet, P., Mauchien, P., Wagner, J.F., Moulin, C. (2001). Anal. Chim. Acta, 429, 269.
- [3] Hahn, D.W., Flower, W.L. and Hencken, K.R. (1997). Appl. Spectrosc., 51, 1836.
- [4] Noda, M., Deguchi, Y., Iwasaki, S. and Yoshikawa, N. Spectrochim (2002). Acta Part B, 57, 701.
- [5] Bemer, D., Tierce, P. (1996). J. Aerosol Sci., 27, Suppl.1, 93.
- [6] Hahn, D.W. and Lunden, M.M. (2000). Aerosol Sci. Technol. 33, 30.
- [7] Carranza, J.E. and Hahn, D.W. (2002), Anal. Chem. 74, 5450.

# Etude numérique d'un granulo-vélocimètre phase Doppler à points chauds

C. Hespel\*<sup>1)</sup>, K.F. Ren <sup>1)</sup>, G. Gréhan <sup>1)</sup> et F. Onofri <sup>2)</sup>

1) UMR 6614/CORIA, CNRS/Université et INSA de Rouen,  
BP 12, 76800 Saint Etienne du Rouvray  
Camille.hespel@coria.fr

2)UMR CNRS 6595, Polytech' Marseille  
5 rue E. Fermi, 13453 Marseille

## TITLE

Numerical study of a PDA with glare points

## ABSTRACT

The Phase Doppler anemometry (PDA) has been developed to measure the velocity and the size of droplets in movement. A new demand is to know the value of the refractive index which is dependent of the temperature and composition. Different systems have been studied to extract the refractive index from PDA signal: Extended PDA, Dual Mode PDA or Dual Burst PDA. This last technique is based on the separation between the reflective and the refractive light. Two beams are strongly focalised at one point. This impose that the different parts of the particle which reflect and refract the light are successively illuminated. The separation is here in the time. But at a strong focalisation is associated a strong curvature of the wave front which is at the origin of a high sensitivity of the technique to the longitudinal location of the particle under study. Another solution is to use large beams and to separate in the space the reflective and refractive light. The study of such a configuration is carried out in this paper

## RESUME

L'anémométrie Phase Doppler (PDA en anglais abrégé) a été développée pour mesurer la vitesse et la taille de gouttes en écoulement. L'intérêt de pouvoir mesurer l'indice de réfraction de la particule à l'origine du signal est apparu ultérieurement. Différentes configurations ont été proposées pour extraire l'indice de réfraction d'un signal ou d'une série de signaux PDA : PDA étendu, PDA Dual Mode ou PDA dual burst.

Cette dernière technique, dite « de la double bouffée », est basée sur la séparation des contributions réfléchies et réfractées de la lumière interagissant avec la goutte. Cette séparation des contributions est obtenue en focalisant fortement deux faisceaux laser concourants. Ceci permet d'éclairer successivement les zones de la surface de la particule qui sont à l'origine de la lumière réfléchies (réfractée) dans la direction du détecteur. La séparation entre contribution réfléchie et réfractée peut être qualifiée de **temporelle**. Cependant, la forte focalisation des faisceaux laser entraîne une forte courbure des fronts d'onde convergents et divergents, cause d'une sensibilité de la technique à la position longitudinale de la particule à mesurer, sensibilité non désirable dans de nombreux cas.

L'alternative à ce problème consistant à utiliser des faisceaux de grandes dimensions devant les dimensions de la particule pour supprimer cette dépendance longitudinale et de séparer **spatialement** les contributions lumière réfractée et réfléchie par l'intermédiaire d'une fente étroite dans le plan image du système de détection, c'est à dire de collecter indépendamment chacun des points chauds (glare spot) de l'image hors axe de la goutte.

## 1) Introduction

L'anémométrie Phase Doppler (PDA en anglais abrégé) a été développée pour mesurer la vitesse et la taille de gouttes en écoulement. L'intérêt de pouvoir mesurer l'indice de réfraction de la particule à l'origine du signal est apparu ultérieurement. Différentes configurations ont été proposées pour extraire l'indice de réfraction d'un signal ou d'une série de signaux PDA : Extended PDA, Dual Mode PDA ou Dual Burst PDA [1] [2]. Cette dernière technique dite de la double bouffée est basée sur la séparation des contributions réfléchies et réfractées de la lumière interagissant avec la goutte. Cette séparation des contributions est obtenue en focalisant fortement deux faisceaux lasers concourants. Ceci entraîne une forte courbure des fronts d'onde convergent/divergent, cause d'une sensibilité de la technique à la position longitudinale de la particule à mesurer, sensibilité non désirable dans de nombreux cas. Une alternative est d'utiliser des faisceaux d'éclairage de grandes dimensions devant les dimensions de la particule et de séparer les contributions lumière réfléchie/lumière réfractée dans le plan image du système de détection, c'est à dire de collecter indépendamment chacun des points chauds (glare spot) de l'image hors axe de la goutte. Pour réaliser un appareil basé sur ce concept, une simulation numérique de son comportement a été entreprise.

Cet article résume les résultats numériques obtenus. Il s'organise comme suit : après avoir rappelé l'origine des points chauds, un modèle d'optique géométrique est introduit, puis un code rigoureux, basé sur la GLMT et l'intégrale de Huygens-Fresnel est utilisé.

## 2) Imagerie hors-axe : point chaud.

La figure 1 représente le principe de l'imagerie hors-axe. Une particule de diamètre  $d$  et d'indice de réfraction  $n$  est éclairée par un faisceau de lumière parallèle. Dans une direction  $\theta$ , une lentille de diamètre  $\phi$  et de focale  $f$  collecte la lumière diffusée, cette lentille conjugue un plan objet et un plan image. Sur le plan image, deux points brillants sont observés. Ces deux points brillants sont appelés points chauds (« glare spots »)[3]. L'un est créé par la lumière réfléchie (indépendant de l'indice de réfraction), l'autre est créé par la lumière réfractée par la goutte (dépendant de l'indice de réfraction). Ces deux points chauds sont séparés d'une distance correspondant à la distance entre le point de sortie de la réflexion (preflex) et le point de sortie de la réfraction (prefrac) multiplié par  $\gamma$  où  $\gamma$  est le grossissement optique du système. Dans notre cas pour un angle d'observation grand ( $\theta=66.5^\circ$ ), cette distance est de l'ordre de  $d \cdot \gamma$ .

La mesure des propriétés de ces deux points doit donc permettre de mesurer l'indice de réfraction de l'objet diffusant. La suite de ce rapport est dédiée à la qualification du comportement de ces deux points pour une particule sphérique se déplaçant dans le volume de mesure d'un granulomètre PDA.

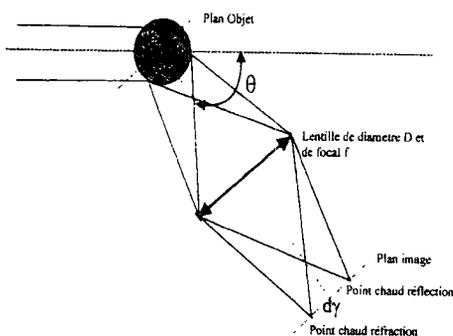


Figure 1 : Principe de l'imagerie hors-axe.

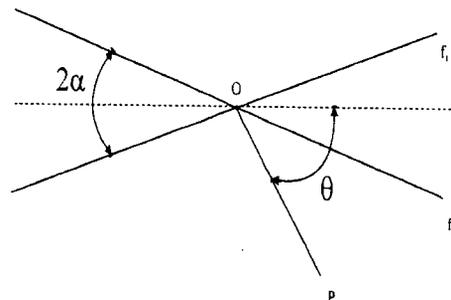


Figure 2 : Le modèle d'optique géométrique

## 3) Modèle d'optique géométrique.

Un premier modèle, basé sur l'optique géométrique a été construit. Ce modèle ne prend pas en compte la lentille collectrice, et la polarisation, mais permet de comprendre et de quantifier le comportement d'un PDA à points chauds.

Ce modèle (figure 2) correspond à une configuration PDA dite plane [4]: les deux faisceaux incidents et le point de détection P sont dans le même plan. Les deux faisceaux incidents, de longueur d'onde  $\lambda$ , ont entre eux un angle de  $2\alpha$ . Soit O le point d'intersection des deux faisceaux, le point

d'observation P est dans la direction  $\theta$  : angle entre la bissectrice des deux faisceaux incidents et la direction OP. La particule diffusante est supposée parfaitement sphérique et son centre est confondu avec le point O.

On peut tout d'abord exprimer la position précise des points chauds en déterminant le point de sortie des rayons réfléchis et réfractés. La position du point de sortie est une fonction du diamètre de la particule et des angles  $\theta$  et  $\tau$  (angle entre le rayon et la tangente à la particule)

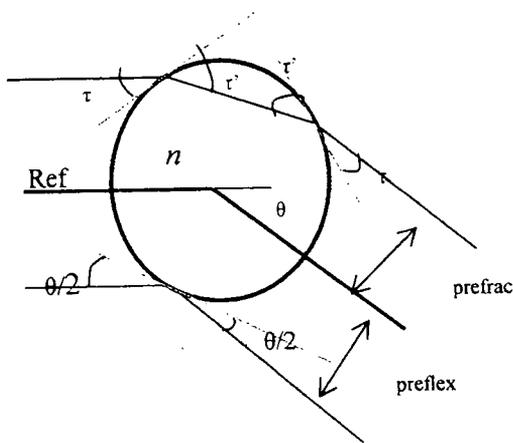


Figure 3 : chemin optique

On a les expressions suivantes :

$$preflex = \frac{d}{2} \cos \frac{\theta}{2}$$

$$prefrac = \frac{d}{2} \cos \tau$$

$$m \cos \tau' = \cos \tau$$

$$2\tau' - 2\tau = \theta$$

Pour  $\theta = 66.5^\circ$  et pour un indice de 1.33,  $\tau = 8.75^\circ$

On a donc pour une particule de  $50\mu\text{m}$ :

$$preflex = 0.836 * \frac{d}{2} = 20.9\mu\text{m}$$

$$prefrac = 0.988 * \frac{d}{2} = 24.7\mu\text{m}$$

En configuration plane, au point P, les lumières réfléchies et réfractées par chaque faisceau interfèrent, provoquant un déphasage. L'intensité des points chauds est modulée par ces déphasages. Ainsi, lorsqu'une particule traverse un volume de mesure PDA, l'intensité des points chauds fluctue en fonction de d et de la position de la particule (angle  $\theta$ ). Pour une position fixe de la particule, la figure 4 prédit la visibilité des points chauds.

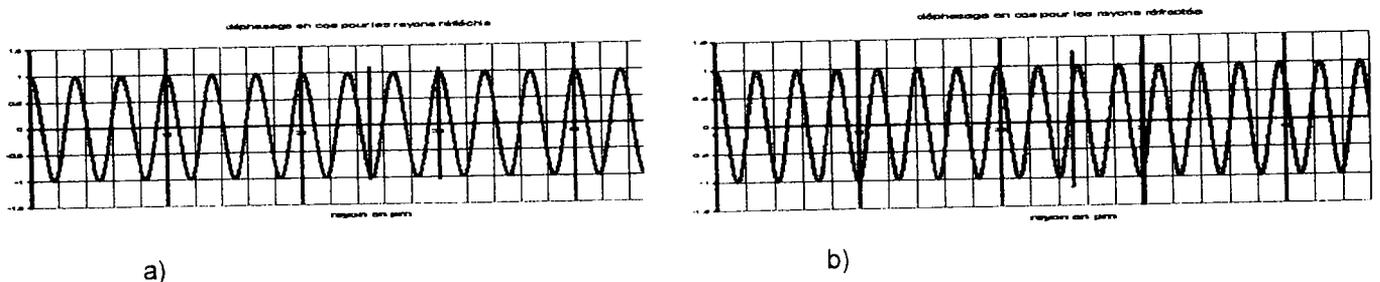


Figure 4 : Différence de marche (proportionnelle à phase) pour : a) la lumière réfléchie, b) la lumière réfractée en fonction du diamètre d'une goutte d'eau ( $n=1.33$ )

Lorsque la visibilité est égale à 1 les intensités résultantes issues des deux faisceaux sont constructives, lorsque la visibilité est égale à -1, les intensités sont destructives.

Les déphasages codent des informations sur la particule diffusante : diamètre, position, indice de réfraction. Cependant la mesure d'un déphasage absolue n'est pas possible, deux détecteurs doivent être utilisés, et l'information recherchée sera codée dans les différences de phase entre les deux détecteurs. En effet si deux détecteurs ponctuels sont positionnés aux angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$ , les différences de phase entre ces deux détecteurs pour les lumières réfléchies et réfractées s'écrivent :

$$\delta\phi_{refl} = \frac{2\pi\delta_{refl,\theta_1}}{\lambda} - \frac{2\pi\delta_{refl,\theta_2}}{\lambda} = \frac{2\pi d}{\lambda} \left\{ \left( \sin\left(\frac{\theta_1 - \alpha}{2}\right) - \sin\left(\frac{\theta_1 + \alpha}{2}\right) \right) - \left( \sin\left(\frac{\theta_2 - \alpha}{2}\right) - \sin\left(\frac{\theta_2 + \alpha}{2}\right) \right) \right\} \quad (1)$$

$$\delta\phi_{refr} = \frac{2\pi\delta_{refr,\theta_1}}{\lambda} - \frac{2\pi\delta_{refr,\theta_2}}{\lambda} = \frac{2\pi d}{\lambda} \left\{ \left( \sqrt{1+n^2 - 2n\cos\left(\frac{\theta_1 + \alpha}{2}\right)} - \sqrt{1+n^2 - 2n\cos\left(\frac{\theta_1 - \alpha}{2}\right)} \right) - \left( \sqrt{1+n^2 - 2n\cos\left(\frac{\theta_2 + \alpha}{2}\right)} - \sqrt{1+n^2 - 2n\cos\left(\frac{\theta_2 - \alpha}{2}\right)} \right) \right\} \quad (2)$$

le rapport de ces deux déphasages s'écrit :

$$\chi = \frac{\delta\phi_{refr}}{\delta\phi_{refl}} = \frac{\left( \left( \sqrt{1+n^2 - 2n \cos\left(\frac{\theta_1 + \alpha}{2}\right)} - \sqrt{1+n^2 - 2n \cos\left(\frac{\theta_1 - \alpha}{2}\right)} \right) - \left( \sqrt{1+n^2 - 2n \cos\left(\frac{\theta_2 + \alpha}{2}\right)} - \sqrt{1+n^2 - 2n \cos\left(\frac{\theta_2 - \alpha}{2}\right)} \right) \right)}{\left\{ \left( \sin\left(\frac{\theta_1 - \alpha}{2}\right) - \sin\left(\frac{\theta_1 + \alpha}{2}\right) \right) - \left( \sin\left(\frac{\theta_2 - \alpha}{2}\right) - \sin\left(\frac{\theta_2 + \alpha}{2}\right) \right) \right\}} \quad (3)$$

Ces déphasages dépendent linéairement du diamètre de la particule diffusante (équations (1) et (2)). Pour des détecteurs localisés à 65.42° et 67.57°, des gouttes d'eau (n=1.33), nous obtenons des pentes de 0.66°/µm et 0.22°/µm pour respectivement les lumières réfléchies et réfractées. Le rapport des déphasages est, d'après l'optique géométrique(3), indépendant de la taille de la particule diffusante.

Ce modèle simple d'optique géométrique permet de prévoir le premier ordre du comportement d'un PDA à points chauds. Cependant, ce modèle ne prend pas en compte des paramètres importants comme les dimensions de la lentille, la position réelle de la particule diffusante (défaut de mise au point), les effets dus à la diffraction, les dimensions finies des surfaces de détection, ....

#### 4) Modèle électromagnétique.

##### 4.1) Le modèle.

Le code utilisé a été développé pour simuler rigoureusement toutes les configurations d'imageries de particule. Il se décompose en trois parties :[5]

- En amont de la lentille, c'est un code basé sur la théorie de Lorenz-Mie Généralisée. Cette section du code permet de prédire le champ électromagnétique complexe sur la face d'entrée d'une lentille. Ce champ électromagnétique est fonction du faisceau laser (longueur d'onde, diamètre, position relative de la particule vis à vis du « col des faisceaux ») et de la position de l'optique de collection.
- La lentille. Cette section du code permet de prédire le champ électromagnétique complexe sur la face de sortie de la lentille. Dans cette étude, la lentille est supposée mince, son action est un pur déphasage.
- Le détecteur. Cette section du code permet de prédire le champ électromagnétique complexe dans le plan du détecteur. Le calcul d'une intégrale de Huygens-Fresnel permet de calculer le champ électromagnétique complexe en un point du détecteur en fonction de l'ensemble du champ électromagnétique dans le plan de sortie de la lentille.

##### 4.2) Points chauds avec une lentille

La configuration simulée est la suivante :

- 2 faisceaux en onde plane (diamètre du col 1m) de longueur d'onde  $\lambda=0.488 \mu\text{m}$
- demi-angle entre les faisceaux  $\alpha=5^\circ$
- collection à 66.5° par rapport à la bissectrice des faisceaux
- lentille de 60mm de diamètre, de focale 200mm
- Ecran à 400 mm de la lentille
- Particule d'eau (n=1.33) au centre du volume de mesure PDA à 400mm de la lentille, sur l'axe optique

Nous avons voulu, tout d'abord, déterminer la position des points chauds et leur intensité. La figure 5 présente les images de gouttes d'eau (n=1.33) de 50 ou 60 µm de diamètre,. Sur chacune de ces figures (5-a et 5-b) trois courbes sont tracées, correspondant à l'intensité si uniquement le faisceau  $f_1$  est actif (courbe rouge), si uniquement le faisceau  $f_2$  est actif (courbe verte), ou si les deux faisceaux sont actifs (courbe en bleue). La contribution réfractée est sur la gauche des figures, la contribution réfléchi est sur la droite. Une première remarque est que pour cette configuration les points chauds sont bien séparés. La position des points chauds correspond aux prédictions de l'optique géométrique. On retrouve bien, pour la particule de 50µm de diamètre que le point chaud de la réflexion est à 21µm et que le point chaud pour la réfraction est à -25µm. Une deuxième remarque concerne la différence d'intensité mesurée entre le faisceau 1(rouge, 71.5°) et le faisceau 2 (vert, 61.5°). Cette différence est due au fait que, dans une configuration plane, le détecteur n'est pas

positionné de façon symétrique par rapport aux deux faisceaux. Une troisième remarque est que l'on retrouve bien l'importance des interférences entre les lumières issues des deux faisceaux. Pour un diamètre de  $50\mu\text{m}$ , le point chaud réflexion disparaît tandis que le point chaud réfraction atteint une valeur maximum. On avait bien une visibilité de  $-1$  prédite par l'optique géométrique pour la réflexion et une visibilité proche de 1 pour la réfraction.

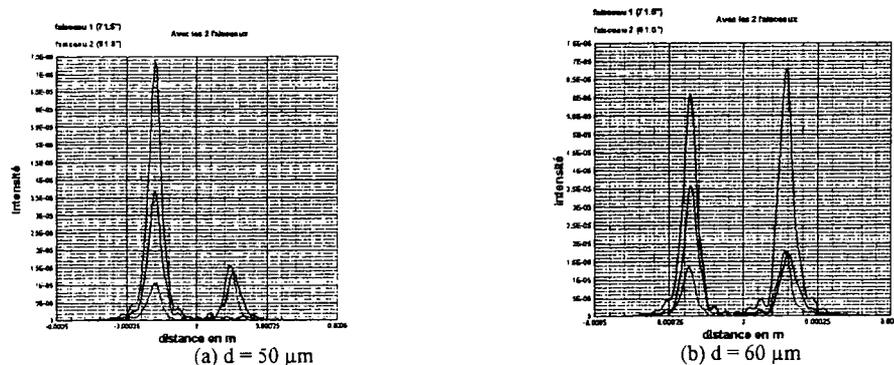


Figure 5: Images hors-axe de gouttes d'eau, éclairé par le faisceau  $f_1$  (vert),  $f_2$  (rouge) ou les deux faisceaux (bleu)

#### 4.3) Points chauds avec des masques.

Pour mesurer le déphasage entre deux signaux, il faut deux détecteurs. Pour faciliter les réglages optiques, ces deux détecteurs sont localisés derrière une même lentille, à laquelle un jeu de masques (diaphragmes) est ajouté. Ces masques vont modifier la formation de l'image, donc des points chauds.

Le premier effet du masque est de réduire l'intensité collectée et de modifier (élargir) la position des points chauds.

Lorsque des masques non centrés sont utilisés, un deuxième effet doit être pris en compte. L'hypothèse d'un éclairage par axial de la lentille n'est plus vérifiée, la position de l'image devient une fonction de la distance à l'axe des masques (effets dit de « focale effective »).[6]

La position optimum du détecteur est très sensible à la position des masques. Il nous faut trouver un compromis entre :

1. Une largeur de détection assez large pour éviter une image trop étalée
2. Une largeur de détection assez faible pour avoir une focale effective « constante sur cette largeur »
3. Des positions assez éloignées des détecteurs pour avoir une sensibilité suffisante des déphasages à la taille et à l'indice de la particule

Nous avons choisi deux ouvertures symétriques de part et d'autre du centre, de largeur  $7.5\text{ mm}$  et distantes centre à centre de  $15\text{ mm}$ .

#### 4.4) Détermination du déphasage entre signaux.

##### 4.4.1) Validation. Cas du PDA classique « planar »

Pour simuler des signaux réalistes, la procédure suivante est suivie. Pour une particule de taille donnée, l'intensité collectée par chaque masque est calculée pour 21 positions successives de la particule dans le volume de mesure. Le pas entre chaque déplacement correspond au  $1/7^{\text{ème}}$  de l'interfrange. Ces points sont interpolés par une fonction spline et centrée qui permet de déterminer avec une bonne précision les « passages à zéro ». Dans le cadre d'une configuration classique plane, les déphasages prédits par le code d'imagerie et par un code PDA classique STREU [1] ont été comparés. Les différents types de prédictions sont en parfait accord, la détermination du déphasage par imagerie sur 21 positions est valide.

##### 4.4.2) Prédiction

On peut étudier le déphasage relatif pour les 2 contributions réfléchies et réfractées. Ces deux contributions sont séparées par le biais d'une fente de  $16\mu\text{m}$  de large au centre de l'écran. la position de l'écran est défini par rapport à la focale effective des détecteurs (3 et 5) définis plus hauts. Cette position optimum est de  $399.66\text{ mm}$ .

Pour une particule de  $30\mu\text{m}$  de rayon, lorsque celle-ci se déplace, on retrouve bien un signal ayant deux « bouffées ». (Cf. figure7)



## THERMOMETRIE PAR ARC-EN-CIEL

S. Saengkaew (1 et 2), Loïc Méès (2) et G. Gréhan (2)

1) Excellence center in particle technology,  
Chulalongkorn University, Bangkok (Thaïlande)  
Sawitree\_s@coria.fr

2) LESP, UMR 6614/CORIA,  
CNRS/Université et INSA de Rouen, BP 12  
76 800 Saint Etienne du Rouvray (France)

### TITLE

Thermometry by rainbow

### ABSTRACT

The mastery of an atomised liquid combustion for energetic efficiency as well as for pollution in plane engine or car engine for example, impose to understand the physics of atomisation and evaporation of the droplets. To table up this challenge, several techniques have been developed. Among these techniques, the rainbow refractometry is particularly attractive by its sensitivity and flexibility. This technique could be applied to individual particles or cloud of particle, without additive to add and is sensitive to refractive index gradient (then sensitive to temperature and composition gradient). Moreover, it does not require expensive device. But the quality of the measurement is strongly dependent on the quality of the theoretical description of the properties of the light scattered around the rainbow angle. This study is devoted to the description and exploitation of rainbow signals (single and global) in the framework of the Nussenzveig theory.

### RESUME

La maîtrise de la combustion d'un liquide pulvérisé en terme de rendement énergétique et de pollution, telle que dans les moteurs automobiles et en avionique, impose de comprendre la physique de la pulvérisation, puis de l'évaporation des gouttes. Pour relever ce défi différentes techniques ont été utilisées. Parmi ces techniques, la réfractométrie d'arc-en-ciel est particulièrement attractive en raison de sa sensibilité et sa flexibilité. Cette technique peut s'appliquer à des particules individuelles ou des nuages, ne nécessite pas d'ajout de colorant. Elle est sensible au gradient d'indice (donc de température et de composition), et ne demande pas un matériel trop onéreux. Par contre la qualité de la mesure est dépendante de la qualité de la description théorique de la lumière diffusée aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel. L'étude présentée est dédiée à la description et à l'exploitation de signaux arc-en-ciel (simple et global) dans le cadre de la théorie de Nussenzveig.

## INTRODUCTION

La maîtrise de la combustion d'un liquide pulvérisé en terme de rendement énergétique et de pollution, dans les moteurs automobiles et en avionique par exemple, impose de comprendre la physique de la pulvérisation, puis de l'évaporation des gouttes. Depuis une ou deux décennies, les techniques optiques sont devenues un outil incontournable pour la mesure de la vitesse et de la taille des gouttelettes en écoulement. Ces travaux permettent de mieux comprendre, et de valider les modèles d'atomisation et de transport des gouttes. Cependant, la mesure de l'évaporation et de l'évolution thermochimique de ces gouttes est encore un défi, avec un fort potentiel d'application industriel.

Pour relever ce défi différentes techniques ont été utilisées : imagerie infrarouge<sup>(1)</sup>, PDA dual burst<sup>(2)</sup> et Dual mode<sup>(3)</sup>, imagerie des points chauds<sup>(4)</sup>, réfractométrie d'arc-en-ciel<sup>(5,6)</sup>, fluorescence induite par laser<sup>(7)</sup>, résonances morphologiquement dépendante<sup>(8)</sup>, ...

Parmi ces techniques, la réfractométrie d'arc-en-ciel est particulièrement attractive en raison de sa sensibilité et sa flexibilité. Cette technique peut s'appliquer à des particules individuelles ou des nuages, ne nécessite pas d'ajout de colorant, est sensible au gradient d'indice, et ne demande pas un matériel trop complexe. Par contre la qualité de la mesure est dépendante de la qualité de la description théorique de la lumière diffusée aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel.

L'objectif principal de notre contribution est de quantifier la qualité de l'inversion de signaux mesurés en arc-en-ciel simple et global. L'inversion d'un arc-en-ciel simple, issu d'une goutte unique, exige une prédiction rigoureuse de la structure haute fréquence dite de « ripples », de même que l'inversion d'un arc-en-ciel global, issu d'une section d'un nuage de gouttes, exige la prise en compte de l'intensité diffusée par différents type de rayons. Les qualités des prédictions des théories approchées d'Airy et Nussenzveig sont discutées vis à vis des prédictions rigoureuses issues des théories vectorielles de Lorenz-Mie et Debye.

Cet article est organisé comme suit. La section 2 est un rappel des différents outils théoriques utilisés pour décrire la lumière diffusée par une particule sphérique, principalement aux alentours de l'angle d'arc-en-ciel. La section 3 est dédiée à l'arc-en-ciel d'une particule individuelle tandis que la section 4 est dédiée à l'arc-en-ciel créé par un ensemble de goutte. La section 5 est une conclusion.

## CADRE THEORIQUE

Pour décrire la diffusion d'une onde plane ou d'un faisceau laser focalisé par une particule sphérique, l'outil théorique le plus puissant est la théorie de Lorenz-Mie<sup>(9)</sup>. Cette théorie est basée sur la résolution analytique des équations de Maxwell avec les conditions limites appropriées. L'extension aux cas de particules multicouches concentriques et de particules avec inclusions sphériques non centrées a été réalisé. Les résultats sont sous la forme de séries incluant les différents types d'interactions (réflexion externe, transmission directe, transmission après n réflexions interne.).

La théorie de Debye<sup>(10)</sup> peut être vue comme un post-traitement de la théorie de Lorenz-Mie qui permet, dans le cas d'une particule homogène, de séparer les différents types d'interaction de la lumière avec la particule (réflexion externe, transmission directe, transmission après n réflexions interne).

La théorie de Moment Angulaire Complexe (CAM), introduite par Nussenzveig<sup>(11)</sup>, consiste à intégrer analytiquement les séries de Debye pour un type d'interaction donné. Pour pouvoir effectuer cette intégration analytique, différentes approximations doivent être introduites en fonction du type d'interaction, de l'angle d'observation, de la taille de la particule. Ainsi pour décrire l'arc-en-ciel, cinq formules sont proposées, chacune correspondant à un domaine angulaire.

La théorie d'Airy est basée sur l'application de la loi de Huygens-Fresnel au front d'onde créé par réflexion interne. C'est l'approche la plus populaire pour l'interprétation des expériences mais aussi celle qui possède le domaine d'application le plus restreint.

Une étude comparative<sup>(12)</sup> de ces quatre approches nous a permis de démontrer que :

- (1) l'approche de Nussenzveig est en parfait accord avec celles de Lorenz-Mie et Debye vis à vis de la position des pics surnuméraires et de leur intensité.
- (2) La théorie d'Airy décale rapidement les positions des pics surnuméraires et sur-estime fortement leur intensité.
- (3) L'approche de Nussenzveig, lorsque les interférences entre les rayons réfléchis à l'extérieur de la particule et les rayons ayant subi une réflexion interne sont pris en compte, décrit la

structure de ripples avec une précision proche de celle de la théorie de Lorenz-Mie pour un coût calcul équivalent à celui d'Airy.

Dans la suite de cet article, des signaux « expérimentaux simulés », calculés dans le cadre de la théorie de Lorenz-Mie, seront analysés à l'aide de la théorie de Nussenzveig. La qualité de l'inversion sera ainsi quantifiée.

### ARC-EN-CIEL INDIVIDUEL

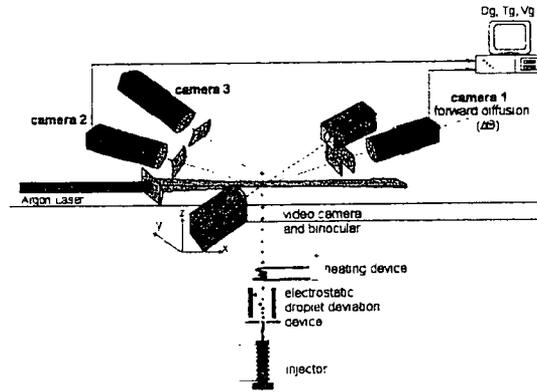


Figure 1 : Schéma d'une expérience d'arc-en-ciel pour une particule individuelle

Figure 1 présente le schéma d'une expérience d'arc-en-ciel sur une particule individuelle (une ligne de gouttes identiques). Cette expérience est celle développée à ONERA de Toulouse<sup>(13)</sup>. Dans cette expérience trois caméras sont utilisées. La première située en diffusion avant à 30° est dédiée à la mesure de la taille de la particule. A cet angle, la diffusion est supposée principalement indépendante de l'indice de réfraction et donc insensible à l'existence d'un gradient d'indice. La seconde caméra est dédiée à l'enregistrement de l'arc-en-ciel principal tandis que la troisième caméra est dédiée à l'enregistrement du second arc-en-ciel.

Dans les études précédentes, l'analyse consistait à mesurer la fréquence moyenne du signal, pour en déduire le diamètre de la particule par un calcul d'optique géométrique. La précision de cette mesure, pour une particule homogène, est de l'ordre de 2  $\mu\text{m}$  pour des particules d'un diamètre de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$ . Nous proposons ici d'effectuer l'analyse dans le cadre de la théorie de Nussenzveig. La figure d'interférence est supposée correspondre aux interférences des rayons réfléchis externe et transmis au travers de la particule. La figure 2a correspond au diagramme de diffusion entre 27° et 33° d'une goutte d'eau de 100  $\mu\text{m}$ . La figure 2b correspond à la transformée de Fourier de ce signal. Les courbes en vert correspondent aux prédictions de la théorie de Lorenz-Mie (signal expérimental, caméra 1, simulé par LMT) tandis que les courbes en rouge, bleu et rose correspondent aux prédictions de la théorie de Nussenzveig (la mesure). La mesure est réalisée suivant la procédure suivante : 1) le diamètre de la particule est ajusté pour avoir un accord des fréquences du spectre FFT, 2) l'indice est ajusté pour obtenir un accord en phase des diagrammes. Figure 2a, la courbe rouge correspond au diagramme Nussenzveig correspondant aux données de calcul de diagramme Lorenz-Mie. Les différences entre les courbes verte et rouge correspondent au rôle d'interaction d'ordre élevé (réflexion interne). Les courbes bleu et rose correspondent à d'autres couples mesurés diamètre/indice qui donne un bon accord en diffusion avant ( $d/m$ : 100/1.33, 100.9/1.33, 100.9/1.337), en fréquence et en phase. bien que la qualité de cet accord se dégrade avec l'augmentation de l'angle de diffusion (voir figure 2c qui est un agrandissement de la figure 2a).

Le diamètre et l'indice obtenus en diffusion avant sont utilisés pour calculer la lumière diffusée aux alentours de l'arc-en-ciel principal. Puis l'indice de réfraction est ajusté pour obtenir le meilleur accord entre signal expérimental simulé (LMT, caméra 2) et mesure (signal recalculé à partir des résultats d'inversion par la théorie de Nussenzveig). Sur la figure 2d sont tracés les différents arcs-en-ciel correspondant aux trois couples possibles diamètre/indice extrait en diffusion avant. Seul une valeur de l'indice est susceptible de donner un accord simultanément en diffusion avant et arrière : 1.33, quand au diamètre de 100.9  $\mu\text{m}$ , il produit un diagramme d'arc-en-ciel en opposition de phase : seul le couple  $d = 100 \mu\text{m}$ ,  $m = 1.33$  est en accord en diffusion avant et arrière, en fréquence et en phase.

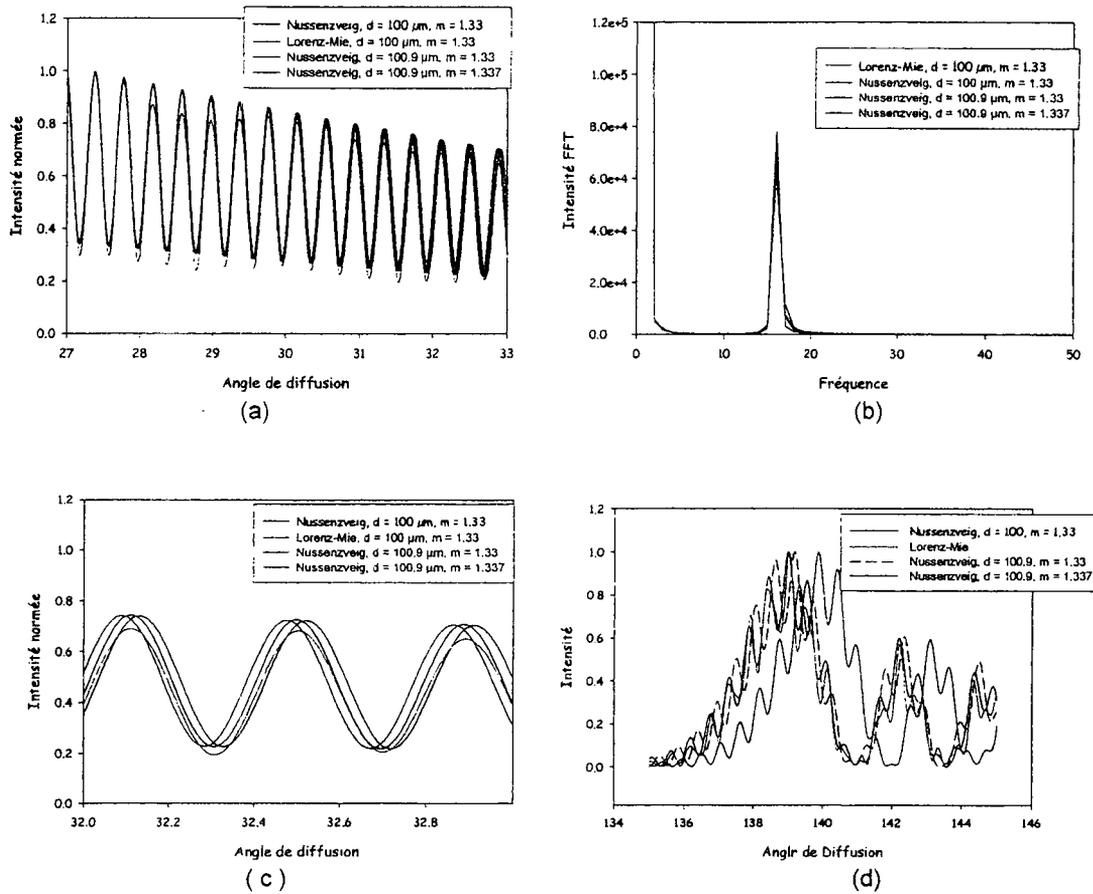


Figure 2 : 2a : diagrammes en diffusion avant.  
 2b : Transformées de Fourier des diagrammes avants  
 2c : agrandissement des diagrammes avants aux angles élevés  
 2d : diagrammes arrières associés.

### ARC-EN-CIEL GLOBAL

La réfractométrie globale d'arc-en-ciel a été introduite par l'équipe de VKI<sup>(6)</sup> afin de résoudre certaines difficultés de la réfractométrie d'arc-en-ciel classique (principalement la sensibilité à la non sphéricité). Dans cette technique les arcs-en-ciel de plusieurs gouttes (plusieurs dizaines à plusieurs centaines) sont collectés simultanément comme pour l'arc-en-ciel naturel. Le signal résultant est la somme en intensité des contributions de chaque particule (hypothèse de position aléatoire des particules). Dans ce processus la structure de ripple disparaît, ainsi que les arcs surnuméraires qui sont remplacés par une structure continue. L'indice de réfraction ainsi que la distribution granulométrique sont extraites de ce signal. La figure 3 présente un tel signal correspondant à un nuage de goutte d'eau (m=1.33) d'un diamètre moyen de 50 μm avec une rms de 30.

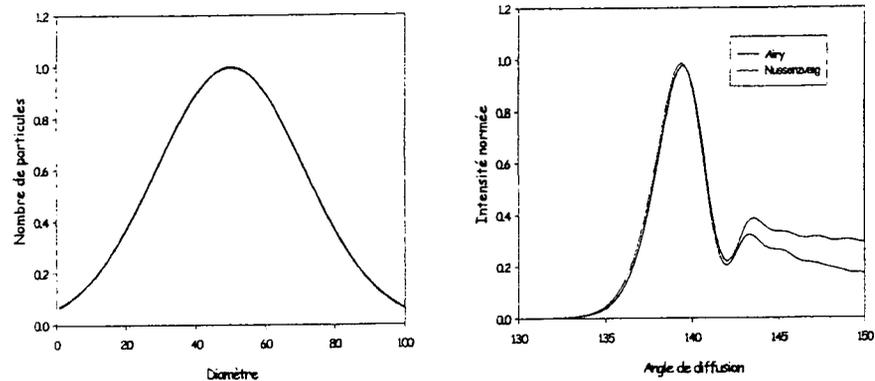


Figure 3 : Distribution granulométrique et arc-en-ciel global associé. L'arc-en-ciel associé est calculé dans le cadre de la théorie d'Airy (courbe en bleu) et de Nussenzveig (courbe rouge).

Les prédictions de la théorie de Nussenzveig sont confondues avec les prédictions issues de la théorie de Lorenz-Mie, et ceux sur un large domaine angulaire.

## CONCLUSION

Dans le cadre de la théorie de Nussenzveig, les arcs-en-ciel individuels et globaux peuvent être analysés avec la précision de la théorie de Lorenz-Mie pour un coût de calcul équivalent à celui de la théorie d'Airy

## REFERENCES

- (1) C. Amiel, Application de techniques optiques à l'étude du comportement dynamique et thermique de gouttes en interaction avec une paroi chauffée, these à SUPAERO, mars 2003
- (2) C. Tropea, T.H. Xu, G. Gréhan, F. Onofri and P. Haugen, Dual mode Phase Doppler Anemometry, Proceedings of the seventh International Symposium on applications of laser techniques to fluid mechanics, Lisbonne (Portugal), paper 18-3, July 11-14, 1994.
- (3) F. Onofri, T. Girasole, G. Gréhan, G. Gouesbet, G. Brenn, J. Domnick, T.H. Xu et C. Tropea, Phase Doppler anemometry with dual burst technique for measurement of refractive index and absorption coefficient simultaneously with size and velocity, Part. Part. Syst. Charact. 112-124, 1996.
- (4) Glare spot
- (5) J.P.A.J. van Beeck et M.L. Riethmuller, Nonintrusive measurements of temperature and size of single falling raindrops, Appl. Opt, 34, 1633-1639, 1995
- (6) J.P.A.J van Beeck, D. Giannoulis, L. Zimmer, et M.L. Riethmuller, Global rainbow thermometry for droplet-temperature measurement, Opt. Lett., 24, 1696-1698, 1999.
- (7) P. Lavieille, Etude expérimentale du comportement aérodynamique de gouttes en écoulement réactif ou non par l'utilisation de la fluorescence induite par laser à deux couleurs, thèse de l'Université Henri Poincaré, Nancy, 2001
- (8) G. Chen, Md.M. Mazunder, R.K. Chang, J.C. Swindal et W.P. Acker, Laser diagnostic for droplet characterisation : application of morphology dependent resonances, Prog. Energy Combust. Sci. 22, 163-188, 1996.
- (9) G. Gouesbet et G. Gréhan, Generalized Lorenz-Mie theories, from past to future, Atomization and sprays, 10, 277-333, 2000.
- (10) G. Gouesbet, Debye series formulation for generalized Lorenz-Mie theory with the Bromwich method, Part. Part. Syst. Charact., 20, 382-386, 2003.
- (11) H.M. Nussenzveig, High-frequency scattering by a transparent sphere. I Direct reflection and transmission, Journal of mathematical Physics, 10, 82-124, 1969, and II Theory of the rainbow and the glory, Journal of mathematical Physics, 10, 125-176, 1969.
- (12) S. Saengkaew, L. Méès et G. Gréhan, Article proposé à Optics Communications.
- (13) B. Frackowiak, G. Lavergne, G. Gréhan et L. Méès, Improvement of the rainbow technique in order to estimate the thermal gradient inside a droplet,

## Néphélomètre à double polarisation : mesures obtenues avec différents aérosols

Daniel DAUGERON<sup>(1)</sup>, Jean-Marc ANDRE, Pascal PERSONNE<sup>(1)</sup>, Gérald BRUN<sup>(2)</sup>

<sup>(1)</sup> LaMP : Laboratoire de Météorologie Physique / UMR CNRS 6016,  
Université Blaise Pascal Clermont-Ferrand  
daugeron@monium.univ-bpclermont.fr

<sup>(2)</sup> LTSI : Laboratoire Traitement du Signal et Instrumentation / UMR CNRS 5516  
Université Jean Monnet Saint-Etienne  
brun@univ-st-etienne.fr

### 1- Introduction

L'atmosphère contient en suspension une multitude de particules. Les particules nuageuses peuvent être des gouttelettes d'eau de forme sphérique avec une interface lisse, ou des cristaux de glace de forme simple (cristaux hexagonaux par exemple) ou encore des cristaux de glace de forme complexe avec une interface rugueuse (cas des graupels). L'air non nuageux contient également en suspension des aérosols de nature, de taille et de forme variées. Ces aérosols peuvent être d'origine naturelle ou liée à l'activité humaine.

Le rôle de ces particules sur le rayonnement solaire ou terrestre, à travers les phénomènes de diffusion et d'absorption, est un facteur déterminant pour résoudre le bilan thermique de l'atmosphère et aussi pour améliorer l'interprétation des images satellitaires.

Pour appréhender la diffusion de ces particules, la théorie de Mie est utilisée pour les objets plus ou moins sphériques. Pour les formes plus complexes des cristaux de glace, la méthode de « Ray Tracing » permet de quantifier la diffusion de la lumière par de tels objets. Dans les deux cas l'interface est considérée comme lisse. Jusqu'à présent le paramètre mesuré était la brillance c'est-à-dire la puissance totale diffusée. A l'aide de ce type de mesure et de la théorie de Mie, un grand nombre d'appareils déduisent la granulométrie à condition que les particules soient sphériques et de nature (indice de réfraction) connue.

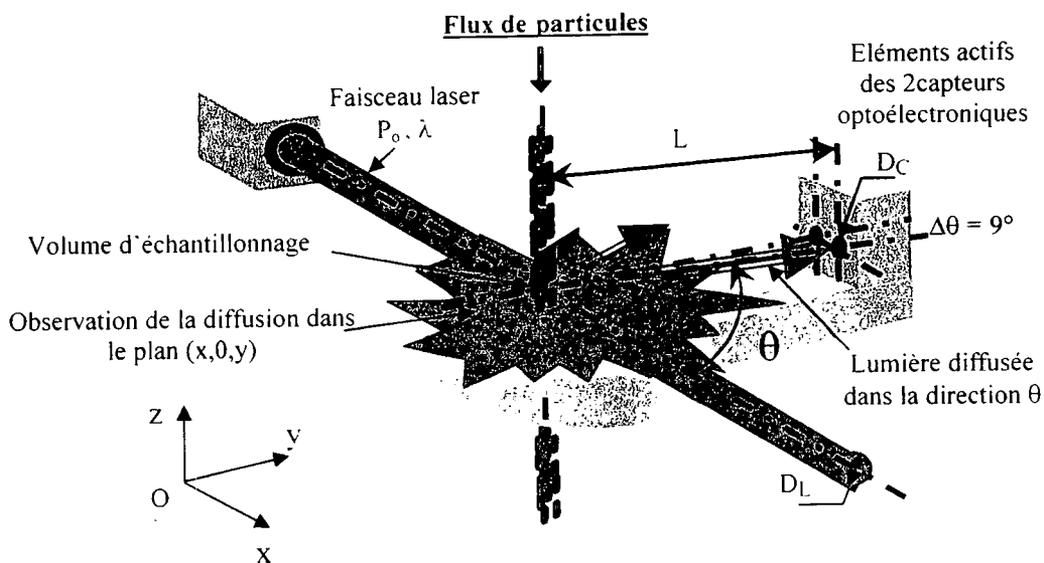
Une des caractéristiques de la lumière diffusée est qu'elle est polarisée même si l'onde incidente ne l'est pas. C'est cette propriété qui sera étudiée afin de mieux comprendre la diffusion de la lumière. Un appareil permettant de mesurer simultanément la diffusion suivant deux directions orthogonales entre elles a donc été conçu et réalisé au Laboratoire de Météorologie Physique (LaMP).

### 2- Néphélomètre de laboratoire à double polarisation

#### 2-1 Caractéristiques et description de l'appareil

La particularité du néphélomètre de laboratoire est que la résolution angulaire, c'est à dire l'écart angulaire minimal entre deux mesures, est de 1 degré entre 10 et 171°. La mesure de la diffusion est directe, c'est à dire qu'aucun dispositif optique de renvoi comme des miroirs ou autres n'est utilisé. Nous pouvons ainsi observer simultanément la polarisation de la lumière diffusée suivant deux plans, l'un parallèle au plan d'observation, l'autre perpendiculaire. La mesure pour chaque angle est instantanée, par conséquent, le résultat n'est pas l'intégration sur plusieurs angles d'observation ou sur le temps. L'appareil est capable de mesurer des puissances optiques de l'ordre de quelques dizaines de picowatts.

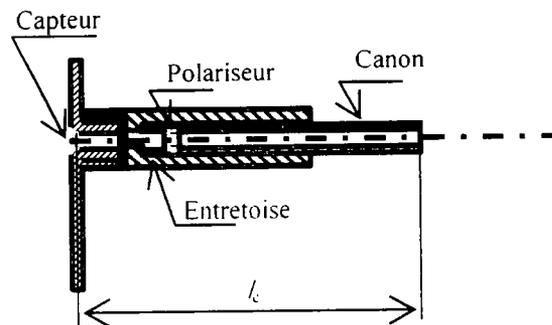
Le principe de fonctionnement est le suivant : les particules à étudier sont éclairées à l'aide d'une source laser. L'intersection des particules avec le faisceau laser produit une lumière diffuse au niveau du volume d'échantillonnage (figure 1). La puissance de la lumière diffusée est mesurée en fonction de l'angle  $\theta$  avec deux capteurs optoélectroniques identiques tournant autour du volume d'échantillonnage ( $V = 0.67 \text{ cm}^3$ ). Le parcours entre 10 et 171° se fait en 7,6 s. La polarisation de la lumière diffusée est mesurée simultanément à l'aide de ces deux capteurs, suivant deux directions de polarisation, l'une parallèle et l'autre perpendiculaire au plan d'observation de la diffusion.



Avec :  $D_L$  diamètre du faisceau laser incident ( $10\text{ mm}$ ).  
 $P_0$  puissance du faisceau laser incident ( $1,1\text{ W}$ ).  
 $\lambda$  longueur d'onde du faisceau laser incident ( $802\text{ nm}$ ).  
 $\theta$  angle d'observation par rapport au faisceau laser incident.  
 $D_C$  diamètre du capteur ( $0,5\text{ mm}$ ).  
 $L$  distance entre le capteur et le volume de diffusion ( $150\text{ mm}$ ).

**Figure 1 :** Schéma de principe du néphélomètre de laboratoire avec 2 capteurs.

Pour observer la diffusion provenant uniquement du volume d'échantillonnage, chaque capteur est muni d'un canon (figure 2) (ANDRE, 2000). Celui-ci est constitué d'un assemblage de plusieurs pièces mécaniques afin de limiter le champ de vision du capteur.



**Figure 2 :** Schéma du canon. La taille de la surface collectrice est inférieure à celle du capteur. La longueur du canon a été calculée de façon à ce que la lumière captée provienne seulement du volume d'échantillonnage.

## 2-2 Synoptique et fonctionnement du néphélomètre de laboratoire

Le néphélomètre de laboratoire comporte plusieurs éléments décrits en détail par DAUGERON (2001). Simplement on distingue (figure 3) :

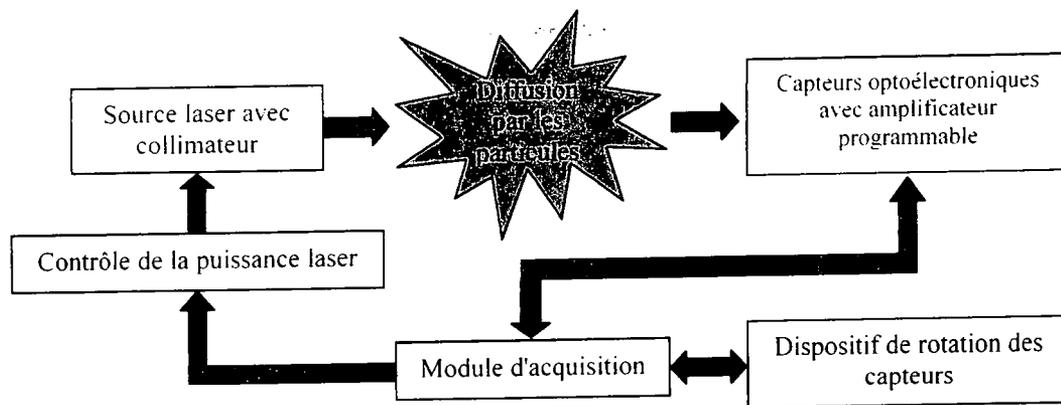


Figure 3 : Schéma synoptique du néphélomètre.

- Une source laser qui a pour but d'éclairer les particules à observer. La source laser est une diode laser fibrée. Sa puissance, en sortie de l'optique de collimation, est 1,1 Watt et la longueur d'onde 802 nm à  $\pm 1$  nm. Le profil du faisceau laser doit être du type créneau. La lumière du faisceau laser ne doit pas être polarisée ou très faiblement polarisée.

- Les détecteurs optoélectroniques du néphélomètre de laboratoire sont des modules constitués d'une diode à avalanche. Lors de la diffusion des particules, les capteurs optoélectroniques délivrent une tension de sortie proportionnelle à la puissance optique reçue. La puissance diffusée varie en fonction de l'angle d'observation. Cette variation a lieu sur plusieurs décades. On peut donc s'attendre à des tensions qui peuvent être très faibles en sortie du capteur. Pour cette raison nous avons inséré dans les modules optoélectroniques un amplificateur d'instrumentation programmable (gain 1, 10, 100, 1000).

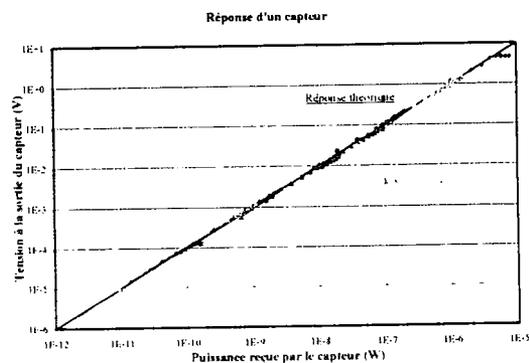


Figure 4 : Réponse théorique et mesurée d'un capteur avec son amplificateur programmable.

L'avantage de ces ensembles capteur plus amplificateur est que leur domaine d'application est relativement large et linéaire, c'est-à-dire que l'on peut effectuer des mesures pour des puissances optiques variant de quelques microwatts à quelques dizaines de picowatts (figure 4). La sensibilité de ce capteur est de l'ordre de  $10^6$  V/W. C'est le module d'acquisition qui commande l'amplification en fonction de l'amplitude de la tension de sortie de l'ensemble capteur-amplificateur. Lorsque le signal de sortie de l'ensemble est trop élevé malgré le gain de l'amplificateur égal à 1 (minimal), le module d'acquisition injecte une tension au bloc d'alimentation laser afin de diminuer la puissance du faisceau laser incident. Cela permet de nous adapter aux phénomènes physiques et ainsi, d'obtenir un signal électrique exploitable pour les différents angles d'observation.

- Un dispositif électromécanique est utilisé afin de permettre la rotation des capteurs autour du volume d'observation des particules.
- Un module d'acquisition permet d'une part d'acquérir les signaux des détecteurs et d'autre part de gérer le fonctionnement et l'utilisation du néphélomètre.

### 3- Exemples et mesures

Les paramètres extraits de nos mesures sont les 2 puissances recueillies suivant les deux directions de polarisation orthogonales ( $i_{\perp}$  et  $i_{\parallel}$ ) en fonction de l'angle. Avec ces mesures, le degré de polarisation ( $\circ P$ ) peut être calculé en fonction de l'angle.

$$\circ P = \frac{i_{\perp} - i_{\parallel}}{i_{\perp} + i_{\parallel}}$$

Dans ce paragraphe, deux types de résultats seront présentés : tout d'abord ceux obtenus avec des gouttelettes de différents liquides puis ceux obtenus avec des poudres. Dans le cas des gouttelettes, les particules sont évidemment de forme sphérique et l'interface est lisse. L'interprétation de ces mesures pourra se faire à l'aide de la théorie de Mie (cf. 3-3). Par contre dans le cas des poudres la forme des particules est très irrégulière. Dans certains cas ces particules peuvent même s'agglomérer entre elles pour former des agrégats. L'interprétation avec d'autres théories (par exemple Ray-Tracing) reste très difficile.

#### 3-1 Cas des gouttelettes de forme sphérique et lisse

A l'aide d'un même atomiseur, des gouttelettes d'eau et de DEHS (Di-Ethyl-Hexyl-Sebaçate) ont été analysées (figure 5).

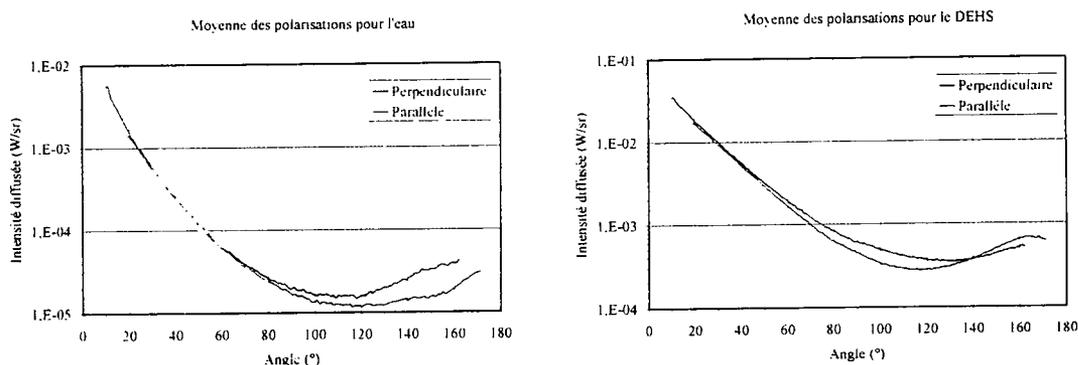
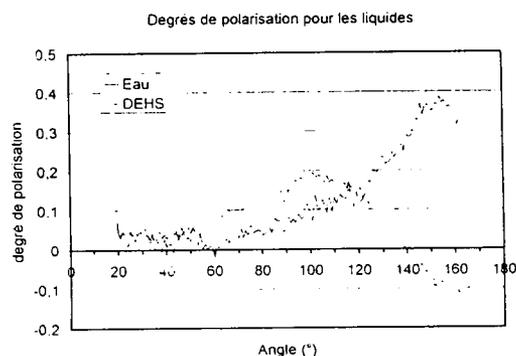


Figure 5 : Indicatrices de diffusion mesurées suivant 2 directions de polarisation orthogonales entre elles, pour l'eau et le DEHS.

On constate que les gouttelettes de DEHS diffusent plus que l'eau. Pour les angles inférieurs à environ  $60^\circ$ , l'énergie diffusée est la même quelle que soit la polarisation. Pour ces angles, le degré de polarisation sera donc voisin de 0. Ceci est cohérent avec la théorie de la diffusion de Mie. Ces courbes montrent aussi que l'intérêt de ce type de mesures se situe pour les angles importants ( $>80^\circ$ ) et en rétro diffusion.

Dans le cas de l'eau, l'énergie diffusée dans la direction parallèle est toujours inférieure à celle diffusée dans la direction perpendiculaire. En ce qui concerne le DEHS, le comportement est très différent. On constate que les 2 courbes se croisent à  $140^\circ$ . Il apparaît aussi un maximum sur la composante parallèle à environ  $165^\circ$ . Comme le laissent présager ces courbes, les évolutions du degré de polarisation en fonction de l'angle (figure 6) sont très différentes pour des angles supérieurs à  $60^\circ$  selon les 2 liquides.

Figure 6 : Degré de polarisation mesuré pour l'eau et le DEHS.



Le comportement du degré de polarisation semble donc être une "signature" du liquide diffusant.

### 3-2 Cas des poudres de forme irrégulière

Deux poudres ont été analysées : la suie de carbone et un pollen de lycopode. Dans le cas de la suie (figure 7) les particules ont des formes irrégulières et anguleuses. Ces particules peuvent s'agglomérer entre elles. Le paramètre taille des objets est difficile à définir mais celle-ci est très dispersée. Au contraire, la photographie de la poudre de lycopode (figure 7) révèle que la population de ce pollen est très monodispersée ( $25\mu\text{m} < d < 40\mu\text{m}$ ). La forme des spores n'est pas sphérique mais tétraédrique. L'une des faces est, généralement, plus convexe que les trois autres (DORVAULT, 1995). La surface extérieure présente, au niveau des points d'intersection, de très petites proéminences.



Figure 7 : Photographies de la suie de carbone (à droite) et de la poudre de lycopode (à gauche).

Le chargement en particules du jet d'air a été effectué à l'aide d'un même disperseur de poudre.

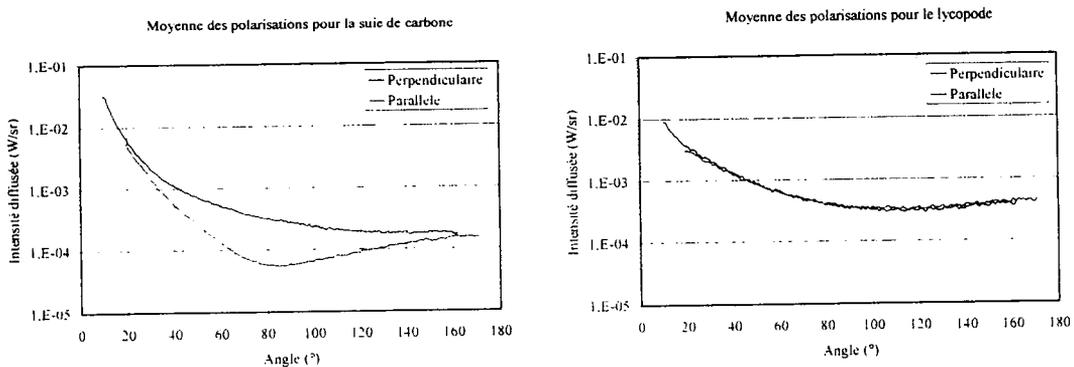
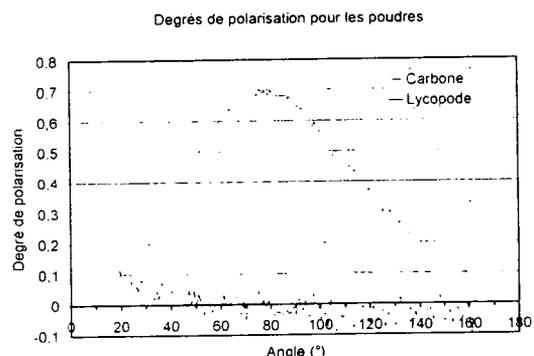


Figure 8 : Indicatrices de diffusion mesurées suivant 2 directions de polarisation orthogonales entre elles, pour du carbone et du lycopode.

Les mesures (figure 8) montrent là aussi un comportement totalement différent. La variation de l'intensité diffusée dans le cas du lycopode est moins importante que dans le cas du carbone. De plus, pour le lycopode, l'intensité diffusée est la même quelle que soit la polarisation. Cette courbe laisse présager que ces particules sont très absorbantes.

Figure 9 : Degré de polarisation mesuré pour le carbone et le lycopode.



Le degré de polarisation reste donc proche de 0 dans le cas du lycopode. Par contre la polarisation atteint 70 % à environ 80° dans le cas du carbone. Ces résultats sont tout à fait cohérents avec ceux obtenus à l'aide de l'appareil PROGRA2 du Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement (RENARD et al). Comme dans le cas des différents liquides, on constate donc que la mesure de la lumière diffusée selon différentes directions de polarisation apporte des informations supplémentaires.

### 3-3 Exemple d'inversion de la mesure

Dans ce paragraphe les mesures utilisées (figure 10 a) sont celles recueillies dans une chambre à brouillard. Les gouttelettes d'eau sont certainement de taille supérieure à celles générées par l'atomiseur et dont les mesures ont été décrites dans le paragraphe précédent. Parallèlement à notre appareil, le néphélomètre polaire ainsi qu'un FSSP du LaMP effectuaient simultanément des mesures. Les descriptions de ces essais et des résultats des intercomparaisons entre les paramètres physiques issus de ces trois appareils sont développées par ANDRE (2000). La méthode d'inversion (OSHCHEPKOV et al, 1993) a été appliquée pour calculer la distribution en volume des gouttelettes de diamètre compris entre 0,3 et 30  $\mu\text{m}$ . Trois distributions ont été obtenues en inversant indépendamment les deux polarisations et aussi la somme des polarisations. Sur la figure 10 b on constate qu'entre 0,6 et 30  $\mu\text{m}$  les trois distributions obtenues par les inversions sont cohérentes entre elles.

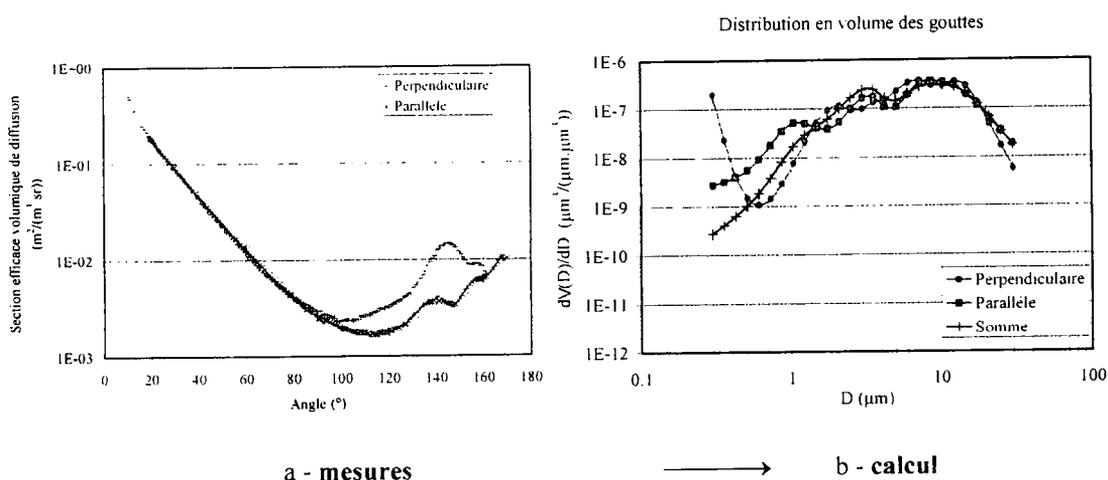


Figure 10 : a – indicatrices de diffusion mesurées dans un brouillard d'eau  
b – résultat de l'inversion : distribution des gouttes en volume.

A partir du spectre, les indicatrices de diffusion ont pu être calculées théoriquement (Théorie de Mie) pour les deux polarisations. A l'aide de ces 2 indicatrices de diffusion estimées, le degré de polarisation a pu être à son tour calculé. La comparaison entre ce paramètre ainsi restitué et directement mesuré est représentée sur la figure 11. L'accord est tout à fait satisfaisant.

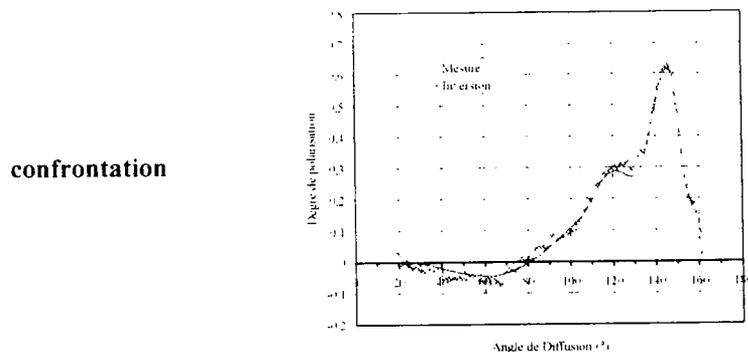


Figure 11 : Comparaison du degré de polarisation mesuré et calculé.

Ce degré de polarisation de l'eau a tendance, dans ce cas, à être légèrement négatif en diffusion avant, puis complètement et fortement positif au delà de 80°.

#### 4- Conclusions

Ce néphélomètre de laboratoire permet de mesurer les indicatrices de diffusion suivant 2 directions de polarisation orthogonales entre elles. Dans le cas de jets d'air chargés de fortes concentrations de particules il est parfaitement opérationnel. Le degré de polarisation est déduit en fonction de l'angle de diffusion. Ce dernier paramètre se révèle être très différent au delà de  $50^\circ$  suivant le type de particules. Dans le cas de gouttes sphériques, ces données sont indispensables pour valider les méthodes d'inversion qui tentent de déduire non seulement la granulométrie des particules mais aussi leur nature à l'aide de la détermination de l'indice de réfraction. Dans le cas de particules de forme non sphérique et complexe, il n'existe pas de méthode simple de calcul de la diffusion. Seules des mesures permettront d'inventorier cette caractéristique en fonction du type des particules. Cependant ces mesures devront identifier différents paramètres d'influence tels que l'orientation de ces particules dans l'écoulement, l'influence de l'agglomération de ces particules ou encore l'indice de réfraction dépendant de la taille etc. Ces mesures couplées à ces méthodes d'inversion trouveront de nombreux domaines d'application. Parmi ceux-ci on peut citer le domaine industriel pour identifier et quantifier les particules dans les écoulements, mais aussi le domaine météorologique pour les interprétations des images satellitaires, pour les études sur l'environnement dans la troposphère et la stratosphère, etc.

#### 5- Bibliographie

ANDRE, J.M., 2000 : "Etude expérimentale de l'indicatrice de diffusion des particules non-sphériques", Thèse, Université Blaise Pascal Clermont II.

DAUGERON, D, 2001 : "Réalisation d'un néphélomètre de laboratoire pour l'étude des propriétés radiatives de la lumière diffusée par les aérosols", Mémoire CNAM.

DORVAULT, F., 1995 : L'Officine, 23<sup>e</sup> ed., Paris : Vigot, 2089 pages.

OSHCHEPKOV S.L., O.V. DUBOVIK, T.V. LAPYONOK, 1993 : "A method of numerical solution of linear inverse problems at the loge normal noise distribution. The estimation of aerosol size distributions", IRS-92, Current problems in Atmospheric Radiation, Hampton, USA, A. Deepak Publishing, 334-337.

RENARD J.B., D. DAUGERON, P. PERSONNE, G. LEGROS, J BAILLARGEAT, E. HADAMCIK and J.C WORMS, 2004 : « Optical properties of randomly distributed soot improved polarimetric and brightness scattering functions », publication acceptée à Appl.Opt.

#### REMERCIEMENTS

Nous remercions Monsieur François FAURE du Laboratoire des Magmas et Volcans de l'Université Blaise Pascal de CLERMONT-FERRAND II pour la réalisation des photographies des aérosols.

Nous remercions aussi Messieurs Denis BOULAUD et François GENSDARMES de l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire de SACLAY pour leurs conseils et leurs aides. Enfin sans Monsieur David LEDUR de la société ECOMESURE, les mesures n'auraient pas été possibles.

# LE VIBRO-GENERATEUR D'AEROSOLS HOMOGENES

N. Zainoun, J.M. Chicheportiche, J.P. Renaudeau

## Fluides et Applications

ESPCI-CNAM, 5 Bd Descartes, 77420 Champs sur Marne  
[fluides@escpi.cnam.fr](mailto:fluides@escpi.cnam.fr)

### TITLE

The vibrating spinning disk

### ABSTRACT

The production of heterogeneous drops with a high speed spinning disk results from a partially random natural instability which develops along the jets formed at the edge of the disk. When we impose an artificial disturbance to the liquid flow, the fragmentation of the jets is organized, finally, the size of the produced drops is controlled. A generator of monodispersed aerosols was developed, using as source of disturbance, a piezoelectric actuator imposing to the disk an axial periodic movement, or teeth symmetrically disposed at the periphery of the disk. The currently developed generator allows to produce droplets of diameters between 50  $\mu\text{m}$  and 1 mm with a relative standard deviation less than 0.1. The flow rate, that is function of the drop size, goes from 0.5  $10^{-6}$  to 4.0  $10^{-6}$   $\text{m}^3/\text{s}$ . The dynamic viscosity goes from 0 to 50  $\text{mPa}\cdot\text{s}^{-1}$  and the surface tension goes from 20 to 80  $\text{N}/\text{m}$ .

### RESUME

La production de gouttes hétérogènes à partir de disques tournant à grande vitesse résulte d'une instabilité naturelle partiellement aléatoire qui s'amplifie le long des jets jusqu'à rupture de ceux-ci. L'excitation des jets par une perturbation contrôlée permet d'organiser la fragmentation et d'obtenir des aérosols homogènes. Un nouveau générateur d'aérosols monodispersé, utilisant comme source de perturbation, soit une cellule piézo-électrique imposant au disque un mouvement périodique axial, soit des dents symétriquement réparties à la périphérie du disque et dans son plan, permet de pulvériser des liquides dont la viscosité peut atteindre  $50\text{mPa}\cdot\text{s}^{-1}$  et la tension superficielle est comprise entre 20 et 80  $\text{N}/\text{m}$  ; les diamètres des gouttes peuvent varier entre 50  $\mu\text{m}$  et 1 mm. Avec une déviation standard relative inférieure à 0.1. Les débits vont de 0.5  $\text{cm}^3/\text{s}$  à 4  $\text{cm}^3/\text{s}$ , en fonction de la taille des aérosols.

## 1. La génération naturelle d'aérosols à l'aide de disques tournant lisses dans la zone de formation de ligaments.

Lorsqu'on injecte un liquide au centre d'un disque tournant, celui-ci s'étale sur le disque et peut se disperser à sa périphérie selon trois processus différents : lorsque le débit est faible, on observe la formation de gouttes individuelles (fig.1), à débit moyen il se forme des ligaments qui se résolvent ensuite en gouttes (fig.2), enfin à grand débit, une nappe liquide s'étend au delà des limites du disque,

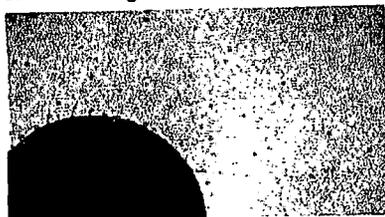


Figure 1 : formation de gouttes

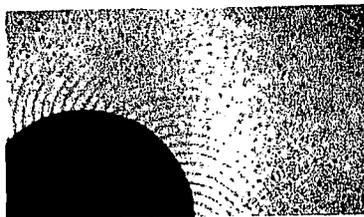


Figure 2 : formation de ligaments



Figure 3 : formation de films

puis se résout directement en gouttes (fig.3). Les trois zones de fonctionnement ont été décrites par plusieurs auteurs, Hinze, Tanasawa, Matsumoto, Leteurtris, Chicheportiche et peuvent être caractérisées en fonction du rayon du disque R, de la vitesse angulaire  $\omega$  du disque, du débit volumique  $q_v$  et des propriétés du fluide, viscosité dynamique  $\mu$ , masse volumique  $\rho$  et tension superficielle  $\sigma$  par trois nombres sans dimension :  $Re_E = \frac{\rho q_v}{R\mu}$ ,  $Re_T = \frac{\rho\omega R^2}{\mu}$  et  $Y = \frac{\mu}{\sqrt{\rho\sigma R}}$  (fig.4).

La zone la plus intéressante est la zone de formation de ligaments, à laquelle nous nous intéressons ici. Dans une représentation  $Re_E=f(Re_T)$ , utilisant les coordonnées logarithmiques, cette zone peut être représentée d'après Leteurtris pour chaque valeur de Y par un triangle limité par les trois droites d'équations  $Re_E Re_T Y^{2.26} = 1,73$ ,  $Re_E Re_T^{0.596} Y^{1.77} = 1,35$  et  $Re_E Re_T^{-1.44} Y^{-2.68} = 905$ . Dans cette zone, la dégénérescence des ligaments en gouttes résulte d'une instabilité naturelle, semblable à celle décrite pour les ligaments simples issus d'un orifice, qui se propage et s'amplifie le long du jet jusqu'à le couper et former à chaque période une ou plusieurs gouttes. Comme on peut le remarquer facilement sur la figure 2, les ligaments, dont le nombre est donné par  $Z = 0.853 Y^{0.32} \frac{Re_T^{7/9}}{\sqrt{Re_E^{18}}}$ , sont

reproductibles, mais ne sont pas cylindriques et la coupure ne se fait pas à égale distance du bord du disque. Il en résulte donc un aérosol polydispersé constitué en général d'une goutte principale et de petites gouttes appelées satellites.

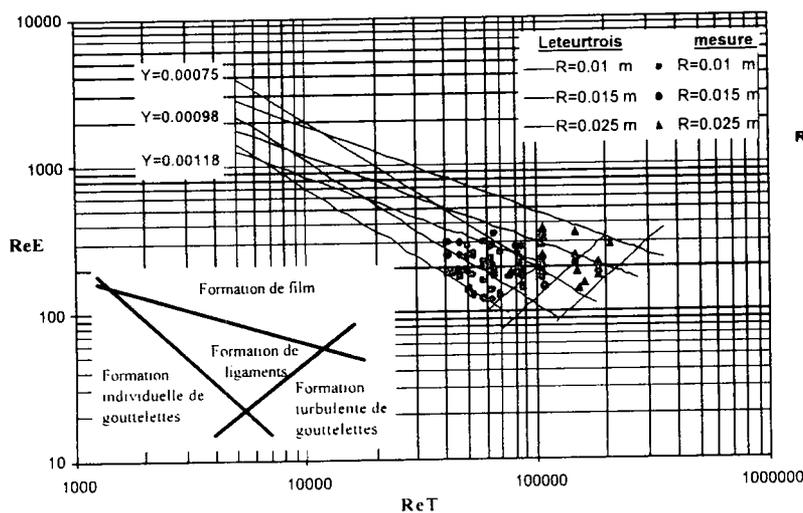


Figure 4 : zones de formation de ligaments pour différentes valeurs de Y

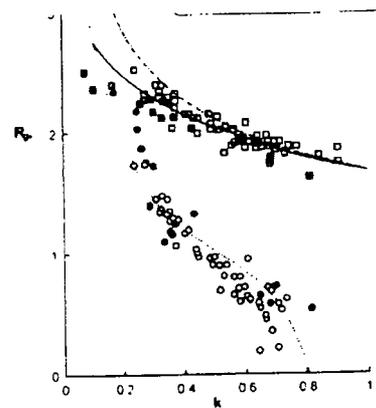


Figure 5 : répartition des gouttes principales et des satellites en fonction du nombre d'onde k

Dans le cas où il se forme une seule goutte par jet à chaque période T de la vibration, le rayon de la

goutte se déduit de l'équation de conservation de la masse et vaut  $R_g = \left[ \frac{3q_v T}{4\pi Z} \right]^{1/3}$ .

## 2. La génération contrôlée d'aérosols

L'homogénéité de l'aérosol nécessite que deux conditions soient simultanément réunies :

- le point de coupure des ligaments doit se faire à une même distance du bord du disque pour tous les ligaments. Il se forme alors à chaque période et sur chaque jet une, deux ou plusieurs gouttes identiques pour tous les ligaments, mais de tailles différentes pour chaque jet.
- La condition de coupure doit être telle qu'il se forme à chaque période et sur chaque jet une seule goutte ou plusieurs gouttes de tailles identiques. Comme le montre la figure 5 reprenant les résultats de Rutland et Lafrance dans le cas des ligaments cylindriques, la taille relative des

gouttes principales et des satellites et la présence ou non de ces satellites dépend du nombre d'onde adimensionnel  $k = 2\pi \frac{a}{\lambda}$  où  $a$  est le rayon du jet et  $\lambda$  est la longueur d'onde, fonction de la vitesse relative de l'écoulement dans le jet  $V$ , de la vitesse de propagation de l'onde  $c$  et de la période de la vibration  $T$  selon la loi  $\lambda = (c + V)T$ .

Le contrôle de la taille des gouttes nécessite donc le contrôle de la fragmentation, c'est à dire de la vibration qui se propage et s'amplifie sur les ligaments. Comme l'instabilité naturelle n'est pas contrôlable, une méthode consiste à créer une vibration artificielle, reproductible qui est efficace si :

- elle a une amplitude et une fréquence suffisantes pour rompre les ligaments avant l'instabilité naturelle.
- elle remplit la condition de valeur du nombre d'onde adimensionnel pour avoir un aérosol contrôlé, mono, bi ou pluridispersé.

## 2.1. La génération de la vibration

Plusieurs méthodes sont possibles :

### 2.1.1 La génération par excitation du liquide sur le disque

Le brevet 914006218 décrit des moyens perturbateurs créant des vibrations sur le liquide au niveau du tube ou de l'orifice d'alimentation ou plus généralement au niveau de la région centrale de l'écoulement sur l'orifice. ce brevet revendique également la possibilité de perturber les ligaments mécaniquement en créant des obstacles concentriques sur le disque. Le générateur de vibration décrit est un générateur électrodynamique muni à son extrémité d'un petit cylindre creux, qui affleure la surface libre du liquide autour du tuyau d'alimentation.

### 2.1.2. La génération par excitation du disque

Dans le dernier générateur d'aérosols homogènes que nous avons développé (fig. 6), les ligaments sont excités en faisant vibrer le disque (1) le long de son axe de rotation. Le vibreur, tournant à la même vitesse que le disque, est composé d'une plaque encastrée (2) sur un bâti (3) placé entre le moteur d'entraînement (4) du disque et le disque. Cette plaque est déformée par une cellule piézo-électrique (7) excitée à une fréquence et une amplitude convenables par un générateur alternatif.

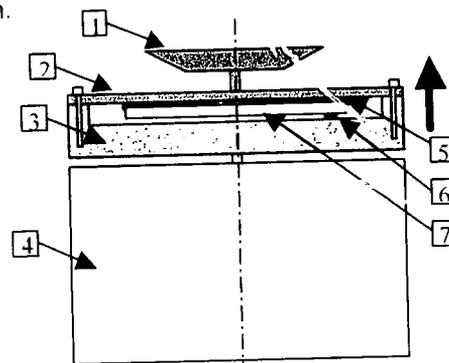


Figure 6 : le vibro-générateur

### 2.1.3. La génération par disques dentés

Sur les disques à bords lisses, les ligaments tournent à une vitesse angulaire  $\omega_j$  légèrement plus faible que la vitesse angulaire  $\omega$  du disque. L'insertion de dents à la périphérie du disque a deux effets selon les dimensions relatives des dents et des diamètres des ligaments :

- Si les dimensions des dents sont comparables aux diamètres des ligaments, on assiste à un phénomène d'accrochage, caractérisé par le fait que le nombre de ligaments devient égal au nombre de dents et la vitesse de rotation des ligaments devient égale à la vitesse de rotation du disque. La présence de dents et l'existence du phénomène d'accrochage ne changent pas les mécanismes de dégénérescence mais modifient quelque peu les plages de fonctionnement (fig.7). Elle présente l'avantage de connaître exactement le nombre de ligaments et de diminuer l'incertitude sur la détermination du rayon des gouttes.
- Si les dimensions des dents sont petites, elles ne permettent pas l'accrochage des ligaments qui glissent sur les dents, mais on constate une organisation de l'écoulement dans les ligaments et de la dégénérescence en gouttes semblable à celle existant avec une vibration. Cette organisation provient du fait que si les dents n'arrivent pas à accrocher les ligaments, elles les perturbent au passage. Si la vitesse de glissement est définie par  $\omega_g = \omega - \omega_j$  et  $Z_d$  est le nombre de dents, la

fréquence de vibration créée par les dents est  $F = \frac{\omega_g Z_d}{2\pi}$ . Cette méthodologie est très intéressante, car elle est beaucoup plus simple à mettre en œuvre, ne nécessitant pas de faire vibrer le disque. Elle reste cependant limitée d'une part parce qu'à vitesse de rotation donnée correspond une vitesse de glissement et donc une fréquence, d'autre part parce que l'amplitude de l'excitation est liée à la forme des dents. Cet appareil ne peut avoir qu'un point de fonctionnement pour une vitesse de rotation donnée et ne donne qu'une taille de goutte définie à l'avance. Par ailleurs le glissement des ligaments est une fonction décroissante de la viscosité. Il s'ensuit que la fréquence d'excitation, égale au produit du nombre de dents par la vitesse de glissement devient trop faible pour obtenir la monodispersion.

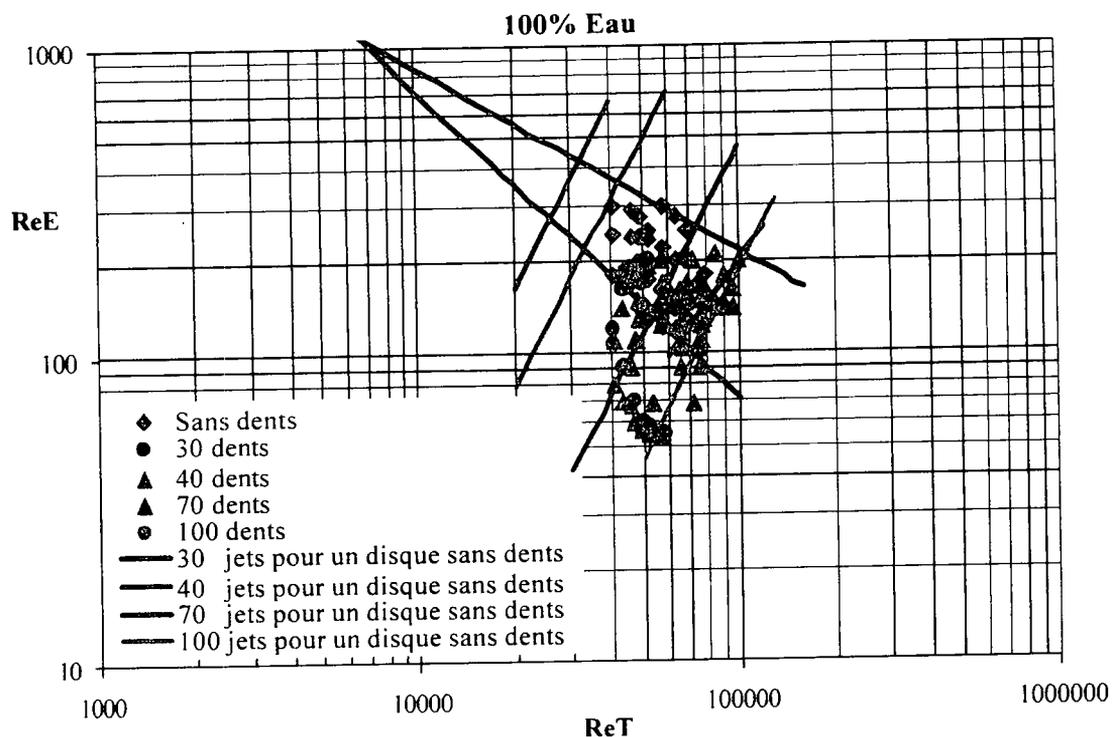


Figure 7 : zone de fonctionnement pour un disque lisse et différents disques dentés avec accrochage des jets

### 3. Le vibrogénérateur d'aérosols

#### 3.1. Les différents éléments

Le vibrogénérateur comporte trois grandes parties :

Le dispositif d'alimentation du disque en liquide : Il comprend une pompe, un réservoir et un tube d'alimentation. L'alimentation du liquide se fait au dessus du disque et près de celui-ci. Dans cette configuration, le tube d'alimentation doit être positionné perpendiculairement au disque rotatif vibrant et suivant l'axe de rotation. Sa longueur et son diamètre sont calculés de telle façon que l'écoulement soit établi et que le nombre de Reynolds soit très faible ( $Re < 50$ ). De plus, l'extrémité du tube est soigneusement usinée pour ne pas perturber l'écoulement sur la surface de disque. Le bon centrage du tube d'alimentation par rapport au disque est essentiel pour la monodispersion. Il est assuré par un système micrométrique tridimensionnel, permettant de régler la verticalité de tube d'alimentation, puis le centrage.

Le disque de pulvérisation et le vibreur : le disque est l'élément central du dispositif expérimental, son diamètre  $D$  et sa vitesse de rotation  $\omega$  sont déterminés par les lois reliant ces grandeurs à la taille

des gouttes. Le disque doit faire l'objet d'un usinage précis concernant la planéité de la surface, l'état des bords et le centrage par rapport à la rotation.

Trois types de disques sont utilisés :

- Des disques à bords lisses, (figure 8).
- Des disques à grandes dents (figure 9).
- Des disques à petites dents (figure 10).

Les dispositifs de commande et de mesure : La visualisation et la mesure de la granulométrie sont réalisées à partir de photographies des jets et gouttes. Les différentes commandes et contrôles concernent le débit, la vitesse de rotation du disque, l'amplitude et la fréquence de la vibration, le flash et l'appareil photographique. Ils sont automatisés sous Labview.



Figure 8



Figure 9

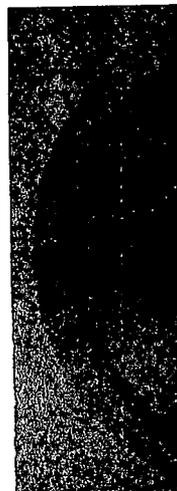
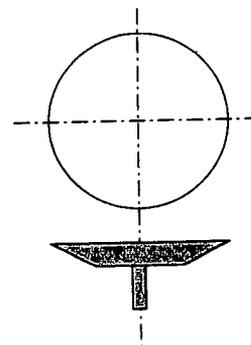


Figure 10



### 3.2. Les performances du générateur

Le vibro-générateur actuellement développé permet de fabriquer des gouttes de diamètres compris entre 50  $\mu\text{m}$  et 1 mm avec une déviation standard relative  $< 0.1$ . Le débit, qui est fonction de la taille des gouttes, va de  $0.5 \cdot 10^{-6}$  à  $4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$ . Des liquides de viscosité dynamique allant de 0 à  $50 \text{ mPaS}^{-1}$  et des tensions superficielles de 20 à  $80 \text{ N/m}$  peuvent être ainsi atomisés. La figure 11 montre un exemple d'aérosol contrôlé par mise en vibration du disque ; la figure 12 montre un exemple d'aérosol contrôlé par le glissement des jets sur les dents à la périphérie du disque.

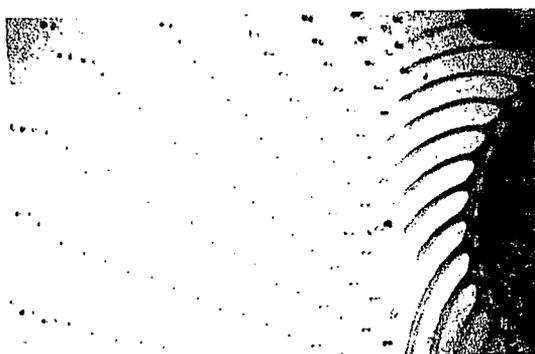


Figure 11 : jets perturbés par une vibration d'amplitude 12  $\mu\text{m}$  et de fréquence 1800 Hz

$R=0.01\text{m}$ ,  $N=44.4 \text{ t/s}$ ,  $Q=1 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$ ,  $Z_j=40$ ,  
 30% eau + 70% glycérine :  $\rho=1195 \text{ kg/m}^3$ ,  
 $\mu=0.026 \text{ PaS}^{-1}$ ,  $\sigma=6.5 \cdot 10^{-3} \text{ N/m}$ .

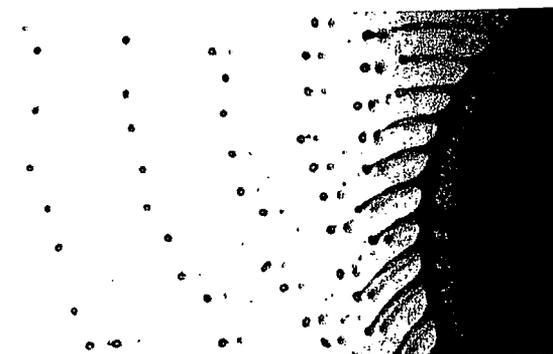


Figure 12 : jets perturbés par des petites dents ; profondeur 100  $\mu\text{m}$ ,  $Z_d=150$

$R=0.01\text{m}$ ,  $N=78.47 \text{ t/s}$ ,  $q_v=1.95 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$ ,  $Z_j=54$   
 Eau :  $\rho=1000 \text{ kg/m}^3$ ,  $\mu=0.001 \text{ PaS}^{-1}$ ,  $\sigma=7.2 \cdot 10^{-3} \text{ N/m}$ .

## 4. La comparaison avec les générateurs à orifices vibrants

Les principaux appareils permettant d'avoir des aérosols monodispersés sont les dispositifs à orifice vibrant. Les principes conduisant à la fragmentation naturelle ou commandée sont très semblables

dans le cas des orifices vibrants et des disques vibro-rotatifs. La principale différence vient du fait que l'action de la force de pesanteur est remplacée par celle de la force d'inertie centrifuge. Il s'en suit des qualités granulométriques comparables. Le dispositif à disque tournant présente cependant trois particularités importantes :

- il produit simultanément de 30 à 100 jets et offre donc des débits beaucoup plus importants. Des dispositifs à orifices multiples sont cependant développés et permettent d'améliorer les débits des orifices.
- Dans les dispositifs à orifice vibrant, les jets sont quasiment cylindriques et le diamètre des gouttes est environ deux fois celui de l'orifice. Les jets issus des disques ont des diamètres qui diminuent rapidement en s'éloignant du disque. La taille des aérosols est largement dépendante de la distance de fragmentation, qui peut être modifiée en faisant varier l'amplitude et la fréquence de vibration. Il est donc possible de modifier la granulométrie, dans un rapport 1 à 6, par simple modification des réglages.
- Les dispositifs à orifice vibrant sont limités par la présence des orifices, d'autant plus difficiles à usiner qu'ils sont petits et présentant toujours un risque de bouchage en présence d'impuretés.

## 5. Les voies de développement

Deux principales voies nous paraissent prioritaires :

- Nos résultats montrent que les fluides très visqueux sont plus difficiles à rompre et que des phénomènes d'instabilités de jets peuvent apparaître ; les études commencées pour la compréhension de ce phénomène doivent se poursuivre.
- La limite actuelle vers les petits diamètres et/ou les grands débits doit être reculée en adaptant la technologie.

## 6. Références

- Hinze J.O., Milborn H., Atomization of liquids by means of a rotating cup, J. Appl mechanics, June 1950.
- Tanasawa Y., Miyasaka., Umehara M., Trans. Soc. Mech. Engng. Japan, 25, 879, 888, 897, 1959
- Matsumoto S., Saito K., Takashima Y., Phenomenal transition of liquid atomization from disk, J. Chem. Engng, Japan, Vol. 7, N°1, 1974.
- Leteurtris J.P., Dispersion fine d'un liquide à l'aide d'un disque en rotation, Thèse de 3<sup>ème</sup> cycle de l'Université Pierre et Marie Curie, 1974.
- Chicheportiche J.M., Etude de la fragmentation commandée des jets liquide issus de disques en rotation et réalisation d'un générateur de gouttelettes monodispersées. Thèse de Docteorat de l'université Pierre et Marie Curie, 1993.
- Chicheportiche, J.M., Renaudeau, Dispositif générant avec un débit élevé un aérosol monodispersé, brevet europeen 91400621.8, 1991.
- Chicheportiche, J.M., Renaudeau, J.P., Zainoun, N., Atomiseur à disque tournant d'aérosols calibrés, demande brevet d'invention 0403679, 2004.
- Rutland D.F., Jameson G.J., Theoretical prediction of the sizes of drops formed in breakup of capillary jets, Chem Eng. Sci. Vol 25, pp 1689-1698, 1970.
- Lafrance P. Non linear breakup of laminar liquid jet, Phys Fluids, Vol 18, N°4, April 1975.

# Concept and Experiences of a fast Measuring Aerosol Spectrometer for the range from 5 to 600 nm – GRIMM TR-DMPS 5.600

Ch. GERHART<sup>1</sup> and G.P. REISCHL<sup>2</sup>

<sup>1</sup>GRIMM AEROSOL Technik GmbH, Dorfstrasse 9, D-83404 Ainring, Germany.

<sup>2</sup>Institut für Experimentalphysik der Universität Wien, Strudlhofgasse 4, A-1090 Wien, Austria.

*Keywords: automotive, transient, DMA, Electrometer, driving cycle*

## INTRODUCTION

Counting of nanoparticles has become an established method in the engine development and in the discussion for new emission measurement standards. The most common particle counting systems based on nucleus condensation technique (CPC) in combination with an electrostatic classifier for size differentiation (DMA) are only able to measure stable aerosol conditions and are not able to measure with scanning times [Collins 2002] as required during transient driving cycles. A well known technique of combining high quality Vienna type DMAs with highly sensitive FCE (Faraday Cup Electrometer, a reference method to CPC measurements) in a multi channel setup closes the gap to measure with high accuracy in real time. This TR-DMPS (Transient Differential Mobility Particle Spectrometer) is able to measure complete particle size distributions every 200 ms (5 Hz) even for fast changing aerosol compositions.

## MEASUREMENT PRINCIPLE

The measurement principle of the TR-DMPS is the classification of aerosol particles with respect to their electrical mobility (commonly used for aerosols in the size range below 1  $\mu\text{m}$  particle diameter, e.g. SMPS, EMS, etc.). The aerosol to be characterized is neutralized (usually a bipolar diffusion charging method is applied to obtain a defined charging state) and subsequently fed into a differential mobility analyzer (DMA). A certain narrow mobility fraction (uniquely defined by the DMA geometry, the volumetric flow rates of the DMA and the voltage applied to the center electrode of the DMA) is extracted from the DMA. The particle concentration in the extracted mobility band is subsequently determined by an appropriate sensor.

Mobility spectrometry deals with the experimental evaluation of the number size distribution of aerosols. The aerosol to be characterized is first charged (a bipolar charge equilibrium is established), then classified in a differential mobility analyzer (DMA) and finally the concentration of the classified particles is determined in an aerosol detector (condensation particle counter, CPC or faraday cup electrometer, FCE). This arrangement of a charger (or neutralizer) a DMA and a CPC (or FCE) is widely known as a DMPS / SMPS (Differential / Scanning Mobility Particle Spectrometer).

Frequently Condensation Particle Counters (CPC) with rather slow response are used for larger particles and low concentrations. However, for aerosols with larger particle concentrations containing small particles with diameters down to a few nanometer, Faraday Cup Electrometers (FCE) with fast response are the appropriate tools to be used, instead. Furthermore, the response of a FCE is independent of particle properties and represents an absolute standard for particle concentrations, provided the charging state of the aerosol is known.

The TR-DMPS arrangement, consisting of a bipolar diffusion charger, a DMA and a FCE as sensor (fig. 1), represents a unique primary standard for both, particle size as well as particle

concentration, provided all relevant parameters (DMA geometry, DMA volumetric flow rates, DMA voltage, FCE volumetric flow rate, FCE current) are properly determined and the charging state of the aerosol particles is a known function.

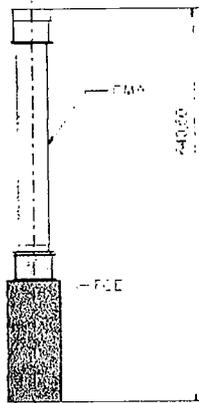


Fig. 1: "Vienna Type" DMA + FCE combination for one single mobility channel

The major advantage of the method is its applicability over several orders of magnitude with respect to particle size and concentration, even down to molecular clusters. The relative size resolution of the spectrometer is an instrument specific, easily adjustable constant over the whole size range.

Since this method classifies the particles according to their electrical mobility, the direct result of the measurement is a mobility distribution (a frequency distribution with respect to the mobility equivalent diameter of the particles) containing the charging state of the particles as additional parameter. Under certain conditions, this mobility distribution can be converted into a number size distribution.

These conditions are:

- the knowledge of the charge distribution on the aerosol
- an upper limit of the aerosol size distribution within the measurement range.

The first requirement can be satisfied applying bipolar charging. In this case, the charging probabilities can be derived by numerical calculations. The second requirement can be taken care of by technical means (e.g. by the application of a pre cut off device, if necessary) [Winklmayr 1990, Reischl 1996]

### INSTRUMENT

The aerosol to be characterized is first neutralized (a bipolar charge equilibrium is established), then distributed to the array of DMAs, subsequently classified in the differential mobility analyzers and finally the concentration of the classified particles is determined in aerosol detectors (FCEs).

The instrument consists of a common bipolar charger, 10 DMAs with in-line FCEs (fig. 2), a FCU (Flow Control Unit) and a CDPU (Control and Data Processing Unit). All components are mounted in a movable rack and can be positioned close to the aerosol source. The unit needs only an AC power connection to be fully operable. The Instrument features a built-in dilution system with an adjustable dilution ratio of 1:7 up to 1:40 to suit the most commonly encountered emission sources.

Specifications:

<b>Particle Size Range [nm]:</b>	10-630 / 7-365 / 5-225(pre-selectable)
<b>Particle Size Resolution :</b>	21 channels
<b>DMA Systems:</b>	10 units
<b>Electrometer (FCE):</b>	10 units
<b>Charger Mode of Operation:</b>	bipolar (diffusion)
<b>Time Resolution:</b>	5 Hz
<b>Flow Rates:</b>	
<b>Aerosol Flow Rate (per DMA):</b>	1.6 L/min
<b>Sheath Air Flow (per DMA):</b>	8 L/min
<b>Dilution ratio:</b>	1:7 to 1:40
<b>Atm. Pressure Correction Range:</b>	500 to 2000 mbar
<b>Dimensions (LWH):</b>	60 x60 x 65 and 40 x 40 x 78 cm
<b>Weight:</b>	Top 112 kg, bottom 85 kg
<b>Physical arrangement:</b>	Two part system – External sampling system included(with Dilution)

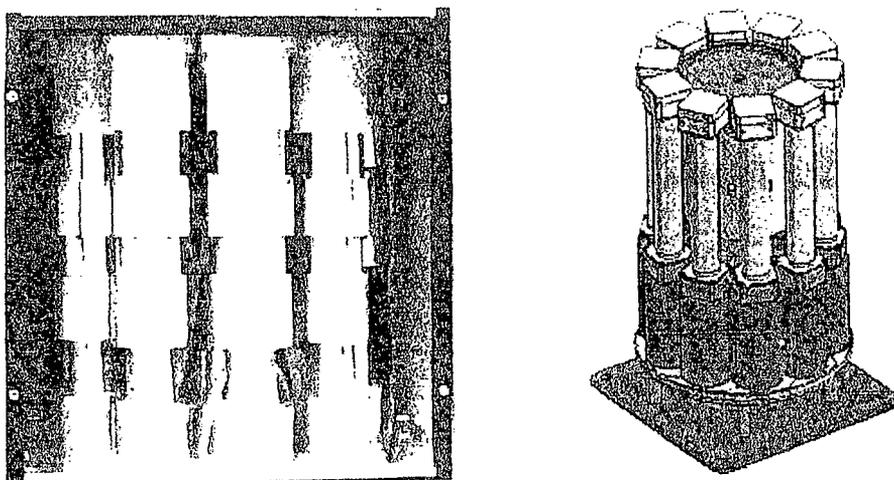


Fig. 2: Carousel of the different, separated DMA / FCE units

Despite the rather coarse mobility spacing given by the limited number of DMAs used in this cluster, the respective size resolution of a factor of 1.4 between adjacent channels is sufficient for most practical applications. A numerical data evaluation procedure is applied to recover the additional information contained in the mobility distribution through the multiply charged particles. This results in a recoverable over all resolution of 21 channels (effective size resolution of a factor of 1.2 between adjacent channels) over the entire size range covered.

The DMAs used in the setup are geometrically optimized for the respective size ranges (diffusion losses of ultra fine particles). All DMAs are equipped with in-line mounted Faraday Cup Electrometers (FCEs), screwed directly into the aerosol exit end of each DMA, resulting in a distance from the annular sample outlet slit of the DMA to the FCE of about 5 cm. The FCEs are further developments of the Vienna Type FCE VIE08, optimized for fast response ( $< 0.2$  s integration time, current resolution  $\leq 1.0 \cdot 10^{-16}$  A).

To avoid flow rate adjustment problems (each single DMA has to be supplied with sheath and excess air flow, where both have to be adjusted to be equal within less than 0.1%) each of the individual DMAs in the cluster is operated from an individual leak free membrane pump in a

closed loop arrangement. The re-circulated carrier gas is cleaned by means of high capacity active carbon filters and subsequent absolute filters. Flow rate regulation is performed by critical orifices, only.

The standard TR-DMPS data acquisition software is designed to perform the following tasks:

- Communication with operator
- Automated testing of the electronic and pneumatic hardware
- Controlling the dilution rate at the sampling port
- Controlling the high voltage power supplies of the DMAs
- Controlling the adjustments of the FCEs
- Controlling the signal processing (for high voltage and FCE current measurement)
- Data processing and real time display
- Data storage

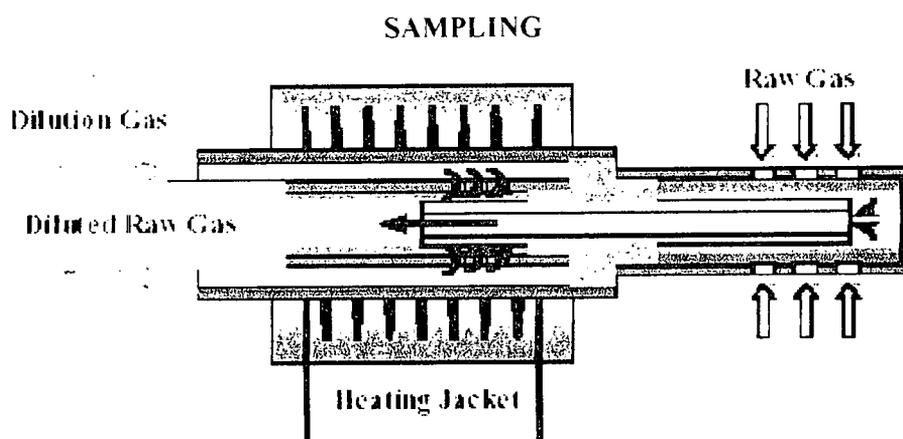


Fig. 3: Built-in sampling and dilution unit for 1:7 to 1:30 dilution ratios

The Dilution Probe (fig. 3) takes a defined sample flow  $Q_p$  directly from the raw gas source, leading it through a 0.1 m long stainless steel pipe, 2 mm I.D. to a (optionally heated) dilution head, where it is introduced into the center of a defined clean gas flow ( $Q_d - Q_f$ ). A critical orifice and a membrane pump in the dilution unit control the flow  $Q_f$ . The diluted aerosol is directly fed into the intake of the TR-DMPS. The clean gas flow  $Q_d$  is taken from the purified gas output of the FCEs and therefore identical to the aerosol intake flow of the TR-DMPS. Thereby, the sample flow rate  $Q_p$  is identical to the flow rate  $Q_f$  controlled by the critical orifices in the dilution box.

Thus, the entire system consisting of the TR-DMPS and the Dilution Control Unit works in a closed loop arrangement where the only input is through  $Q_p$  and the only output is through  $Q_f$ . The respective dilution ratio based on volumetric flow rates is  $R = Q_d/Q_f$  where  $Q_d$  is the TR-DMPS aerosol intake flow rate (16 l/min) and  $Q_f$  is the flow rate subtracted from  $Q_d$  in the dilution unit. The dilution ratio is independent of the static pressure at the entrance of the raw gas sample flow, since all flow rates are controlled by critical orifices, only. It is identical to the dilution ratio based on mass, since the pressure in the whole system is constant. However, the obtained concentrations have to be corrected to standard conditions taking the actual pressure at the sampling location into account.

### MEASUREMENT RESULTS

A prototype of this concept has already proven its capability over years [EU-Projects: PARTICULATES, Heavy Duty Vehicles; PSICO-DEXA, Diesel Engine Emissions under Transient Conditions, 2001] in fast transient measurements even with lower emitting sources like gasoline fueled engines (fig. 4)

In this measurement of an acceleration within 30 s up to 120 km/h the result shows in detail which particles at which times are generated and emitted. E.g. during the acceleration phase the engine causes mainly very fine particle size distributions around 30 nm combined with very high concentrations in number. During the idling the concentration decreases again up to more than two orders of magnitude.

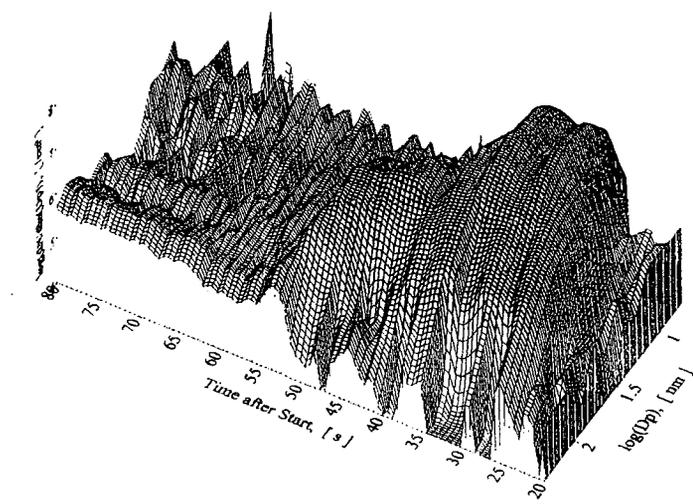


Fig. 4: Example for a fast measured size distribution during a transient driving cycle (Fast Acceleration: 0-120 km/h in 30 s. Gasoline fueled engine, 3.5 l)

The TR-DMPS concept has also been applied for real-time environmental measurements. In a drive by test it has been investigated how the soot plume, coming from by passing vehicles is diluted with the time. Fig. 5 shows the setup for sampling nearby the street at a height of 0.5 m above the street. It could be shown (fig. 6) that the plume coming from the vehicle is not diluted immediately. The by pass time of the vehicle was about 1 s. Higher concentrations could be measured around 3 - 5 s. After 5 s it can be seen from the results that the main soot eddy is not yet diluted and is bouncing back to the measurement point.

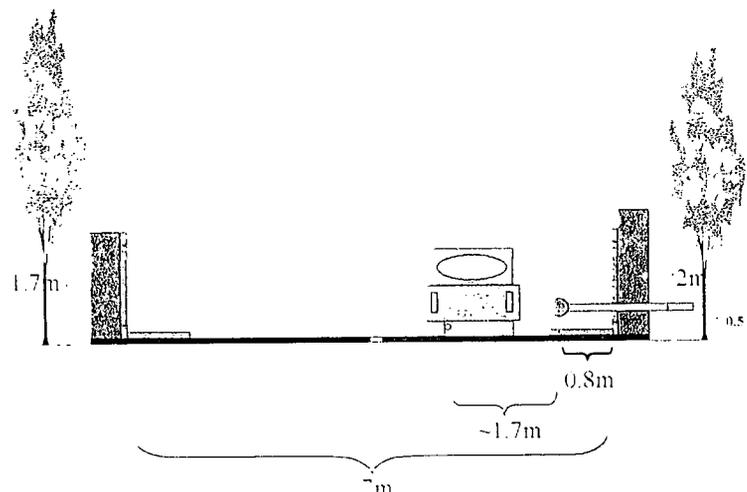


Fig. 5: Schematic setup for an environmental drive by test with the TR-DMPS unit standing nearby the street – sampling point is 0.5 m above the ground

Drive by Test: Opel Astra TDI. First Gear. Turbo charged

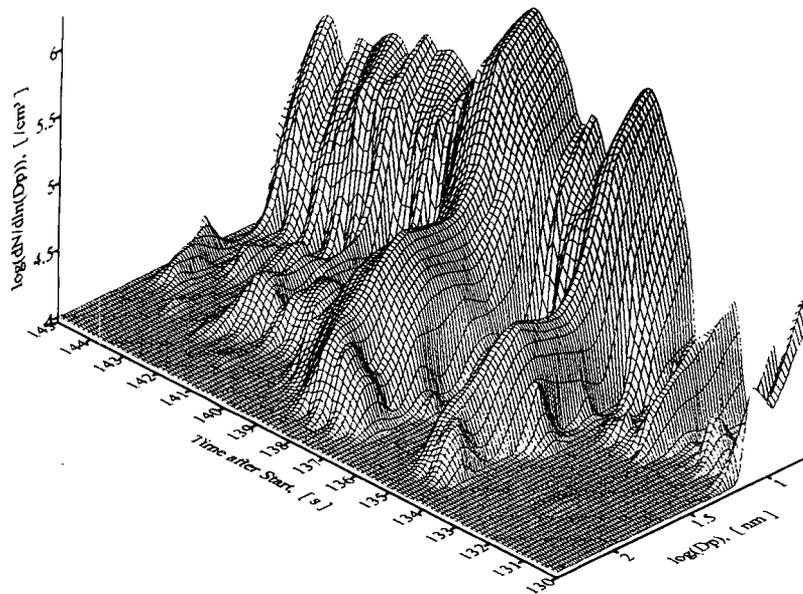


Fig. 6: Results of a drive by test with diesel engine: the soot particle cloud is not diluted immediately and seems to bounce back in a kind of eddy

#### SUMMARY

Based on the proven SMPS+C system of GRIMM this technology has been incorporated into a battery of 10 Differential Mobility Analyser (Vienna type DMA cluster), combined with high performance Faraday Cup Electrometers (FCE), assuring extremely short response times with highest time resolution. This high quality technology is nearly insensitive to internal contamination and also extreme robust. This unique concept is not reached in sensitivity and flexibility by any other commercial instrument.

This system is an absolute or a kind of reference system for any other particle seizer and counter system.

Applications range from low environmental concentrations and "downstream filter measurements" to high engine emission concentrations. Air flow changes or air pressure changes can not result in errors or wrong measurements and the results can be compared to any existing SMPS system. In addition this system does not have more problems of sensitivity due to dirt in the system than any classical SMPS system.

#### REFERENCES

- D. R. Collins, R. C. Flagan, J. H. Seinfeld (2002). *Improved inversion of scanning DMA data*. J. Aerosol Sci. Technol., 36: 1 – 9.
- G. P. Reischl (1997), Mäkelä, J. M. and Nucid, J. *Performance of Vienna Type DMA at 1.2 - 20 Nanometer*. J. Aerosol Sci. and Technol., 27: 651 - 672.
- G. P. Reischl (1996), J. M. Mäkelä, R. Karch and J. Nucid. *Ultrafine Particle Charging Probabilities in the Size Range Below 10 nm*. J. Aerosol Sci., 27: 931 – 949.
- W. Winklmayr, G. P. Reischl, A. O. Lindner and A. Berner. (1990). *A new electromobility spectrometer for the measurement of aerosol size distributions in the size range from 1 to 1000 nm*. J. Aerosol Sci., 22: 289 – 296.

# AÉROSOLS MICROBIENS ET ENVIRONNEMENTS INTERIEURS

E. ROBINE

Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs,  
Centre Scientifique et Technique du Bâtiment.  
84 avenue Jean Jaurès, 77421 Champs sur marne.

Pneumopathies, légionelloses, listérioses, intoxications aux moisissures, infections nosocomiales, bioterrorisme sont autant de sujets qui ont largement contribué à la sensibilisation d'un large public aux risques microbiologiques.

Omniprésents dans nos environnements, les polluants d'origine biologique, respirés ou ingérés, peuvent avoir un rôle non négligeable sur notre santé, et les espaces clos constituent parfois des « niches écologiques » qui favorisent leur multiplication et l'exposition des occupants à ces biocontaminants. La composition microbiologique de l'air est complexe; on peut y recenser aussi bien des microorganismes « vivants » (moisissures, bactéries, virus) que des fragments microbiens, antigéniques ou toxiques, voire des substances organiques volatiles d'origine microbienne (COVm). Or, cette pollution, selon les conditions d'exposition et la sensibilité des occupants, peut être à l'origine de diverses pathologies. Outre l'existence de maladies infectieuses relativement bien diagnostiquées, l'environnement intérieur peut être le théâtre de troubles immuno-allergiques d'origine bactérienne et fongique dont l'expression clinique varie selon le point d'impact de l'allergène (rhinite, conjonctivite et asthme). Par ailleurs, certains bâtiments dits « malsains » sont le siège de toxi-infections d'origine bactérienne ou fongique. Les moisissures ont par exemple la faculté de produire des métabolites secondaires (mycotoxines) dont l'ingestion ou l'inhalation provoque des affections sévères chez l'homme et l'animal.

## SOURCE :

Au sein d'un bâtiment, deux sources sont à considérer:

- Une source extérieure qui pénètre dans le bâtiment par le biais des systèmes de ventilation ou par l'intermédiaire des occupants ;
- une source intérieure qui est liée à la survie voire au développement des micro-organismes dans les locaux.

La dissémination aérienne s'effectue selon différents modes.

La parole, la toux, les éternuements provoquent l'expulsion d'un grand nombre de gouttelettes microbiennes qui, après évaporation très rapide, donnent naissance à des particules biologiques, de taille réduite, isolées ou en amas. Ces dernières sont des aérosols, facilement dispersés et capables de parcourir de longues distances.

Les squames cutanées, riches en bactéries et libérées en permanence par la couche superficielle de l'épiderme, constituent également une source de contamination atmosphérique. La perturbation mécanique d'un milieu hydrique contaminé ou d'un biofilm colonisant une surface, la manipulation d'un produit ou d'un matériel contaminé, génèrent également des microorganismes en quantité importante. La formation d'aérosols biologiques peut ainsi être favorisée par certains systèmes d'humidification, les tours aéro-réfrigérantes et lors du nettoyage d'une surface contaminée sans qu'aucune précaution particulière n'ait été prise.

En suspension dans l'air, ces particules biologiques sont soumises aux mêmes lois physiques que les aérosols inertes qui reposent en grande partie sur leur taille, forme et densité. Ainsi, leur déplacement dans l'air obéit entre autre à la gravité (sédimentation), aux mouvements du fluide porteur (diffusion, inertie) ou encore aux gradients de température (thermophorèse, photophorèse).

Les spécificités de l'aérosol biologique par rapport aux particules inertes proviennent de leur viabilité et de leurs potentialités parfois infectieuses voire allergéniques.

#### SURVIE :

Le caractère infectieux des bioaérosols est souvent associé à leur capacité à résister aux différentes agressions du milieu. Pour la plupart des microorganismes, l'air est un milieu extrême et la létalité occasionnée par l'aérosolisation est généralement importante. La Figure 1 présente les différents paramètres pouvant altérer la persistance des bioaérosols.

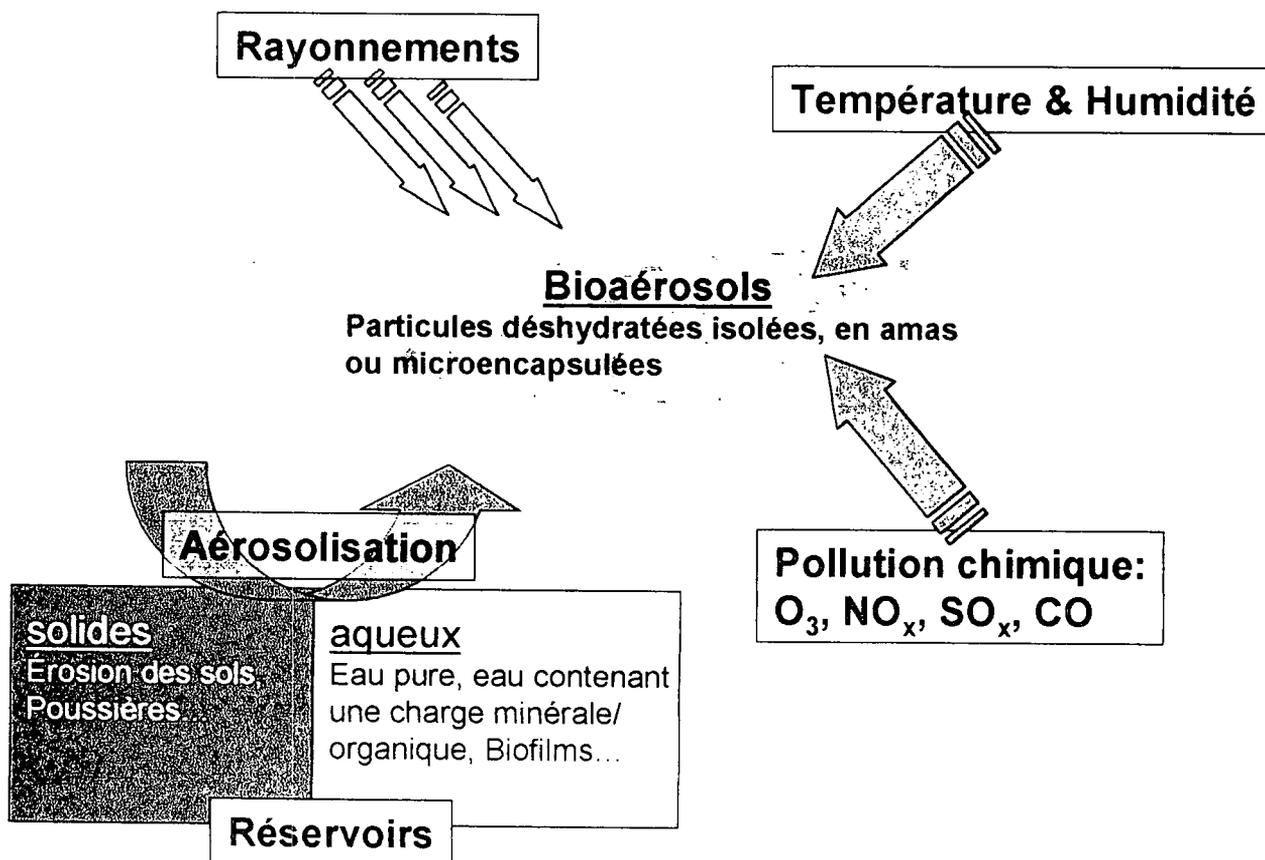


Figure 1: Représentation simplifiée de quelques facteurs ayant un impact sur la persistance des aérosols biologiques.

L'étude de la survie des microorganismes dans l'air est complexe, car elle doit tenir compte des nombreuses variables du milieu : nature de la source et environnement, ainsi que du biais incontournable induit par l'expérimentation (procédure de génération, prélèvement).

Les données relatives à la persistance des bioaérosols sont à ce jour encore peu nombreuses et relativement anciennes. La plupart des études disponibles ayant été éditées entre 1940 et 1980. Les résultats de ces recherches, fragmentaires et parfois contradictoires, permettent difficilement de statuer sur un comportement général du bioaérosol.

Toutefois, les aérosols fongiques sont considérés comme beaucoup plus résistants que les bactéries et les virus. Ils sont souvent assimilés à de grosses particules hydrophobes, de 2 à 50 µm de diamètre, capables de parcourir de longues distances tout en conservant leur viabilité.

Pour leur part, certaines bactéries ont la capacité de se transformer en petites unités douées d'une extrême résistance. Ces formes de résistance appelées spores ou endospores bactériennes dont les très médiatiques spores de *Bacillus anthracis* (agent de la maladie du charbon) peuvent survivre dans le sol durant de longues périodes, la persistance du bacille du charbon sous cette forme est par exemple de l'ordre d'une centaine d'années. La composition pariétale et en particulier la teneur en

lipides des parois cellulaires, peut également expliquer la persistance plus ou moins importante des espèces bactériennes, les oxydants de l'air, même en très faible concentration, réagirait ainsi avec les acides gras en formant des molécules réactives toxiques pour le microorganisme.

L'humidité de l'environnement a également un impact sur la survie des aérosols biologiques. L'augmentation de celle-ci favoriserait l'inactivation de la majorité des cellules bactériennes. Les bactéries peuvent être considérées comme des corps hygroscopiques, dont le taux de dessiccation dépend essentiellement de l'humidité du milieu et du sens de transfert de l'eau. Ce mouvement : perte puis réhydratation, a un effet déterminant sur la structure et sur les fonctions de la cellule.

Concernant les virus, les quelques études publiées observent différents comportements selon la souche considérée : inactivation par les milieux humides ou secs, stabilité sur toute la gamme d'humidité ou encore une action létale dans une plage délimitée (généralement 40-60%). Par exemple, la persistance du poliovirus ou du virus de la fièvre aphteuse serait favorisée dans les environnements humides tandis que les virus de la grippe ou de la rougeole seraient plus stables dans des ambiances sèches.

#### MESURE DE L'AÉROBIOCONTAMINATION:

Peu fiable, la majorité des mesures d'aérobiocontamination réalisées jusqu'à présent n'a pas permis de démontrer une relation claire de cause à effet entre l'inhalation de particules biologiques aéroportées et l'apparition de symptômes plus ou moins graves, plus ou moins spécifiques. La gestion du risque microbiologique reste aujourd'hui encore limitée par des aspects essentiellement métrologiques qui concernent la stratégie d'échantillonnage, l'efficacité des biocollecteurs (physique et biologique) et la pertinence de l'analyse.

Finalement, le développement de méthodes de mesures et de moyens analytiques adaptés constitue une étape préliminaire indispensable et un enjeu majeur pour progresser dans la connaissance des aérosols microbiologiques.

# ETUDE DE L'AEROSOL DE LEGIONELLA : APPROCHE METROLOGIQUE.

T.-L. Ha\* <sup>(1,2)</sup>, E. Robine <sup>(1)</sup>, E. Géhin <sup>(2,3)</sup>

<sup>(1)</sup> Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs, Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, 77420 Champs-sur-Marne, [Imei@cstb.fr](mailto:Imei@cstb.fr)

<sup>(2)</sup> Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations, Université Paris XII, 94010 Créteil Cedex

<sup>(3)</sup> Centre d'Etudes et de Recherche en Thermique, Environnement et Systèmes, Université Paris XII, 94010 Créteil Cedex

## ABSTRACT

*An experimental setup has been developed to produce an aerosol of Legionella. It is equipped with a bubbling aerosol generator specifically developed for this study. The setup has been tested with L. pneumophila 1, the most isolated agent in legionellosis epidemics. The system was analyzed according physical and biological criteria. This laboratory tool permits to produce a stable, viable and controllable bioaerosol, which was used to assess biological sampling efficiencies of three collection principles: impaction, impingement and filtration. First experiments showed best results with impingement technique, filtration method appeared to damage to Legionella aerosols.*

## RESUME

Un banc aéraulique spécifiquement destiné à la manipulation des agents pathogènes aérosolisés a été mis au point afin de simuler un aérosol de *Legionella pneumophila*. Cet outil expérimental a été validé selon des critères physiques et biologiques. L'outil caractérisé permet de produire un bioaérosol stable, viable et contrôlable dans nos conditions d'essais. Ce dispositif a ainsi été utilisé pour évaluer et comparer l'efficacité biologique de collecte des trois techniques les plus courantes. Les premiers résultats montrent que l'impaction en milieu liquide apparaît comme la méthode la plus adaptée au prélèvement de l'aérosol de légionelles.

## INTRODUCTION

Les légionelles, bactéries ubiquitaires de l'environnement hydrique, sont une cause fréquente de pneumonies nosocomiales et environnementales. L'exposition infectante se fait exclusivement *via* la formation d'un aérosol, contenant des souches pathogènes de *Legionella*, à partir de milieux hydriques colonisés. Les équipements de types douches, climatisation, conduisant à l'émission d'aérosols sont plus particulièrement visés [Dennis *et al.*, 1984 ; Bollin *et al.*, 1985 ; Malgré une bonne connaissance de la prévalence de ces bactéries dans les réseaux d'eaux chaudes, le vecteur air reste inconnu. Les concentrations mesurées lors des investigations environnementales sont variables [Breiman *et al.*, 1990 ; Ishimatsu *et al.*, 2001]. Elles dépendent en grande partie des systèmes de prélèvement employés, pour lesquels l'efficacité biologique de collecte reste à ce jour mal évaluée. Par ailleurs, l'approche analytique conventionnelle, basée sur la capacité des microorganismes à se développer sur milieu nutritif, conduit bien souvent, de par ses limites, à une mésestimation de l'exposition. En effet, la majorité de la flore aéroportée, bien que viable, présente de grandes difficultés à se multiplier sur de tels substrats (bactéries viables non cultivables) [Hussong *et al.*, 1987].

Le développement de méthodes de mesures et de moyens analytiques adaptés constitue donc une étape préliminaire indispensable pour accéder à l'évaluation du niveau d'exposition des populations à des aérosols contaminés, puis à la caractérisation du risque sanitaire. Dans ce cadre, le travail de recherche engagé a porté sur le développement et l'amélioration des techniques de prélèvement, mais également sur la mise au point de méthodes de dosage de *Legionella*. Un banc expérimental a été développé dans le but de simuler une aérocontamination biologique, stable et contrôlée. Les paramètres physiques (taille, concentration) et biologiques (conditions et âge de culture) ont été évalués. Le bioaérosol a été par la suite utilisé pour déterminer l'efficacité biologique des trois principales techniques de collecte suivantes : impaction en milieu solide, impaction en milieu liquide et filtration.

## MATERIELS ET METHODES

### Choix des souches

Les expérimentations ont été réalisées avec une souche de collection de l'Institut Pasteur, *Legionella pneumophila* 1 (CIP 10.38.54 T), conservée à  $-20^{\circ}\text{C}$  dans de l'eau distillée stérile. Avant chaque utilisation, une subculture sur milieu BCYEa supplémentée en L-cystéine (Buffered Charcoal Yeast Extract *alpha ketoglutarate*) est effectuée. Pour les essais d'aérosolisation, les cellules sont ensuite cultivées en bouillon nutritif pendant 24 heures à  $37^{\circ}\text{C}$  sous agitation, puis récupérées après trois lavages successifs de la suspension bactérienne. Le lavage est opéré par centrifugation à 3000 tr/min pendant 20 minutes (EBA 8S, Hettich), avec élimination du surnageant et remise en suspension du culot bactérien dans de l'eau déionisée filtrée à  $0,2\ \mu\text{m}$ . La concentration de la suspension finale est mesurée par turbidimétrie (HI 93703, HANNA Instruments). Pour limiter l'effet du choc osmotique lié au milieu hypotonique, l'inoculum est préparé extemporanément avant l'aérosolisation.

### Production de l'aérosol

Le montage d'aérobiocontamination (Figure 1) est placé dans une enceinte de confinement de niveau P3 (Isoplex 3G, ARFL). Il se compose d'un générateur d'aérosol (1), d'une sphère d'homogénéisation (2), d'un compteur optique de particules (3), et d'un biocollecteur (4).

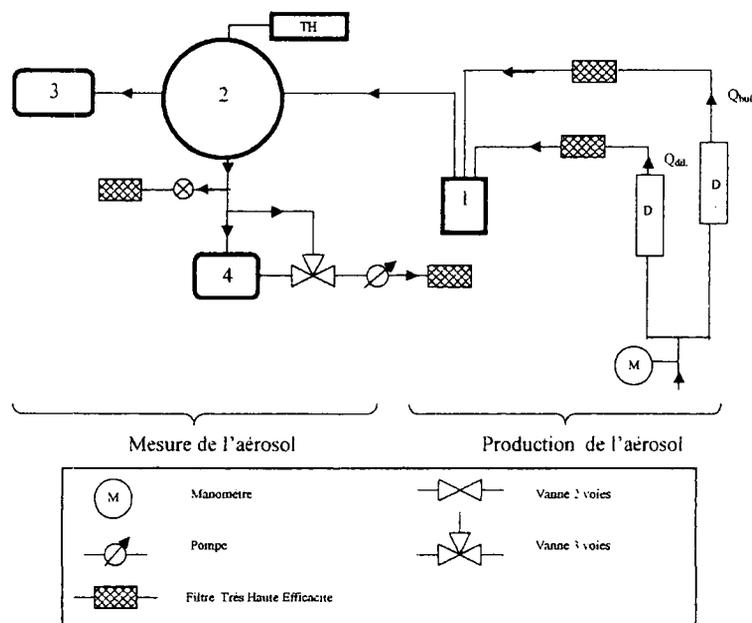


Figure 1 : Schéma du montage expérimental

Le générateur utilisé (verrière *Belleville Fontenay sous Bois*) fonctionne sur le principe du barbotage : l'éclatement de bulles en surface d'un liquide assure la formation d'un aérosol humide, transporté par un air sec en sortie du générateur (Figure 2). L'absence de reflux et d'impaction des microorganismes, permet de réduire le stress biologique lié à la phase de production de l'aérosol [Ulevicius *et al.*, 1997]. Le système est alimenté par un double flux d'air sec et filtré (filtre HEPA, *Whatman*). Les débits de bullage ( $Q_{bul}$ ) et de dilution ( $Q_{dil}$ ) ont été optimisés et fixés à 7 et 21 L/min. Les bioaérosols produits sont ensuite acheminés vers la sphère d'homogénéisation où leurs taille et concentration sont mesurées avec un compteur optique de particules (G1.108, *Grimm Aerosol Technik GmbH*).

Au cours de l'expérimentation, la température est contrôlée et maintenue par la circulation d'une eau thermostatée à  $20^{\circ}\text{C}$  dans la double enveloppe du volume d'homogénéisation. L'humidité relative est assurée par le mélange des débits de bullage et de dilution ( $Q_{bul} + Q_{dil}$ ). Ces deux paramètres sont mesurés à l'aide d'une sonde (TH) de précision  $\pm 0,4^{\circ}\text{C}$  pour la température et  $\pm 3\%$  pour l'humidité relative (Testo 635, *Testo*).

Avant chaque aérobiocontamination, l'absence de particules est vérifiée dans le montage avec le compteur optique. Par ailleurs, aucun aérosol n'est mesuré à la génération d'une solution témoin d'eau

filtrée à 0,2 µm. Les gouttelettes sont donc bien déshydratées et les particules comptées sont exclusivement des bactéries ou des fragments d'origine biologique.

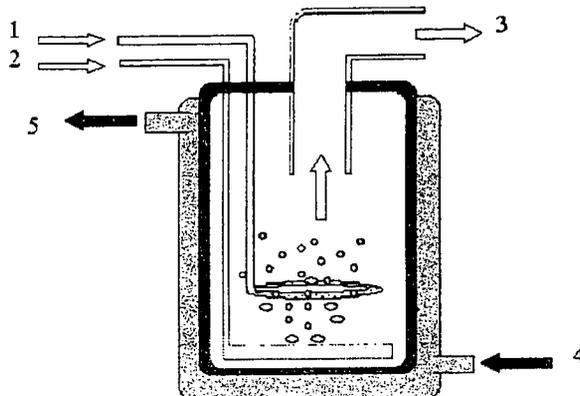


Figure 2 : Schéma du principe de fonctionnement du bulleur  
1. air de bullage, 2. air de dilution, 3. sortie de l'aérosol, 4-5. eau thermostatée

### Collecte de l'aérosol

Trois techniques d'échantillonnage parmi les plus usitées ont été expérimentées : l'impaction solide, l'impaction liquide et la filtration. Les appareillages et conditions opératoires sont présentés dans le Tableau I.

Principe de collecte	Impaction sur milieu solide	Impaction en milieu liquide	Filtration
Nom du dispositif commercialisé	Andersen	SKC BioSampler®	Sartorius
Débit de prélèvement	28,3 L/min	12,5 L/min	10 L/min
Support de collecte	Milieu gélosé (BCYE)	Eau distillée stérile (20 mL)	Membrane quadrillée en nitrate de cellulose (Ø pore = 0,8 µm)
Méthode Analytique	Culture	Culture	Culture

Tableau I : Conditions opératoires pour le prélèvement des aérosols de *Legionella*

## RESULTATS ET DISCUSSION

### Taille de l'aérosol

Des cellules de *L. pneumophila* 1, cultivées pendant 24 heures en bouillon (37°C) ont été aérosolisées. La distribution granulométrique de l'aérosol produit a été analysée avec le compteur optique de particules. En parallèle, la taille réelle des cellules a été déterminée au microscope à épifluorescence après marquage au DAPI (4',6-diamidino-2-phényl-indole) (Figure 3).

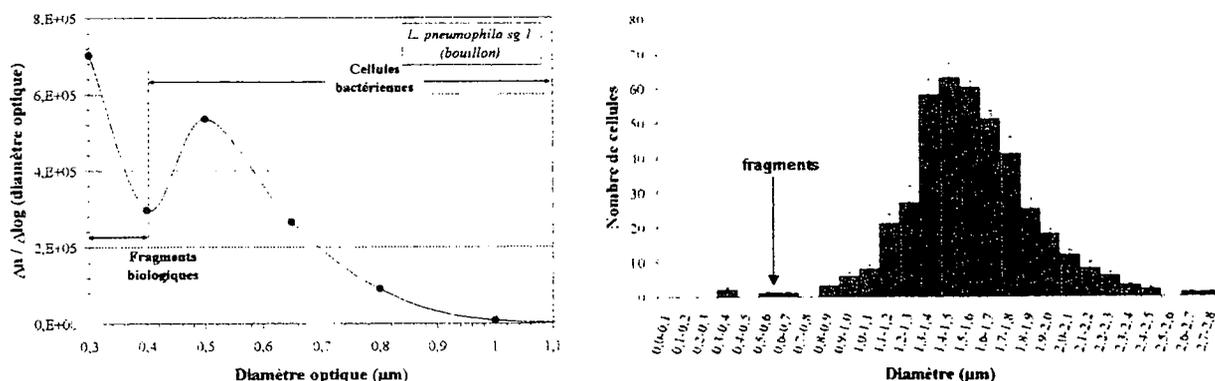


Figure 3 : Profil granulométrique de l'aérosol de *Legionella pneumophila* 1 à 30% HR, 20°C (gauche) et tailles des cellules en milieu liquide (droite)

L'aérosol de *L. pneumophila* 1 est composé de particules dont les tailles varient entre 0,4 et 1,0  $\mu\text{m}$  (mode à 0,5  $\mu\text{m}$ ). La fraction particulaire inférieure à 0,4  $\mu\text{m}$  correspond aux fragments d'origine biologiques. L'analyse du profil montre que le bioaérosol produit est proche d'une distribution monodispersée ( $\sigma_g=1,25$ ). La taille des cellules en milieu liquide s'étend de 0,8 à 2,8  $\mu\text{m}$ , avec un mode à 1,5  $\mu\text{m}$ . Le décalage entre ces valeurs résulte de la déshydratation qui affecte les microorganismes aérosolisés. En outre, la granulométrie du bioaérosol est liée au principe optique de la technique employée (diamètre optique), cette dernière étant basée sur la mesure de la lumière diffusée ou absorbée par des aérosols théoriquement sphériques (étalonnage avec des sphères calibrées en latex).

### Stabilité de l'aérosol

De manière à évaluer la stabilité de l'aérosol, la répartition granulométrique (Figure 4) et la concentration particulaire générée (Figure 5) ont été mesurées sur une période de 20 minutes de nébulisation.

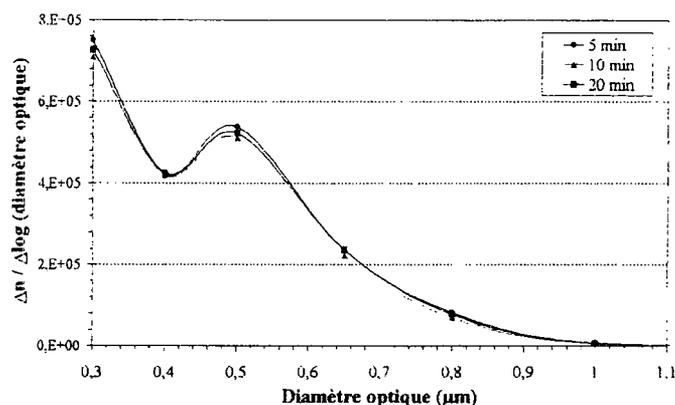


Figure 4 : Profils granulométriques de *L. pneumophila* 1 au cours de l'aérosolisation – 30%HR, 20°C

Le profil granulométrique de l'aérosol ne varie pas et conserve un mode égal à 0,5  $\mu\text{m}$ . De plus, la proportion de débris biologiques est constante, traduisant l'absence de lyse cellulaire au cours de la génération. La mesure en continu du profil est intéressante, car elle permet de préjuger indirectement de l'état physiologique des bactéries aéropportées. Contrairement à d'autres systèmes de production, le dispositif employé semble limiter le stress bactérien induit par l'aérosolisation expérimentale [Robine, 1999].

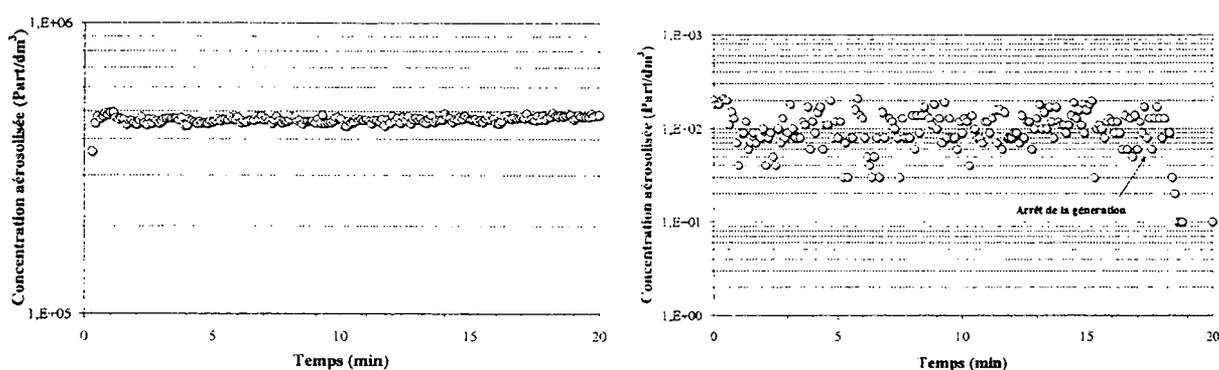


Figure 5 : Stabilité de la production de l'aérosol de *L. pneumophila* 1 dans deux domaines de concentrations,  $10^5$  et  $10^2$  particules par  $\text{dm}^3$  – génération sur 20 minutes à 30% HR, 20°C

La concentration des particules bactériennes se stabilise dès les premières minutes de fonctionnement du générateur et reste constante sur une période de 20 minutes. Cette plage de temps nous permet de réaliser des essais en maintenant une concentration stable et contrôlée. De plus, cette stabilité est observée dans un domaine de concentrations important, de  $4,5 \cdot 10^5 (\pm 10^4)$  à  $10^2 (\pm 40)$  légionelles par litre d'air.

## Contrôle de l'aérocontamination

Afin de maîtriser la production particulaire, la concentration de la suspension bactérienne initialement présente dans le générateur (Bact/L) a été reliée à la concentration en *Legionella* aérosolisées (Part/dm<sup>3</sup>). Les essais sont réalisés à une humidité relative de 30% à 20°C, à partir d'une culture en bouillon de *L. pneumophila* 1 âgée de 24 heures (Figure 6).

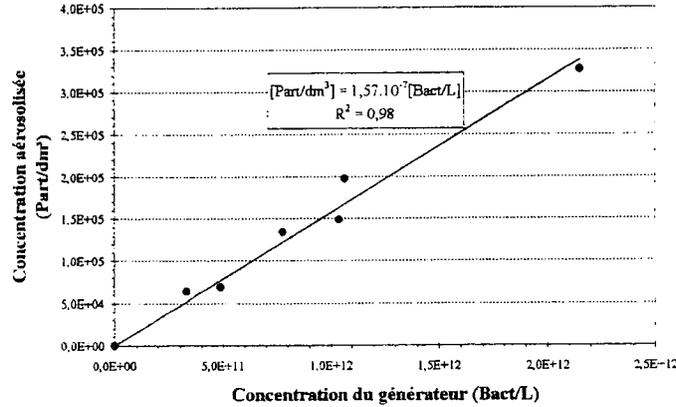


Figure 6 : Concentration de *L. pneumophila* générée (Part/dm<sup>3</sup>) en fonction de la concentration dans le nébuliseur (Bact/L) – Concentration particulaire moyennée sur 5 minutes de génération

La quantité d'aérosols biologiques augmente proportionnellement avec la charge bactérienne de la suspension, selon une relation linéaire ( $r^2=0,98$ ) validée pour des concentrations variant entre 0 et  $2 \cdot 10^{12}$  bactéries par litre. Dans les conditions expérimentales décrites, le rapport air - eau est estimé à  $10^{-7}$ .

## Etude des paramètres biologiques

L'influence de l'âge de la culture sur l'aérosol produit a été évaluée. Des cellules de *Legionella pneumophila* 1 issues d'un bouillon de 24, 48 et 72 heures ont été récupérées par centrifugation et mises en suspension dans de l'eau déionisée filtrée en vue de l'aérosolisation. Les différents profils granulométriques sont présentés en Figure 7.

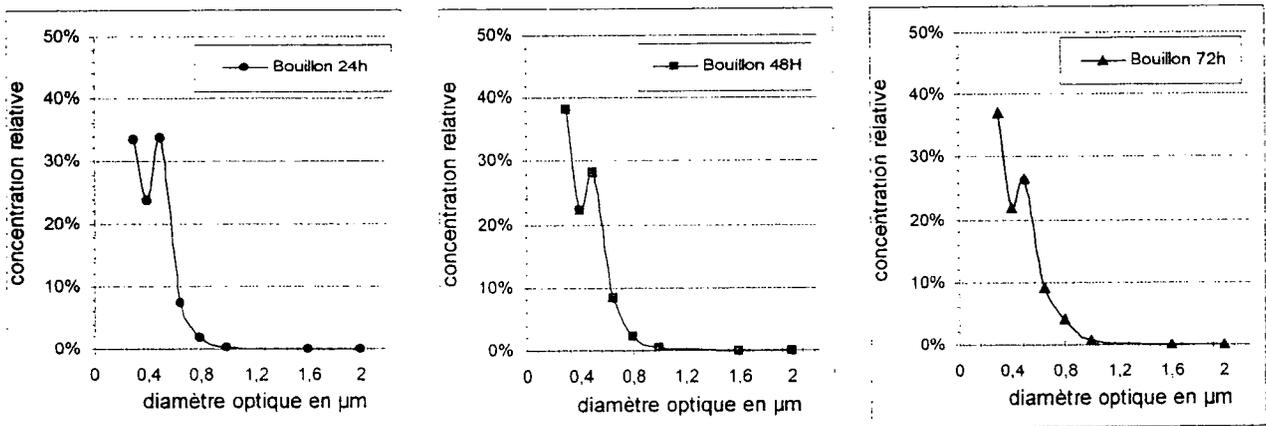


Figure 7 : Effet de l'âge de la culture sur le profil granulométrique de l'aérosol de *L. pneumophila* - 30% HR, 20°C

L'allure des profils de *L. pneumophila* ne varie pas suivant l'âge du bouillon : les particules aérosolisées mesurent entre 0,4 et 1,0 µm, avec un maximum à 0,5 µm. En revanche, la proportion de fragments augmente, reflétant l'altération physiologiques des cellules âgées. Cette fragilisation des cellules âgées semble confirmée par l'évaluation de la fraction cultivable associée. Les résultats présentés sont exprimés pour une concentration aérosolisée normée à  $10^5$  particules par litre (Figure 8).

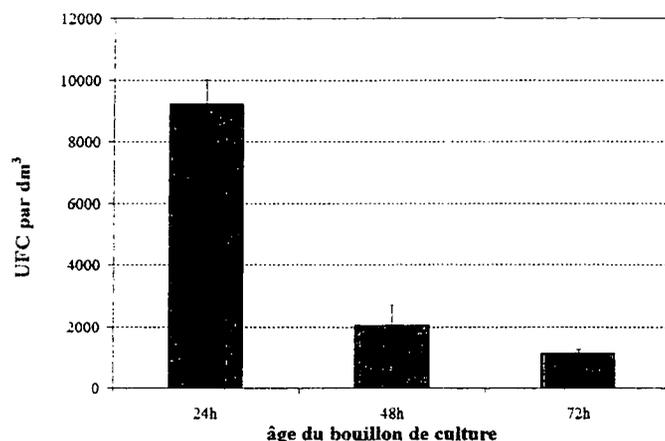


Figure 8 : Effet de l'âge de la culture sur la fraction cultivable de l'aérosol de *L. pneumophila* (valeurs représentées : moyennes sur n=3, barres d'erreur : min et max) – 30% HR, 20°C

La survie initiale de l'aérosol a été caractérisée. Pour cela, les bactéries aérosolisées sont prélevées sur lame avec l'impacteur Andersen, puis colorées avec un marqueur de l'intégrité membranaire (Kit BacLight™, Molecular probe Inc.). Les cellules sont observées au microscope à épifluorescence et dénombrées automatiquement grâce à un système d'analyse d'images. La reproductibilité du niveau de viabilité des cellules a été estimée sur 8 aérocontaminations (Figure 9).

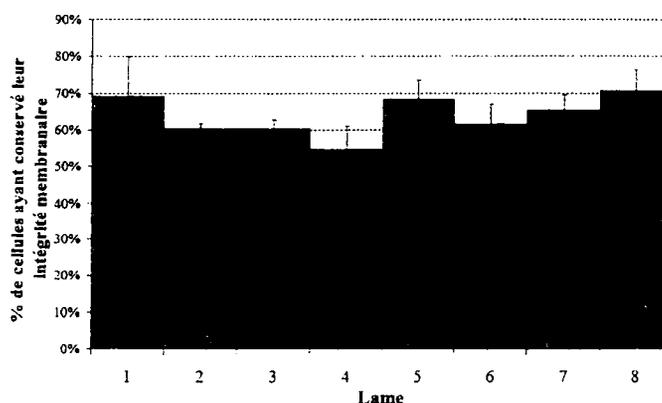


Figure 9 : Intégrité membranaire de l'aérosol de *L. pneumophila* (n=10 champs microscopiques)

La valeur moyenne de l'intégrité membranaire de l'aérosol de légionelles est de 64% ( $\pm 5,5\%$ ). Des témoins, réalisés sur les suspensions de départ, montrent que ces mêmes microorganismes présentent une viabilité proche de 90% en milieu liquide. L'absence d'effet intrinsèque à la préparation de la suspension de génération a été vérifiée : les centrifugations opérées pour récupérer les cellules cultivées en bouillon n'entraînent pas d'altération membranaire. De plus, la stabilité de l'inoculum avant et après fonctionnement du générateur a été contrôlée parallèlement à une suspension témoin sur une durée de 30 minutes. Aucune différence de survie n'est constatée dans les trois situations, ce qui permet de s'affranchir de l'effet du choc osmotique dû à l'hypotonicité du milieu et de l'impact du bullage sur la viabilité des microorganismes. La baisse observée résulte probablement du stress induit par l'aérosolisation (déshydratation) auquel s'ajoute l'effet néfaste lié à la méthode de collecte. Néanmoins, cette biomasse active est suffisante pour évaluer l'efficacité biologique des systèmes de prélèvement.

### Application à l'évaluation des biocollecteurs

Trois principes de collecte ont été expérimentés sur l'aérosol de *L. pneumophila* sgl dans leurs conditions usuelles d'utilisation. La méthode d'analyses retenue est la mise en culture sur milieu nutritif BCYE $\alpha$ . Compte tenu de la taille des aérosols de *L. pneumophila* produits, nous avons considéré que la quasi-totalité de ces microorganismes aéroportés devrait théoriquement être captée avec les dispositifs testés (Tableau II). Les résultats sont alors représentés sur la Figure 10 sous la forme de ratios entre la concentration en particules et le nombre de légionelles cultivables.

Principe	Préleveur	Efficacité physique de collecte
Impaction solide	Andersen à 1 étage	$d_{50} = 0,65 \mu\text{m}$
Impaction liquide	Biosampler	90% pour une taille de $0,5 \mu\text{m}$ et 100% pour $1 \mu\text{m}$
Filtration	Sartorius Collectron MD8	99,99 % pour une taille $> 0,5 \mu\text{m}$

Tableau II : Efficacité de collecte des dispositifs de collecte utilisés

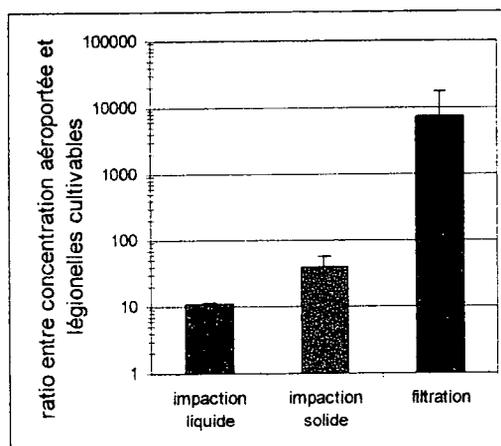


Figure 10 : Ratio entre la concentration de l'aérosol de *Legionella pneumophila* et la fraction cultivable selon la technique de collecte employée (n=3, barres d'erreur=min et max)

Les résultats montrent une diminution relative de la fraction cultivable suivant le principe de collecte employé. Le meilleur rendement est obtenu avec l'impaction liquide, suivie de l'impaction solide, la filtration apparaissant comme la plus létale des trois techniques testées. Dans ce dernier cas, la faible survie mesurée semble corrélée à la dessiccation des microorganismes induite par le passage du flux d'air au travers du média filtrant [Griffiths *et al.*, 1997].

## CONCLUSION

Une chambre d'exposition contrôlée a été développée afin d'étudier l'aérosol de *Legionella*. Dans nos conditions d'essai, le dispositif expérimental a permis de simuler une biocontamination aéroportée stable sur 20 minutes, dans des domaines de concentrations compris entre  $10^2$  et  $10^5$  particules par  $\text{dm}^3$ . Par ailleurs, la mesure en continu des profils granulométriques a révélé un nombre de débris biologiques constant, ce qui suggère que les propriétés du système de bullage proposé semblent diminuer le stress bactérien induit par l'aérosolisation expérimentale. Ce résultat est intéressant dans le cas des bactéries à Gram négatif, pour lesquelles l'aérosolisation à partir d'un milieu liquide entraîne classiquement des phénomènes de lyse cellulaire [Strange et Cox, 1976].

A partir de ce bioaérosol contrôlé, trois systèmes de collecte ont été évalués en terme d'efficacité biologique. L'impaction en milieu liquide a présenté les meilleurs résultats, avec une efficacité 4 et 700 fois supérieure à celle de l'impaction en milieu solide et de la filtration. Ces premières observations ont été corroborées lors de campagnes de mesure ciblant les installations d'eau chaude sanitaire dans des établissements collectifs [Deloge *et al.*, 2004].

Ce travail de recherche a été réalisé en collaboration avec l'Institut National de la Santé et de la Recherche Médicale - Unité 420 (INSERM-U420) et soutenu par l'Agence Française de Sécurité Sanitaire Environnementale (AFSSE).

## REFERENCES

- Bollin GE, *et al.*, 1985. Aerosols containing *Legionella pneumophila* generated by shower heads and hot-water-faucets. *Appl. Environ. Microbiol.*, 50 (5), pp. 1128-31.
- Breiman RF, *et al.*, 1990. Role of air sampling in investigation of an outbreak of legionnaires' disease associated with exposure to aerosols from an evaporative condenser. *J. Infect. Dis.*, 161(6), pp. 1257-61.
- Dennis PJ, *et al.*, 1984. *Legionella pneumophila* in aerosol from shower baths. *J. Hyg. (Camb)*, 93(2), pp. 349-53.

Deloge M *et al.*, 2004. Aerosols containing *Legionella* measured by fluorescent *in situ* hybridisation: new approaches to metrology. in Proceeding of the 19<sup>th</sup> annual meeting of the European Working Group for *Legionella* Infections (EWGLI), Chamonix, France.

Griffiths WD *et al.*, 1997. The development of sampling methods for the assessment of indoor bioaerosols. *J. Aerosol Sci.*, 28(3), pp. 437-57.

Hussong D, *et al.*, 1987. Viable *Legionella pneumophila* not detectable by culture on agar media. *Biotechnology*, 5, pp. 947-50.

Ishimatsu S, *et al.*, 2001. Sampling and detection of *Legionella pneumophila* aerosols generated from an industrial cooling tower. *Ann. Occup. Hyg.*, 45(6): p. 421-7.

Robine E, 1999. Fixation et survie des aérosols bactériens sur les surfaces. Thèse de l'Université Paris XII.

Strange RE et Cox CS, 1976. Survival of dried and airborne bacteria. *Symp. Soc. Gen. Microbiol.*, 26, pp. 111-54

Ulevicius V, *et al.*, 1997. Aerosolisation of particles from a bubbling liquid : characteristics and generator development. *Aerosol Sci. Technology*, 26, pp. 175-90.

# MESURAGE DES ENDOTOXINES DANS L'AIR AU COURS DU TRAVAIL DANS LES EGOUTS

P. Duquenne\*(1), D. Ambroise (2), P. Görner (1), G. Greff-Mirguet (1) et J.F. Fabriès (1)

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

Philippe.Duquenne@inrs.fr

(2) Département Epidémiologie en Entreprise, INRS, BP 27, 54501 Vandoeuvre Cedex.

## TITLE

### Measurement of airborne endotoxins during sewers work

## ABSTRACT

Stationary and personal air sampling were performed in order to assess the exposure to airborne endotoxin during sewers work. Samples were collected by air filtration through polycarbonate filters (PC), glass fibre filters (FV) and with a CIP 10-M sampler. Endotoxins were quantified with the *Limulus* Amebocyte Lysate (LAL) assay. Concentrations of airborne endotoxins at sewers workplaces (16 to 420 EU/m<sup>3</sup>) were higher than those measured outside the sewer network (0.6 to 10 UE/m<sup>3</sup>). Airborne endotoxins levels at workplace were higher when FV filters were used as filtration support rather than PC filters. Measurements at the workplace with the CIP 10-M sampler were equivalent to FV filters when stationary sampling was performed but were not statistically different with PC filters for personal sampling. Anyway, airborne endotoxin exposure of sewer workers depended on workplace and activity. Therefore our study shows another example of the effect of sampling methods on the measurements of airborne endotoxins at the workplace. It is the first case of utilization of the CIP 10-M sampler reported for that purpose.

## RESUME

Nous avons effectué une campagne de mesurage des endotoxines dans l'air de réseaux d'égouts afin d'évaluer l'exposition aux endotoxines des salariés dans ce secteur d'activité et de confronter les résultats de différentes techniques d'échantillonnage dans des conditions de terrain. Les mesures ont été effectuées sur différents sites pendant des activités caractéristiques du travail des égoutiers. Le dosage des endotoxines a été effectué par la méthode au Lysat d' Amebocyte de Limule (LAL).

Quelle que soit l'activité considérée, les taux d'endotoxines mesurés dans l'air des postes de travail (16 à 420 EU/m<sup>3</sup>) sont supérieurs à ceux mesurés dans l'air extérieur (0,6 à 10 UE/m<sup>3</sup>). Au poste de travail, les mesures effectuées montrent que l'utilisation de filtres en fibres de verre conduit à des valeurs d'exposition plus élevées que les membranes en polycarbonate. Par ailleurs, le CIP 10-M apparaît aussi performant que la filtration sur filtre en fibres de verre pour l'échantillonnage à poste fixe alors que, pour l'échantillonnage individuel, aucune différence statistiquement significative n'est mise en évidence par rapport à la filtration sur membrane en polycarbonate.

Nos travaux apportent un nouvel exemple d'utilisation des filtres en fibres de verre pour le mesurage des endotoxines dans l'air dans le cas particulier du travail en égouts. Ils constituent également la première utilisation rapportée du CIP 10-M pour mesurer les endotoxines dans les aérosols.

Les endotoxines sont des constituants de la paroi de toutes les bactéries Gram négatives. Elles peuvent être libérées lors de la croissance et de la lyse cellulaire et être présentes dans les bioaérosols. L'exposition à des endotoxines dispersées dans l'air des lieux de travail peut être à l'origine de différents symptômes respiratoires et généraux (toux, dyspnée, diarrhées, fièvre, etc...).

Bien qu'il existe une méthode Européenne normalisée sur le dosage des endotoxines dans l'air, l'interprétation des données d'exposition mentionnées dans la littérature se heurte au manque de standardisation des méthodes d'échantillonnage et d'analyse employées.

Le laboratoire de métrologie des aérosols de l'INRS a mis en place une méthode de mesurage des endotoxines dans l'air des lieux de travail. Pour évaluer cette méthode et la comparer à d'autres, nous avons effectué une campagne de mesurage des endotoxines dans l'air des égouts de Lyon. En effet, les travailleurs égoutiers sont susceptibles d'être exposés à des bioaérosols contenant des microorganismes et/ou leurs produits, parmi lesquels les endotoxines.

Cette étude a pour objectifs à la fois d'évaluer trois méthodes d'échantillonnage (filtration sur membranes en polycarbonate, filtration sur filtres en fibres de verre et échantillonneur CIP 10-M) pour le mesurage des endotoxines dans l'air et d'évaluer l'exposition des travailleurs égoutiers aux endotoxines.

## **1 MATRIELS ET METHODES**

### **1.1 Déroulement de la campagne**

La campagne d'échantillonnage s'est déroulée sur une période de quatre mois, de mars à juin 2004. Le mesurage des endotoxines dans l'air a été effectué pendant le travail des égoutiers, sur 20 sites de travail différents représentant quatre types d'activités distinctes (le contrôle du réseau, le curage des bassins de dessablement, le curage des petites lignes du réseau et le dépotage de camion). Le choix des sites a été déterminé aléatoirement en fonction des interventions des salariés.

### **1.2 Méthodes d'échantillonnage**

L'échantillonnage a été effectué soit par filtration de l'air soit par centrifugation liquide.

#### **1.2.1 Echantillonnage par filtration**

L'échantillonnage par filtration a été effectué à l'aide de cassettes porte-filtre en polypropylène de 37 mm de diamètre et constituées de 3 pièces (Millipore, France). Pour l'échantillonnage les cassettes fermées étaient chacune connectées à une pompe individuelle (Gilair, Gillian®) assurant un débit nominal moyen de 2 l/min. La durée de prélèvement s'est échelonnée de 8 à 112 minutes sur l'ensemble de la campagne. Chaque cassette contenait un tampon (Absorbant pads, Millipore, France) et, soit une membrane en polycarbonate de 37 mm de diamètre et de pores de 0.8 µm (Nuclepore® Polycarbonate, Corning, France), soit un filtre en fibres de verre de 37 mm de diamètre (GF-filter, Whatman®, France).

#### **1.2.2 Echantillonnage d'air par centrifugation liquide**

L'échantillonnage par centrifugation liquide a été effectué à l'aide de l'appareil CIP10-M (Görner *et al.*, 2004) fonctionnant au débit nominal de 10 l/min. Les coupelles contenaient 1.8 ml d'Eau Distillée Stérile Apyrogène (EDSA). La durée de prélèvement s'est échelonnée de 17 à 105 minutes sur l'ensemble de la campagne et aucun sélecteur n'était présent sur l'appareil. Au préalable, les coupelles de CIP 10-M ont été désinfectées à l'eau de Javel, abondamment rincées avec de l'EDSA, séchées à l'étuve à 50°C puis stérilisées à l'autoclave à 121°C pendant 30 minutes. Au terme du prélèvement, le contenu de la coupelle a été soigneusement transféré dans un tube en verre stérile apyrogène (Depyrogenated sample container, Bio-Wittaker, France). La coupelle a été rincée deux fois et les produits de rinçage ajoutés au premier échantillon.

### **1.3 Stratégie d'échantillonnage**

Quelle que soit la stratégie d'échantillonnage des prélèvements d'air extérieur au réseau d'égout ont été systématiquement effectués. De même, des contrôles de terrain (blancs de terrain) ont été effectués en mesurant la quantité d'endotoxines présentes sur des coupelles et des filtres provenant de cassettes emmenées sur le terrain mais n'ayant pas servi au prélèvement. Un seul blanc de terrain a été confectionné par date de prélèvement.

### 1.3.1 Echantillonnage individuel

L'échantillonnage individuel a été effectué en équipant un opérateur (agent INRS) avec 3 dispositifs de prélèvement identiques. Les capteurs ont été disposés sur le buste de l'opérateur. Compte tenu de la gêne qu'auraient pu occasionner ces dispositifs pendant leur activité, les travailleurs égoutiers n'ont pas été équipés. Cependant, durant toute la durée des prélèvements, l'opérateur se plaçait aussi près que possible des égoutiers au travail.

Les séries de 3 mesures par filtration ont été réalisées sur la base d'un plan d'expérience complet à deux facteurs : le type de filtre (FV ou PC) et l'activité des égoutiers (extraction en bassin, curage mécanisé, contrôle réseau ou dépotage). Treize séries ont été réalisées au total comportant au minimum 3 répétitions par type d'activité.

Trois séries de mesures comparant la filtration à l'échantillonnage par centrifugation liquide ont été réalisées lors de l'activité de curage mécanisé.

### 1.3.2 Echantillonnage à poste fixe

L'échantillonnage à poste fixe a été effectué une seule fois lors du curage d'un bassin de dessablement. Les prélèvements ont été effectués en disposant de façon alternée sur une rampe et espacés de 15 cm les uns des autres 3 cassettes contenant un filtre en fibres de verre, 3 cassettes contenant une membrane en polycarbonate et 3 CIP 10-M. La rampe était placée sur le plancher de conduite de l'égout, au bord du bassin et à 70 cm du sol. Les orifices des cassettes étaient tournés horizontalement vers les travailleurs égoutiers en activité.

### 1.4 Transport des échantillons

Les cassettes de prélèvement fermées et les tubes en verre contenant les échantillons liquides provenant du CIP 10-M ont été transportés dans des enceintes réfrigérées. La durée de transport et de conservation dans ces conditions n'a pas excédé 12 heures et, dès leur arrivée au laboratoire, les échantillons ont été entreposés à 4°C, en attendant l'analyse.

### 1.5 Extraction des endotoxines à partir des filtres

L'extraction des endotoxines à partir des filtres a été effectuée dans les 24 heures après les prélèvements. Cette opération a été menée dans des tubes coniques en polypropylène, stériles et apyrogènes (Greiner-50 ml, Greiner-Bio-One) contenant 5 ml d'EDSA (Eau p.p.i, B. Braun Medical, France). Chaque tube a été agité pendant 1 minute à l'aide d'un vortex (Reax control, Heidolph), puis plongé pendant 20 minutes dans un bain à ultra-sons (Bronson 1210, Bronsonic®, Bronson Ultrasonic Corporation) fonctionnant à 47 KHz et à 60°C. Au terme de la période de sonication, chaque tube a été agité au vortex pendant 1 minute à 2500 rpm. Pour les filtres en fibre de verre, l'extrait a été filtré à l'aide d'unités stériles de filtration contenant une membrane en polyéthersulfone (PES) de diamètre de pores équivalents 0.22 µm (Millex®-GP, Millipore, USA).

### 1.6 Dosage des endotoxines

Le dosage des endotoxines dans les échantillons a été effectué par la méthode au Lysat d'Amebocytes de Limules (LAL) dans les 24 heures après les prélèvements. Pour le dosage, le kit LAL-Kinetic-QCL™ (Cambrex, France) a été utilisé conformément aux indications du fournisseur et selon une procédure rigoureusement identique tout au long de la campagne. Les réactifs comprenaient l'endotoxine lyophilisée de *Escherichia coli* 055:B5 (E. coli 055:B5 Endotoxin, lot 2L6560), le réactif LAL lyophilisé (Kinetic-QCL Reagent, lot 2L151M) et l'EDSA (LAL Reagent Water, lot 3L1720).

Toutes les manipulations ont été effectuées sous Poste de Sécurité Microbiologique avec du matériel stérile et apyrogène. Avant d'être utilisées (dilution, distribution, pipetage etc...), les solutions d'endotoxines et les échantillons ont été systématiquement agités pendant 30 secondes à 2500 rpm à l'aide d'un vortex (Reax control, Heidolph). Pour l'ensemble de la campagne chaque réactif utilisé provenait d'un seul et même lot.

Le dosage a été effectué sur deux exemplaires de l'échantillon (solution à examiner), l'échantillon dopé (solution à examiner à laquelle est ajoutée une solution d'endotoxines à 0.5 EU/ml), la gamme étalon (solutions d'endotoxines à 0.005, 0.05, 0.5, 5 et 50 EU/ml) et le témoin négatif (EDSA). Les réactifs et les solutions à analyser ont été distribués dans une plaque de microtitration stérile et apyrogène (Culture Test Template, Orange Scientific). La lecture de la densité optique (D.O.) à 405 nm a été effectuée automatiquement dans chaque puits toutes les 150 secondes pendant 1h40 et à

37°C à l'aide du lecteur de micro-plaques (ELx 808 IU, BIO-TEK), piloté par le logiciel Win-KQCL™ (version 1.20).

### 1.7 Résultats et calculs

Les résultats de mesurage des endotoxines dans l'air sont calculés de la façon suivante :

$$E : (e \times v_0)/V$$

Avec :  $V = (Q \times T)/1000$

Et :

$V$  : volume d'air échantillonné ( $m^3$ ),  $V_0$  : volume de solution d'extraction (ml),  $e$  : concentration en endotoxines dans l'extrait (EU/ml),  $E$  : concentration en endotoxines dans l'échantillon d'air ( $EU/m^3$ ),  $T$  : durée du prélèvement (min.) et  $Q$  : débit de l'appareil de prélèvement (l/min.).

### 1.8 Traitement statistique des données

Les analyses statistiques ont été réalisées à l'aide du logiciel SAS (SAS Inc., Version 8.02). Les résultats du plan d'expérience ont été interprétés par une analyse de la variance (ANOVA) en retenant comme variable dépendante le logarithme népérien de la concentration et comme variables indépendantes la méthode de prélèvement, l'activité et la série de mesure concernée. Le seuil de signification était de 5 %. Les résultats ont été exprimés sous forme de moyennes ajustées sur les autres variables du modèle ANOVA avec leur intervalle de confiance à 95 %.

## 2 RESULTATS

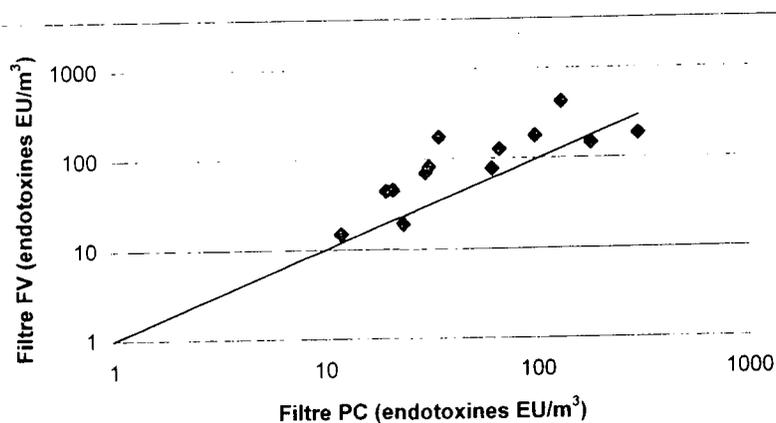
### 2.1 Les témoins extérieurs

Les prélèvements d'air extérieur au réseau d'égouts ont été effectués pour la majorité des sites. Parmi les échantillons collectés, onze ont fourni des valeurs en endotoxines inférieures à  $5 EU/m^3$ , trois des valeurs comprises entre 5 et  $10 EU/m^3$ , et trois autres des valeurs supérieures à  $50 EU/m^3$ . Les résultats inférieurs à  $5 EU/m^3$  correspondent à ceux rapportés dans la littérature pour la mesure des endotoxines dans l'air extérieur en milieu urbain (Mueller-Anneling *et al.*, 2004). Dans nos essais les valeurs les plus élevées ont été observées lorsque le dispositif de prélèvement a été confié à un opérateur qui a pu participer, en surface, aux activités de curage (à proximité de la bouche d'égout). Dans ces cas les prélèvements ne peuvent pas être considérés comme « témoins » mais davantage comme des résultats d'exposition du personnel participant, en surface, aux tâches de curage des égouts.

### 2.2 Echantillonnage individuel

Hormis deux cas particuliers les concentrations d'endotoxines mesurées dans l'air des égouts au cours de l'activité des travailleurs égoutiers sont supérieures à celles mesurées dans l'air extérieur au même moment. Les deux cas particuliers correspondent à des prélèvements pour lesquels le capteur était situé à proximité de la bouche d'égout (voir section 2.1).

Les données collectées mettent en évidence des variations importantes des valeurs d'expositions en fonction de l'activité, de la méthode de prélèvement employée et, pour une même activité, du site sur lequel les échantillons ont été collectés. Les valeurs d'exposition ainsi mesurées s'échelonnent de 13 à  $440 EU/m^3$  pour l'échantillonnage sur filtres en fibres de verre, de 3,4 à  $420 EU/m^3$  pour l'échantillonnage sur membrane en polycarbonate et de 3 à  $275 EU/m^3$  pour l'échantillonnage avec le CIP 10-M. Comme le montre la figure 1, la comparaison des données obtenues avec l'échantillonnage par filtration laisse supposer que les filtres en fibres de verres conduisent à des valeurs d'exposition plus élevées que les membranes en polycarbonate ( $p < 10^{-4}$ ). La moyenne ajustée des concentrations mesurées avec un filtre PC représente environ 60 % de la valeur obtenue avec un filtre FV.



**Figure 1 :** Comparaison des données d'exposition individuelles aux endotoxines mesurées par filtration sur filtre en fibres de verre et sur membrane en polycarbonate. Les données représentent des moyennes calculées à partir de trois valeurs. **FV** : filtre en fibres de verre. **PC** : membrane en polycarbonate.

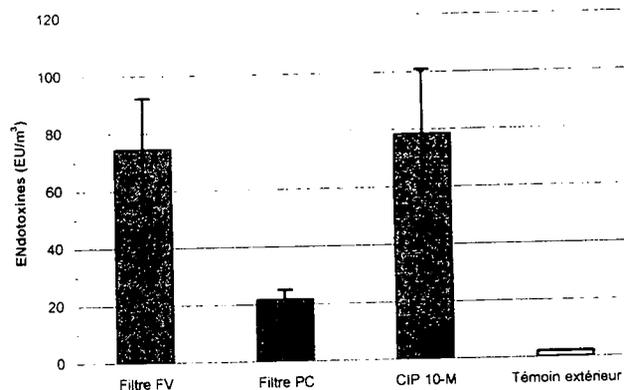
En revanche aucune différence significative n'a été observée entre la méthode d'échantillonnage par filtration sur membrane en polycarbonate et celle avec le CIP 10-M (tableau 1). Dans les deux cas, l'étude statistique a permis de dégager un effet de l'activité des travailleurs égoutiers sur les mesures d'exposition aux endotoxines, les valeurs les plus élevées étant observées dans les activités d'extraction en bassin (données non montrées).

Méthodes comparées	Endotoxines (EU/m <sup>3</sup> )	Intervalle de confiance à 95%	p	Nombre de séries
<i>filtre FV</i>	85,3	73,0 – 99,8	< 0,0001	13
<i>filtre PC</i>	48,9	41,8 – 57,2		
<i>CIP10-M</i>	39,3	22,2 – 69,7	0,11	3
<i>filtre PC</i>	74,5	42,1 – 132,1		

**Tableau 1 :** Comparaison des méthodes d'échantillonnage individuel pour le mesurage des endotoxines dans l'air des égouts pendant le travail des égoutiers. Les résultats présentés correspondent à la moyenne de trois valeurs. Les comparaisons ont été effectuées par l'analyse de la variance à deux facteurs au seuil de 5%. Seul l'effet du facteur « méthode » est présenté.

### 2.3 Echantillonnage à poste fixe

Le mesurage des endotoxines dans l'air à poste fixe dans un bassin de dessablement en cours de vidange a été simultanément effectué à l'aide des méthodes par filtration sur membrane en polycarbonate, par filtration sur filtre en fibres de verre et par impaction liquide avec le CIP 10-M. Les trois dispositifs de prélèvement étaient placés sur une rampe à proximité de l'activité.



**Figure 2** : Résultats de mesurage à poste fixe des endotoxines dans l'air d'un bassin de dessablement en cours de vidange. Les moyennes ont été calculées à partir de 3 répétitions et les barres représentent les intervalles de confiance à 95%. FV : Filtre en fibres de verre, PC : membrane en polycarbonate.

Dans ces conditions, les méthodes d'échantillonnage par filtration sur filtre en fibres de verre et par impaction liquide avec le CIP 10-M conduisent à des mesures très proches en endotoxines (respectivement 74 et 78 EU/m<sup>3</sup>) dans l'air du bassin (figure 2). En revanche, les mesures obtenues par filtration de l'air sur membrane en polycarbonate sont significativement inférieures (21 EU/m<sup>3</sup>).

### 3 DISCUSSION

Les résultats de mesurage par filtration font apparaître que l'utilisation de filtres en fibres de verre conduit à des valeurs d'exposition estimées plus élevées que les membranes en polycarbonate. Ceci a été observé à la fois pour l'échantillonnage individuel et à poste fixe. Dans la littérature plusieurs travaux ont permis d'établir que, lorsque les méthodes d'extraction et de dosage sont fixées, les résultats de mesurage dépendent à la fois des caractéristiques des supports employés et de la nature de l'aérosol échantillonné (Gordon *et al.*, 1992; Reynolds *et al.*, 2002). A notre connaissance aucune étude n'a réellement permis d'évaluer l'effet de ces différents supports sur l'efficacité de collecte des endotoxines et les différences observées sont davantage attribuées à la capacité de ces supports à libérer les endotoxines lors de la phase d'extraction. Ainsi, dans des conditions expérimentales de laboratoire, Laitinen *et al.* (Laitinen *et al.*, 2001) ont démontré que l'efficacité d'extraction des endotoxines pures sur des filtres de natures différentes, les auteurs ont observé des taux de récupération de 90, 80, 40 et 5% dans les filtres en fibres de verre, en ester de cellulose, en polycarbonate et en PVC, respectivement. Des différences sont également observées lorsque l'extraction est effectuée sur des filtres utilisés pour l'échantillonnage des bioaérosols en conditions réelles de terrain. Dans une étude (Laitinen 1999) les filtres en fibres de verre permettent une meilleure extraction des endotoxines. Dans un autre essai (Douwes *et al.*, 1995) l'extraction conduit à des taux de récupération comparables pour les filtres en fibres de verre, en polycarbonate et en téflon mais inférieurs pour les filtres en ester de cellulose. Les travaux de Gordon *et al.*, (Gordon *et al.*, 1992) mettent également en évidence des taux de récupération des endotoxines meilleurs à partir des filtres en fibres de verre par rapport à sept autres types de filtres mais l'efficacité d'extraction varie avec la nature de l'aérosol échantillonné. Ces différences sont attribuées à la capacité des endotoxines à s'adsorber sur les filtres, et certains, tels les filtres en fibre de verre, seraient moins favorables à ce phénomène.

L'échantillonneur CIP 10-M est apparu aussi performant que la méthode par filtration sur filtres en fibres de verre pour mesurer les endotoxines dans l'air des égouts lorsqu'il a été utilisé pour l'échantillonnage à poste fixe. En revanche, lorsqu'il a été utilisé pour l'échantillonnage individuel, il apparaît moins performant que la filtration sur filtre en fibres de verre. Aucune différence significative n'est observée avec la méthode par filtration sur membrane en polycarbonate. Compte tenu du peu de données dont nous disposons dans cette campagne sur le CIP 10-M, il apparaît difficile d'expliquer facilement ces différences. Les résultats obtenus avec le CIP 10-M montrent que cette méthode

pourrait être utilisée pour l'échantillonnage des endotoxines dans l'air mais des essais complémentaires sont nécessaires pour en cerner les limites.

Dans tous les cas les trois méthodes d'échantillonnage permettent de mettre en évidence une exposition des salariées aux endotoxines pendant le travail dans les égouts par rapport à l'environnement extérieur. Il a déjà été observé que le travail dans les égouts pouvait conduire à une augmentation de nombre total de microorganismes dans l'air (Karpinski *et al.*, 2000). Notre étude montre qu'il augmente également l'exposition aux endotoxines dans l'air. Dans la littérature scientifique nous n'avons pas trouvé de travaux présentant des résultats de mesurage des endotoxines dans les égouts. Cependant, la présence d'endotoxines dans l'air a également été observée dans des secteurs d'activités proches comme les usines de traitement des eaux usées. Il n'y a pas de valeur limite d'exposition définie pour les endotoxines au niveau international. Une valeur de 50 EU/m<sup>3</sup> a été proposée dans un premier temps aux Pays Bas (Heederik and Douwes 1997). Finalement le ministère Néerlandais des affaires sociales a ramené cette valeur à 200 EU/m<sup>3</sup>, seule référence existante aujourd'hui (Thorn *et al.*, 2002; Douwes *et al.*, 2003). Au cours de la campagne de prélèvements dans les égouts, 17 % des résultats obtenus (fibres de verre) dépassent cette valeur de référence. Les valeurs correspondent globalement à celles rapportées dans la revue de Rylander (Rylander 2002) pour le traitement des eaux usées. Dans ce secteur les endotoxines sont suspectées de provoquer des troubles gastro-intestinaux, des maux de tête et de la fatigue (Thorn and Kerekes 2001). On peut donc s'interroger sur la prévalence, chez les travailleurs égoutiers, de troubles liés à l'exposition aux endotoxines durant leur travail.

Pour la campagne de mesurage les capteurs ont été placés sur des opérateurs différents qui, compte tenu de la configuration des lieux, n'ont pas pu être rigoureusement placés à égale distance de l'activité. Dans ces conditions, il est vraisemblable que l'exposition des opérateurs à l'aérosol généré par l'activité était sensiblement différente. Avec la méthode de prélèvement et l'activité du salarié, la position du capteur est un troisième facteur, difficilement quantifiable, dont il faut tenir compte pour les mesures d'expositions individuelles aux bioaérosols. Pour prendre en compte ce dernier facteur dans notre étude il aurait fallu équiper individuellement chaque opérateur des trois systèmes de prélèvement, ce qui n'a pas pu être fait. Cet effet opérateur aléatoire n'a pas pu être mesuré.

#### 4 CONCLUSION

La campagne de mesurage des endotoxines dans l'air des égouts de Lyon s'est déroulée de mars à juin 2004 et a permis de collecter plus d'une centaine d'échantillons. Des prélèvements individuels et à poste fixe ont été effectués. Ils ont permis d'évaluer trois méthodes d'échantillonnage d'air différentes (filtration sur filtres en fibres de verre, filtration sur membrane en polycarbonate et prélèvement avec l'échantillonneur CIP 10-M).

Les résultats montrent l'importance de la méthode d'échantillonnage pour l'évaluation de l'exposition aux endotoxines sur les lieux de travail. Dans notre étude l'échantillonnage par filtration sur filtres en fibres de verre conduit à des mesures d'exposition plus élevées que la filtration sur membranes en polycarbonate. Le CIP 10-M apparaît au moins aussi performant que la filtration sur membrane en polycarbonate et constitue une alternative qui mérite d'être étudiée.

Notre étude met en évidence une exposition des travailleurs égoutiers aux endotoxines pendant leur activité professionnelle. Pour une méthode d'échantillonnage donnée les valeurs d'exposition mesurées sont variables d'une activité à l'autre et pour une même activité d'un site à l'autre, et on peut s'interroger sur l'effet de cette exposition sur la santé des salariés.

Nos travaux apportent un nouvel exemple de l'utilisation des filtres en fibres de verre pour le mesurage des endotoxines dans l'air dans le cas particulier du travail en égouts. L'emploi de filtres en fibres de verre sans liant est d'ailleurs une exigence de la norme EN14031 (CEN (Comité Européen de Normalisation) 2003). Ils constituent également la première utilisation rapportée du CIP 10-M pour mesurer les endotoxines dans les aérosols.

## 5 REFERENCES

- CEN (Comité Européen de Normalisation) (2003). "Atmosphère des lieux de travail - Détermination des endotoxines en suspension dans l'air. Norme Européenne EN14031. Classement AFNOR X43-240."
- Douwes, J., Thorne, P., Pearce, N. and Heederik, D. (2003). "Bioaerosol health effects and exposure assessment: progress and prospects." *The Annals of Occupational Hygiene*. 47, 187-200.
- Douwes, J., Versloot, P., Hollander, A., Heederik, D. J. and Doekes, G. (1995). "Influence of various dust sampling and extraction methods on the measurement of airborne endotoxin." *Applied and Environmental Microbiology*. 61, 1763-1769.
- Gordon, T., Galdanes, K. and Brosseau, L. (1992). "Comparaison of sampling media for endotoxin-contaminated aerosol." *Applied Occupational and Environmental Hygiene*. 7, 472-477.
- Görner, P., Fabriès, J. F., Wrobel, R., Witschger, O. and Duquenne, P. (2004). "The personal bioaerosol sampler CIP 10-M." *Journal of Aerosol Science Abstracts Eur. Aerosol Conf.*, Budapest, 6-10 Sept. S607-S608.
- Heederik, D. and Douwes, J. (1997). "Towards an occupational exposure limit for endotoxins ?" 4, 17-19.
- Karpinski, C., Scheidt-Illig, R., Wenzel, E., Welker, F., Friedrich, I., Bartsch, R., Kerzel, A., Peter, C. and Schiele, R. (2000). "Investigations of possible infection sources during sewer working." *Gefahrstoffe - Reinhaltung der Luft*. 60, 413-421.
- Laitinen, S. K. (1999). "Importance of sampling, extraction and preservation for quantification of biologically active endotoxin." *Annals of Agriculture and Environmental Medicine* 6(1): 33-38.
- Laitinen, S. K., Kangas, J., Husman, K. and Susitaival, P. (2001). "Evaluation of exposure to airborne bacterial endotoxins and peptidoglycans in selected work environments." *Annals of Agriculture and Environmental Medicine*. 8, 213-219.
- Mueller-Anneling, L., Avol, E., Peters, J. M. and Thorne, P. S. (2004). "Ambient Endotoxin Concentrations in PM10 from Southern California." *Environmental Health Perspectives*. 112, 583-8.
- Reynolds, S. J., Thorne, P. S., Donham, K. J., Croteau, E. A., Kelly, K. M., Lewis, D., Whitmer, M., Heederik, D. J., Douwes, J., Connaughton, I., Koch, S., Malmberg, P., Larsson, B. M. and Milton, D. K. (2002). "Comparison of endotoxin assays using agricultural dusts." *American Industrial Hygiene Association Journal*. 63, 430-438.
- Rylander, R. (2002). "Endotoxin in the environment—exposure and effects." *Journal of Endotoxin Research*. 8, 241-52.
- Thorn, J., Beijer, L., Jonsson, T. and Rylander, R. (2002). "Measurement strategies for the determination of airborne bacterial endotoxin in sewage treatment plants." *The Annals of Occupational Hygiene*. 46, 549-54.
- Thorn, J. and Kerekes, E. (2001). "Health effects among employees in sewage treatment plants: A literature survey." *American Journal of Industrial Medicine*. 40, 170-9.

# MODELISATION MACROSCOPIQUE DE L'INFLUENCE DES PARAMETRES VENTILATOIRES SUR LA QUANTITE D'AEROSOL INHALEE AU COURS DE LA NEBULISATION.

L. Vecellio None\*, D. Grimbert, P. Diot

INSERM U-618, IFR 135, Equipe aérosols et cancer broncho-pulmonaire, Laboratoire de Biophysique Cellulaire et RMN, Faculté de Médecine de Tours, 37044 Tours

## 1. Présentation de l'étude

La masse de médicament sous forme aérosol déposée dans les voies respiratoires d'un patient est un des paramètres important pour prédire les effets thérapeutiques ou nocifs de l'aérosolthérapie. Cette masse de médicament inhalée dépend non seulement de l'aérosol produit mais également des conditions d'inhalation du patient.

Différentes méthodes expérimentales sont utilisées pour mesurer la masse inhalable des aérosols médicamenteux produits par nébulisation. 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 inhalable pour une ventilation donnée.

La respiration calme d'un patient peut être assimilée à une fonction sinusoïdale entre le débit respiratoire du patient et le temps (Nikander et al, 2001 ; Roth et al, 2003). Les principaux paramètres respiratoires sont la fréquence (nombre de cycles respiratoires par minute), le volume courant (volume d'air inhalé par cycle) et le rapport entre le temps inspiratoire et le temps durant un cycle respiratoire. L'objectif de cette étude était de réaliser un modèle mathématique afin de prédire la masse inhalable en fonction des paramètres respiratoires. Pour valider ce modèle mathématique, des mesures in vitro de masses de médicament inhalables étaient réalisées avec différents aérosols et différents modèles de ventilation.

## 2. Matériel et méthodes

### 2.1. Modèle mathématique

#### 2.1.1. Modélisation de la ventilation

La ventilation des patients est classiquement exprimée par le débit respiratoire (Q) en fonction du temps.

Ce débit pouvant être modélisé par deux fonctions sinusoïdales nous posons :

$$Q = \begin{cases} Q_{ins} = Q_{oi} \sin (w_i t_i) ; Q > 0 \\ Q_{exp} = Q_{oe} \sin (w_e t_e) ; Q < 0 \end{cases} \quad [1]$$

Par définition Q est la dérivée du volume par le temps.

$$Q = \frac{dV_c}{dt} \quad [1']$$

En résolvant les équations suivantes aux limites:

$$\begin{cases} V_c = \int_0^{T_{i,2}} Q_{ins} dt_i ; Q > 0 \\ V_c = \int_{T_{e,2}}^{T_e} Q_{exp} dt_e ; Q < 0 \end{cases}$$

et avec par définition  $T_i/2 \equiv (T_i / T_{tot}) (1/f)$  et  $T_e/2 \equiv (1 - T_i / T_{tot}) (1/f)$

Il vient que

$$Q_{oi} = (V_c w_i)/2 \text{ avec } w_i = (\pi f) / (T_i / T_{tot}) \quad [2]$$

$$Q_{oe} = (-V_c w_e)/2 \text{ avec } w_e = (\pi f) / (1 - T_i / T_{tot}) \quad [2']$$

En substituant [2] et [2'] dans [1] nous pouvons modéliser la ventilation du patient (Figure 1)

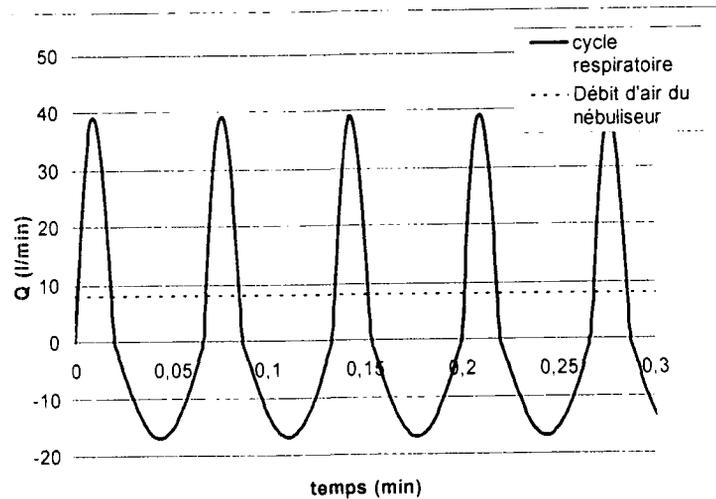


Figure 1 : Modélisation mathématique de la ventilation d'un patient à partir de  $V_c$ ,  $f$  et  $T_i/T_{tot}$

### 2.1.2. Modélisation de la masse inhalable

Dans le cadre des nébuliseurs classiques à visée pulmonaire, la distribution en taille des particules est proche d'un MMAD de  $5\mu\text{m}$  avec un écart type géométrique de 2 (selon loi log-normale). Nous avons posé l'hypothèse que l'efficacité de transmission de l'aérosol pour ces nébuliseurs pouvait être assimilée à 1 compte tenu de leur utilisation (hypothèse démontrée expérimentalement sur les nébuliseurs testés).

L'inhalation peut être modélisée durant toute la durée de la nébulisation ( $T_{neb}$ ) par le schéma suivant.

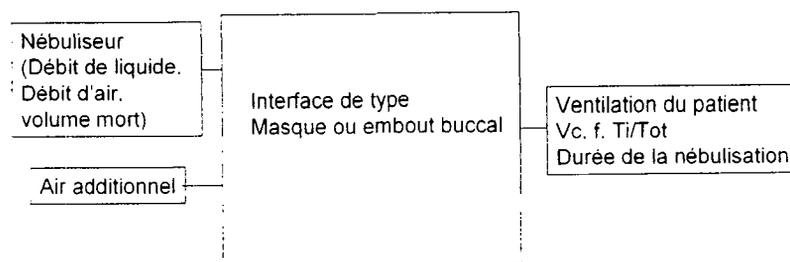


Figure 2 : Schéma de modélisation de la masse inhalable

La masse inhalée ( $M$ ) peut être décomposée en éléments simples de masse inhalée ( $dm$ ) au cours du temps ( $t$ ) :

$$M = \int_0^t dm \quad [3]$$

D'après notre hypothèse, la concentration de médicament produite hors du nébuliseur à un instant  $t$  peut être définie comme suivant (Figure 3):

$$C = \begin{cases} C = Q_{\text{neb}}/Q_{\text{airneb}} = \text{cte}; Q < Q_{\text{airneb}} \\ C = Q_{\text{neb}}/Q; Q > Q_{\text{airneb}} \end{cases} \quad [4]$$

avec  $Q_{\text{neb}}$  : débit de médicament sous forme aérosol produit par le nébuliseur  
 et  $Q_{\text{airneb}}$  : débit d'air d'alimentation du nébuliseur

La concentration instantanée peut être également définie comme la masse de médicament par unité de volume soit :

$$C = \frac{dm}{dV} \quad [4']$$

Par substitution de [1'] dans [4'] puis de [4'] dans [3] nous obtenons une expression de la masse fonction de l'intégrale de concentration C et du débit inspiratoire.

Dans le cas où  $Q_{oi} > Q_{airneb}$  cette intégrale peut être décomposée en somme de trois intégrales comme représentée dans la figure 3.

$$\begin{cases} M = \int_0^t CQ dt = N \int_0^{T_1} CQ dt; Q_{oi} < Q_{airneb} \\ M = \int_0^t CQ dt = N \left[ \int_{t_1}^{t_2} CQ dt + \int_{t_2}^{t_3} CQ dt + \int_{t_3}^{t_4} CQ dt \right]; Q_{oi} > Q_{airneb} \end{cases} \quad [5]$$

avec :  $t_1$  et  $t_4$  tel que  $Q_{ins}=0$   
 $t_2$  et  $t_3$  tel que  $Q_{ins}=Q_{airneb}$   
 $N$  nombre de cycles inspiratoires durant la nébulisation ( $N=T_{\text{neb}}/f$ )

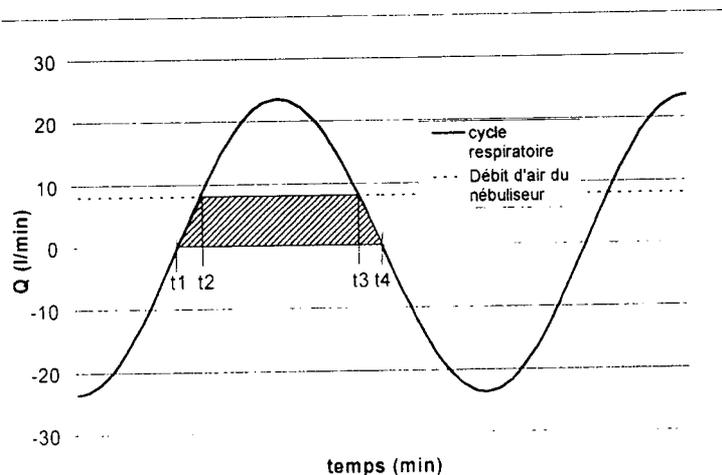


Figure 3

En résolvant les deux équations [5] à l'aide des conditions limites, il vient :

$$\begin{cases} M = (2Q_{\text{neb}}Q_{oi})/(w_i Q_{\text{airneb}}); Q_{oi} < Q_{\text{airneb}} \\ M = (1/w_i) t_{\text{neb}} f Q_{\text{neb}} [\pi - 2\arcsin(Q_{\text{airneb}}/Q_{oi}) + 2(Q_{oi}/Q_{\text{airneb}})(1 - \cos(\arcsin(Q_{\text{airneb}}/Q_{oi})))]; Q_{oi} > Q_{\text{airneb}} \end{cases}$$

Ces équations étaient corrigées du volume mort du nébuliseur dans le cas d'un embout buccal ainsi que du volume du porte filtre pour les comparaisons avec les données expérimentales.

## 2.2 Mesures expérimentales

Les nébuliseurs étaient connectés par l'intermédiaire d'un filtre à une pompe modélisant la ventilation des patients (Harvard, U.S.A.).

3 types de nébuliseurs étaient testés (Mistyneb, Intersurgical, Microneb) avec différentes solutions (solution de NaF à 1%, Bricanyl®). Ces nébuliseurs étaient testés dans un cas avec un embout buccal directement connecté à un porte filtre et dans un autre cas avec un masque connecté à un modèle de face de patient relié à un porte filtre. Les portes filtres contenaient un filtre de type Pari (Pari, Starnberg, Germany).

Différents régimes ventilatoires étaient modélisés pour les différents nébuliseurs et les différentes solutions :

Enfant de 3-4 mois :  $f=35/\text{mn}$  ;  $V_c= 50 \text{ ml}$  ;  $T_i/T_{\text{tot}} 0,42$

Enfant de 12 mois :  $f=30/\text{mn}$  ;  $V_c= 90 \text{ ml}$  ;  $T_i/T_{\text{tot}} 0,40$

Enfant de 5 ans :  $f= 22/\text{mn}$  ;  $V_c= 170 \text{ ml}$  ;  $T_i/T_{\text{tot}} 0,35$

Adulte :  $f=15/\text{mn}$  ;  $V_c= 500 \text{ ml}$  ;  $T_i/T_{\text{tot}} = 0,5$

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 (Vecellio None et al, 2004).

### 3. Résultats

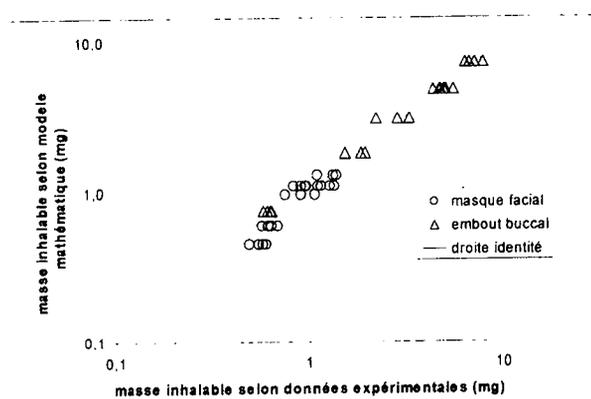


Figure 4 : Comparaison du modèle mathématique et des données expérimentales

Le modèle mathématique montre une très bonne corrélation avec les données expérimentales. Les différents paramètres ventilatoires étaient testés avec le modèle mathématique sur le nébuliseur Mistyneb (Figure 5, 6 et 7).

La masse inhalable était également calculée pour des paramètres ventilatoires standard en fonction de l'âge du patient (Figure 8). Cette dernière figure montre l'intérêt d'utiliser un faible débit d'alimentation en air du nébuliseur surtout chez les enfants.

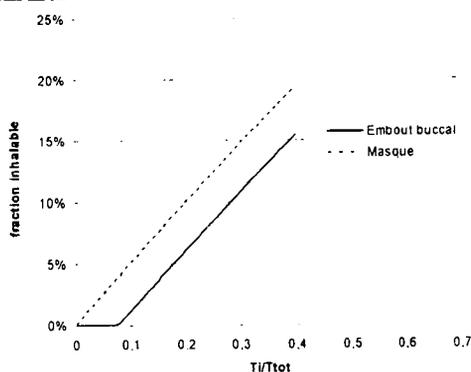


Figure 5 :

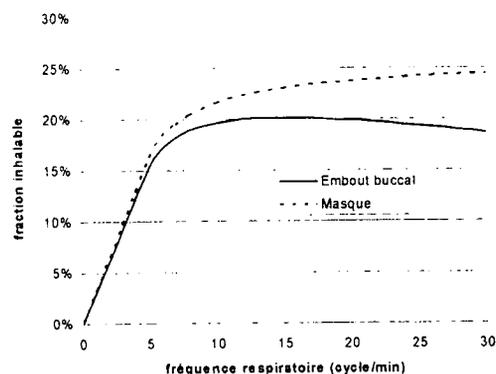


Figure 6

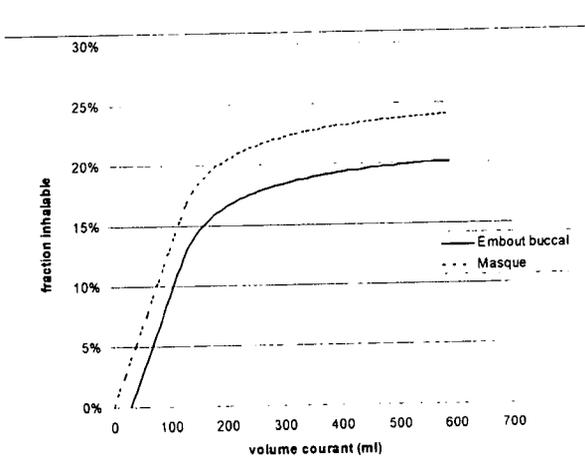


Figure 7

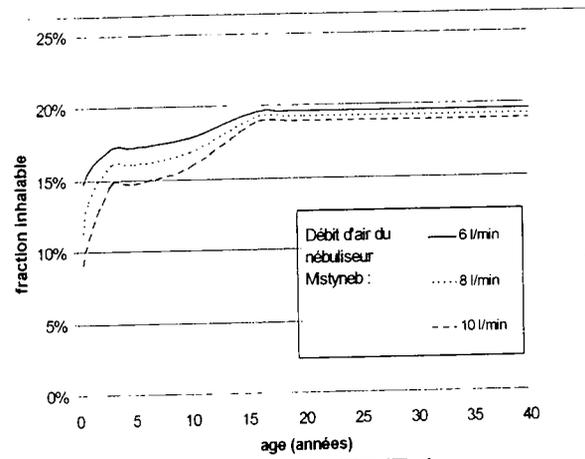


Figure 8

#### 4. Conclusion

En conclusion, ce modèle mathématique permet de prédire la masse de médicament inhalable en fonction des caractéristiques macroscopiques de l'aérosol et des paramètres ventilatoires du patient. D'autre part, ce modèle a permis de mettre en évidence pour un nébuliseur de type hospitalier, la diminution importante de la masse de médicament inhalable pour des volumes courants inférieurs à 200ml ainsi que l'influence de l'âge du patient sur la masse d'aérosol inhalée.

Ce modèle mathématique permet également de comprendre le fonctionnement des nébuliseurs et détermine les paramètres importants caractérisant les nébuliseurs : le débit d'alimentation en air du nébuliseur, le débit de médicament sous forme aérosol, et la durée de la nébulisation.

#### Références

- Nikander K, Denyer J, Smith N, Wollmer P. 2001. Breathing patterns and aerosol delivery: impact of regular human patterns, and sine and square waveforms on rate of delivery. *J Aerosol Med.* 14:327-33.
- Roth AP, Lange CF, Finlay WH. 2003. The effect of breathing pattern on nebulizer drug delivery. *J Aerosol Med.* 16:325-39.
- Smaldone GC. 1994. Solute Delivery by nebulization : "Reality testing ". *J Aerosol Med,* 7: 213-216
- Vecellio None L, Grimbert D, Bordenave J, Benoit G, Furet Y, Fauroux B, Boissinot E, De Monte M, Lemarie E, Diot P. 2004. Residual gravimetric method to measure nebulizer output. *J Aerosol Med.* 17:63-71.

# FACTEURS INFLUENÇANT LE COLMATAGE DES FILTRES THE INDUSTRIELS PAR LES AEROSOLS FORMES EN CAS DE FEUX DE DIFFERENTS MATERIAUX

V.M. Mocho\*(1), L. Bouilloux(1) et V. Renzi(2)

(1) Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire  
Direction de la Sûreté des Usines, des laboratoires, des transports et des déchets  
Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement  
B.P. 68 – Bâtiment 383 – 91192 GIF-SUR-YVETTE Cedex, France  
victor.mocho@irsn.fr

(2) Laboratoire de Physique des Aérosols et transfert de Contamination  
UFR Sciences Université Paris XII  
Avenue du Général de Gaulle 94010 Créteil Cedex

## TITLE

Parameters influencing the clogging of HEPA industrial filters by the aerosols produced in the case of fires

## ABSTRACT

A research programme has been carried out by the Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire and COGEMA in order to improve the knowledge of the clogging of HEPA filters in case of fire ; the final purpose is the development of a model to be implemented into a computer code describing the interaction between ventilation effects with fire spreading.

This paper deals with the influence of different parameters (filtration velocity, diameter and composition of aerosols) playing a part in the evolution of the aeraulic resistance of clogged HEPA filters.

An empirical model of the clogging of HEPA filters has been elaborated from experimental data of PMMA combustion. This model is based on a previous one which was used for the combustion of solvents (Mocho et al. CFA 2002).

## RÉSUMÉ

L'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire et COGEMA mènent actuellement un programme commun de recherche dont le but est d'améliorer les connaissances sur le colmatage des filtres en cas d'incendie et d'accéder à terme à un modèle, le plus indépendant possible du type de combustible, pouvant être intégré dans un code de calcul traitant de l'interaction entre la ventilation et l'incendie. La communication proposée présente l'influence de différents facteurs (vitesse de filtration, diamètre des aérosols, composition des aérosols) jouant un rôle sur l'évolution de la résistance aéraulique d'un filtre plissé THE colmaté, en s'appuyant sur un modèle empirique (Mocho et al. CFA 2002) développé pour des feux de solvants utilisés dans le retraitement des combustibles nucléaires et appliqué maintenant au cas de feux de solides. Les travaux sont actuellement essentiellement réalisés sur un matériau polymère, le Polyméthacrylate de méthyle (PMMA). Les résultats obtenus montrent qu'il est possible de décrire le colmatage des filtres THE par des aérosols formés en cas d'incendie au moyen de la relation empirique initialement proposée.

## 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 et dédiés à la maîtrise des rejets de contamination, les dispositifs d'épuration et tout particulièrement le Dernier Niveau de Filtration (DNF) composé de filtres à Très Haute Efficacité (THE), constituent un élément majeur.

Les principaux phénomènes associés à un incendie ayant un impact sur les dispositifs d'épuration peuvent se résumer comme indiqué ci-après.

Outre des contraintes thermiques, le développement d'un incendie dans une installation ventilée est susceptible d'induire, sur les dispositifs d'épuration, des contraintes aérodynamiques et mécaniques liées à des variations de pression observées lors de phases transitoires, inflammation et extinction en particulier, mais également des contraintes liées au terme source incendie (gaz et aérosols issus de la combustion).

La présence d'aérosols constitue donc également 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. Pour ce faire, il est, en particulier, nécessaire de disposer de modèles décrivant le colmatage des filtres THE. A ce titre, l'IRSN et COGEMA 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. CONDITIONS OPERATOIRES RELATIVES AUX TRAVAUX SUR LE COLMATAGE DES FILTRES EN CAS D'INCENDIE

Les travaux relatifs au colmatage des filtres THE par des aérosols de combustion s'inscrivent dans une démarche qui vise à l'obtention d'un modèle de colmatage dont on souhaite à terme qu'il soit le plus indépendant possible du scénario donné. Pour ce faire, l'IRSN dispose du banc d'essais « BANCO » spécifiquement dimensionné pour permettre d'étudier le colmatage de filtres THE par des aérosols issus de la combustion de différents matériaux (Mocho et al., 1998). Il comporte une enceinte d'environ  $1 \text{ m}^3$  dans laquelle 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 principal d'extraction. Ce dernier se divise en deux conduits 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  $500 \text{ m}^3/\text{h}$ . Cette configuration offre la possibilité de réaliser des essais de colmatage pour différentes vitesses de filtration tout en assurant un même débit de combustion, ceci afin de ne pas modifier le terme source incendie. Sur chaque conduit est positionné

un caisson de filtration recevant un filtre THE, type dièdre de 6 m<sup>2</sup> de surface de filtration, dont on suit le colmatage par les aérosols produits lors de la combustion de divers matériaux.

L'instrumentation du banc d'essais permet de mesurer les contraintes thermiques et aérauliques (perte de charge) au niveau du filtre THE testé, mais également de caractériser la dégradation thermique du matériau considéré et notamment les aérosols produits. Ainsi, le banc d'essais est équipé de thermocouples placés entre le foyer de combustion et le filtre THE testé, de capteurs électroniques de pression assurant notamment la mesure de la perte de charge du filtre THE testé, d'analyseurs d'oxygène, de monoxyde et de dioxyde de carbone et d'une balance pour mesurer la perte de masse du combustible. La concentration en aérosols de combustion est déterminée, soit par des prélèvements séquentiels réalisés sur filtres pesés avant et après le prélèvement, soit par l'emploi en série d'un diluteur DEKATI FPS 4000 et d'un Tapered Element Oscillating Microbalance (TEOM) assurant ainsi une mesure en continu. En termes de distribution granulométrique, les aérosols sont caractérisés à l'aide d'un impacteur ANDERSEN (diamètres de coupure compris entre 0,35 µm et 7,5 µm). De plus, afin de mieux appréhender la structure des aérosols de combustion, des clichés sont réalisés au Microscope Electronique à Transmission (MET) sur les prélèvements d'aérosols spécifiques.

Différents matériaux combustibles ont été étudiés. Ainsi, les travaux ont successivement porté sur les solvants utilisés dans le cadre des opérations de retraitement du combustible irradié (Tributyle Phosphate (TBP) et Tétrapropylène Hydrogéné (TPH)), puis sur quelques matériaux solides dont le Polyméthacrylate de méthyle (PMMA). Le choix de ce dernier matériau combustible repose sur le fait que le PMMA est d'usage courant dans certaines installations industrielles et qu'il présente une dégradation thermique aisée (absence de résidus de combustion) et relativement bien connue. C'est sur ce type de matériaux que les travaux sont actuellement réalisés.

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<sub>ae</sub> d'aérosols déposés ; par analogie avec un filtre vierge, cette résistance est égale à :  $R = (\mu_0 \Delta P) / (\mu Q_v)$ .  $\Delta P$  représente la perte de charge du filtre colmaté (Pa), Q<sub>v</sub> le débit volumique de filtration (m<sup>3</sup>/s),  $\mu_0$  et  $\mu$  la viscosité dynamique du fluide (Pa.s), respectivement à la température ambiante et à une température T donnée.

### 3. RESULTATS EXPERIMENTAUX SIGNIFICATIFS

Les figures 1 à 4 illustrent l'influence de la vitesse de filtration v (comprise entre 0,23 cm/s et 2,1 cm/s, vitesse nominale des filtres utilisés) et des caractéristiques des aérosols émis (composition, granulométrie, morphologie,...) pour différents matériaux combustibles.

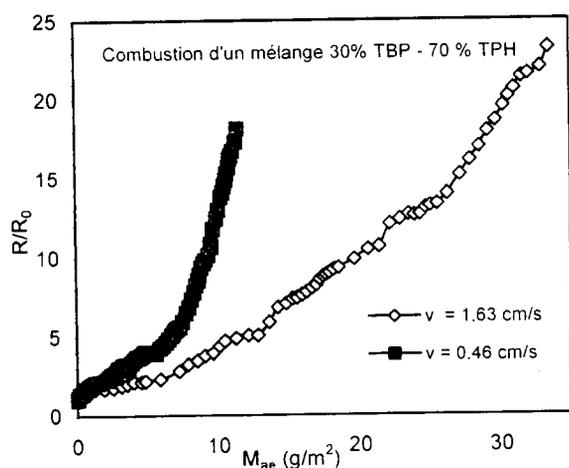


Figure 1 : Influence de la vitesse de filtration, cas d'un feu de solvant (TBP/TPH)

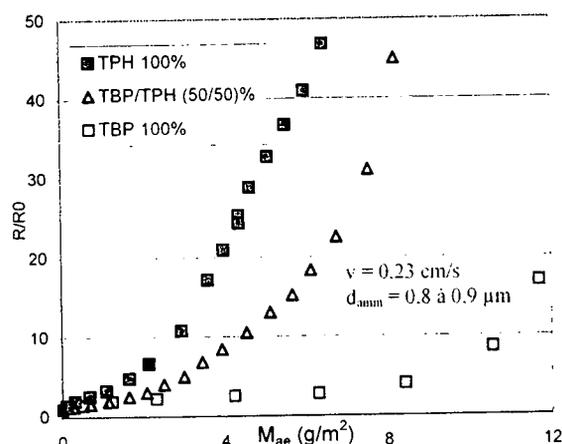


Figure 2 : Influence de la composition des aérosols de combustion (TBP ou TPH)

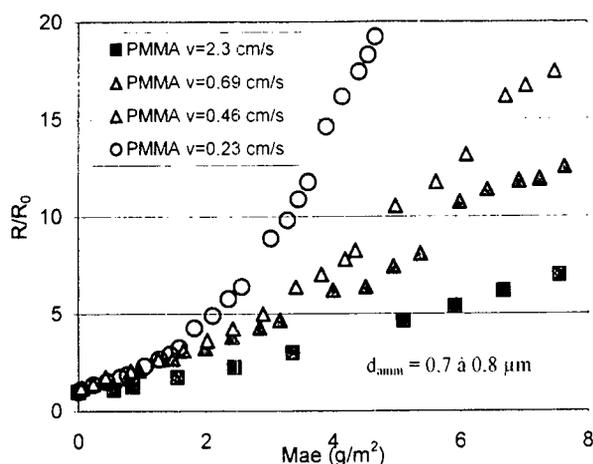


Figure 3 : Influence de la vitesse de filtration, cas d'un feu de solide (PMMA)

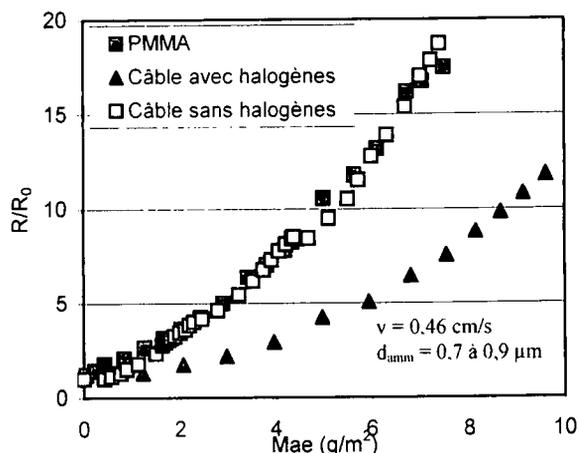


Figure 4 : Influence de la composition des aérosols de combustion (câbles ou PMMA)

### Vitesse de filtration

Une diminution de la vitesse de filtration entraîne une augmentation du rapport des résistances aérauliques  $R/R_0$  d'un filtre plissé THE, 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 de filtration est faible (Del Fabbro, 2001).

### Aérosols de combustion émis

Les aérosols de combustion émis pour les cinq différents types de combustibles testés (TBP, TPH, PMMA, câbles électriques sans halogène ou avec halogènes) présentent des granulométries sensiblement similaire. Ces aérosols sont très polydispersés, de diamètre aérodynamique médian massique ( $d_{amm}$ ) compris entre  $0,7 \mu\text{m}$  et  $0,9 \mu\text{m}$  et d'écart-type géométrique ( $\sigma_g$ ) de 3,5 à 5. Cependant, à l'exception des aérosols émis par la combustion de PMMA ou de câbles électriques sans halogènes, leur pouvoir colmatant est différent. Ceci peut s'expliquer par leur morphologie et leur nature plus ou moins solide ou liquide. En effet, une structure « dendritique » (cas du PMMA) offre une résistance à l'écoulement plus importante qu'une structure « sphérique ». De même, les aérosols liquides sont moins colmatants que les aérosols solides de mêmes dimensions (Pénicot, 1998). A titre d'illustration, la figure 5 présente un cliché photographique effectué au MET d'un aérosol de combustion de PMMA, constitué d'un agrégat de particules élémentaires d'environ  $50 \text{ nm}$ , et le tableau 1 présente le caractère « liquide » plus ou moins marqué des aérosols en fonction de leur composition.

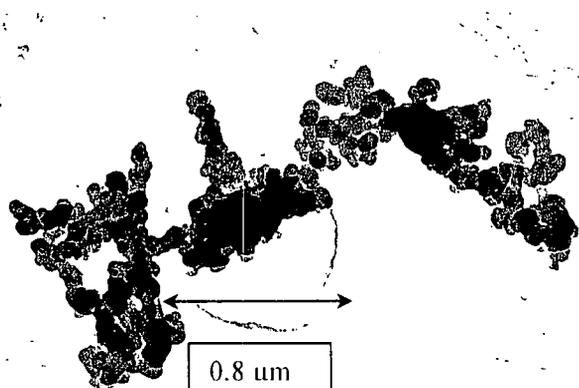


Figure 5 : Photographies de suies (forme dendrites) issues de la combustion de PMMA

Tableau 1 : Composition des aérosols de combustion

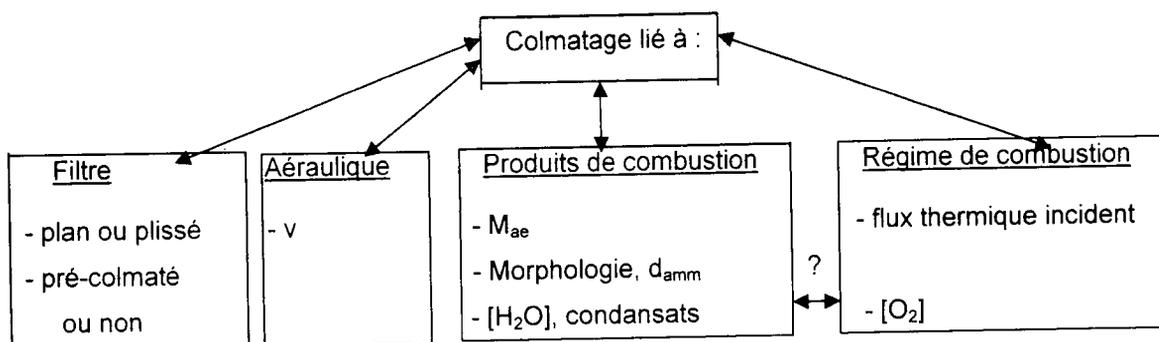
Combustible	Composition aérosols		
	carbone	eau	autre
PMMA	98 %	1 %	-
Câbles sans halogènes	Non mesuré	Absence de condensats	
Câbles avec halogènes	Non mesuré	condensats important (HCl + H <sub>2</sub> O)	
TPH	95 %	1,5 %	-
TBP	66 %	10 %	H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> 22 %

Il est par ailleurs intéressant de noter, figure 4, la similitude des courbes de colmatage pour des produits aussi différents que le PMMA et les câbles électrique sans halogènes.

#### 4. MODELE 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 (morphologie, diamètre) et sur la composition des vapeurs condensables que doivent agir ces paramètres secondaires. Cependant, jusqu'à présent, la complexité des combustibles mis en jeu (TPB, TPH, câbles électriques) associée à l'état actuel des connaissances n'ont pas permis de corréliser les paramètres dits secondaires aux principaux. Les travaux en cours sur le PMMA qui constitue un matériau de référence en ce qui concerne les études portant sur la dégradation thermique de solides, ont pour objectif de pallier ce manque. En effet, outre une meilleure maîtrise des conditions de combustion, le degré de caractérisation des aérosols de combustion produits a été augmenté, notamment par l'emploi de techniques de visualisation (MET en particulier).

#### Modèle empirique de colmatage des filtres THE

En l'état actuel des connaissances, le modèle proposé afin de décrire le colmatage des filtres THE par les aérosols de combustion (Mocho et al., 2002), en ne retenant que les paramètres principaux (ou directs), se présente sous la forme suivante :

$$\frac{R}{R_0} = 1 + a \cdot \frac{M_{ae}}{d_{amm}} + b \cdot \left( \frac{M_{ae}}{v \cdot d_{amm}} \right)^2$$

R et R<sub>0</sub> représentent les résistances aérauliques du filtre colmaté et vierge (kg/s.m<sup>4</sup>), M<sub>ae</sub> la masse surfacique d'aérosols déposés (g/m<sup>2</sup>), d<sub>amm</sub> le diamètre aérodynamique médian massique des aérosols (m), v la vitesse de filtration (m/s) et a, b des constantes expérimentales du modèle (dépendantes du combustible). Les valeurs des constantes sont présentées dans le tableau 2 ci-après.

Tableau 2 : Valeurs des constantes du modèle empirique de colmatage des filtres THE

Constante/combustible	PMMA	Câble sans halogène	Câble avec halogènes	TBP/TPH (30%/70%)
a (m <sup>3</sup> /g)	0,7.10 <sup>-6</sup>	0,7.10 <sup>-6</sup>	0,35.10 <sup>-6</sup>	0,8.10 <sup>-6</sup>
b (m <sup>8</sup> /(g <sup>2</sup> .s <sup>2</sup> ))	2.10 <sup>-18</sup>	8,4.10 <sup>-18</sup>	2,8.10 <sup>-17</sup>	7,2.10 <sup>-18</sup>

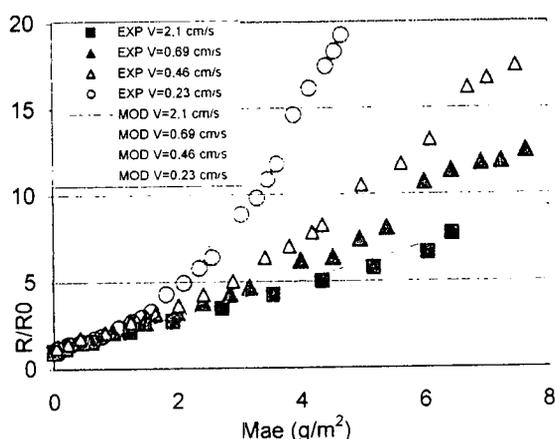


Figure 6 : Comparaison expérience / modèle pour des aérosols issus de feux de PMMA

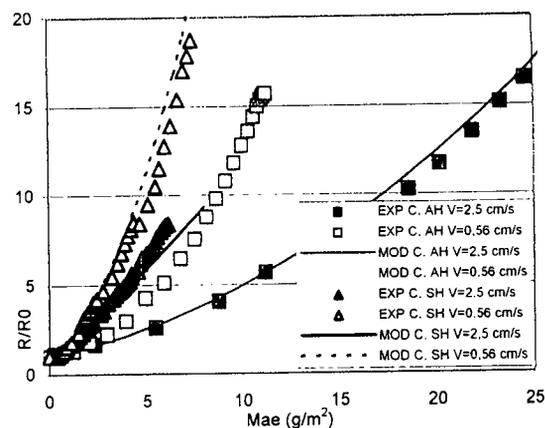


Figure 7 : Comparaison expérience / modèle pour des aérosols issus de câbles avec halogènes (AH) et sans halogène (SH)

Les figures 6 et 7 montrent qu'il y a un bon accord entre les résultats expérimentaux et le modèle empirique proposé lorsque la nature et la morphologie des aérosols ne sont pas modifiées par d'éventuels condensats, comme dans le cas des câbles électriques avec halogènes. Des travaux sont actuellement en cours afin de mieux prendre en compte la nature et la morphologie des aérosols de combustion dans l'expression des constantes expérimentales a et b du modèle, notamment en caractérisant l'influence des conditions de combustion sur les aérosols formés et sur l'évolution du colmatage associé. Par ailleurs, doit être également explorée une approche de modélisation basée sur des modèles propre aux filtres plans, dans lesquels il convient d'introduire un terme caractérisant la réduction de surface (Bouilloux 2003, Del Fabbro 2001).

## 5. CONCLUSION

Les résultats obtenus montrent qu'il est possible de décrire le colmatage des filtres THE par des aérosols formés en cas d'incendie au moyen d'un modèle empirique prenant en compte l'influence de paramètres qualifiés de directs ou principaux (type de filtre, masse des aérosols déposés, diamètre aérodynamique médian massique des aérosols et vitesse de filtration). Cependant, il est également nécessaire, pour certains types de combustible ou certaines conditions de combustion, de prendre également en compte des paramètres liés à la morphologie et à la nature des aérosols émis. C'est l'objet des travaux actuellement réalisés au laboratoire avec le PMMA, lesquels devraient à terme permettre d'introduire ces paramètres dans le modèle de colmatage en cours de développement, et dont on souhaite qu'il soit le plus indépendant possible du type de feux.

## REFERENCES

- Bouilloux L., Artous S., J.C. Laborde J.C., Norvez O. – *Modélisation du colmatage des filtres THE industriels par des aérosols solides* – 19<sup>ème</sup> Congrès Français sur les Aérosols, 2003  
 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

Mocho V.M., Briand A., Laborde J.C., – *Influence de la vitesse de filtration sur le colmatage de filtres THE plissés pour différents types d'aérosols* – 14<sup>ème</sup> Congrès Français sur les Aérosols, 1998  
Mocho V.M., Laborde J.C. – *Facteurs influençant le colmatage des filtres THE industriels par des aérosols formés en cas d'incendie* – 18<sup>ème</sup> Congrès Français sur les Aérosols, 2002  
Pénicot 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  
Thomas D. – *Etude de la filtration des aérosols par des filtres à fibres. Habilitation à diriger des recherches* – Université Henri Poincaré, 2001

# DESCRIPTION DES BOUFFEES DE PARTICULES EMISES A L'AVAL D'UN DEPOUSSIÉREUR CONSECUTIVEMENT A DES DECOLMATAGES PAR A-COUP DE PRESSION

X. Simon (1,2), V. Langenfeld(1), D. Bémer(1), S. Callé(2), D. Thomas(2), R. Régnier(1)

Laboratoire de Filtration des Aérosols

(1) Institut National de Recherche et de Sécurité, avenue de Bourgogne, BP 27,  
54501 VANDOEUVRE lès NANCY Cédex

(2) Laboratoire des Sciences du Génie Chimique / Centre National de la Recherche Scientifique –  
1, rue Grandville, BP 451 54001 NANCY Cédex  
\* Xavier.Simon@ensic.inpl-nancy.fr

## TITLE

Description of the particles puffs emitted downstream of a dust separator consecutively to pulse-jet cleaning

## ABSTRACT

The phenomenon of particles puffing downstream from the filter during cleaning is mainly responsible for the increase of the downstream concentration. Experiments performed on two test rigs are carried out to elucidate the different particle removal mechanisms and the characteristics of those particles puffing during pulse-jet cleaning. The principal mechanisms have been identified into two groups :

- on the one hand, the seepage of particles or particles agglomerates, the re-suspension of cakes particles during their removal upstream from the filter and the re-suspension of particles settled on the whole air duct ;
- on the other hand, the decrease in filtration efficiency following the cake removal.

The respective share of those groups of mechanisms seems to highly depend on the "filter media / filtered aerosol" combination which is considered.

## RESUME

L'objectif principal de cette étude est d'enregistrer et de caractériser les bouffées de particules qui sont émises à l'aval des médias filtrants lors de leur décolmatage par à-coup de pression à contre-courant. Ces bouffées de particules sont les principales responsables de la dégradation de l'efficacité de filtration au cours des cycles de colmatage et de décolmatage. Des expériences ont été menées sur deux bancs d'essais et une installation pilote industrielle afin de mieux comprendre l'origine de ces bouffées et de les quantifier. Deux groupes distincts de mécanismes de formation des bouffées ont été identifiés :

- le premier regroupe : la migration des particules ou des agglomérats de particules dans le média, la remise en suspension des particules du gâteau et la remise en suspension des particules déposées sur les parois de l'installation, tant à l'amont qu'à l'aval ;
- le second concerne la baisse d'efficacité consécutive à la chute partielle du gâteau de particules.

Les contributions respectives de ces groupes de mécanismes à la formation de la bouffée globale de particules émises à l'aval semblent dépendre fortement de la combinaison « média filtrant / aérosol filtré » considérée.

## INTRODUCTION

Le dépoussiéreur à manches ou à poches filtrantes est un moyen efficace pour traiter les effluents gazeux avant leur rejet dans l'atmosphère ou leur recyclage dans les ateliers de travail. Il présente un fonctionnement qui consiste en une alternance de cycles de colmatages et décolmatages. Le décolmatage a essentiellement pour objectif de détacher la couche de particules (gâteau) collectées pendant le colmatage, afin de diminuer la résistance à l'écoulement du média et ainsi, de le régénérer. L'à-coup de pression à contre-courant est la technique de décolmatage des médias filtrants la plus fréquemment rencontrée en milieu industriel. Son efficacité et le fait que sa mise en œuvre ne nécessite pas un arrêt du procédé de filtration (décolmatage « on-line ») sont des atouts majeurs. Le décollement du dépôt est obtenu en déformant très brusquement le média par envoi d'air sous pression à l'intérieur de la manche ou de la poche, à contre-courant du sens de filtration et pendant un temps très court (quelques centaines de millisecondes au plus).

Le décolmatage s'accompagne d'une chute brutale d'efficacité du fait de l'émission de bouffées de particules à l'aval des éléments filtrants. Les bouffées de particules observées à l'aval des dépoussiéreurs résultent de plusieurs mécanismes listés ci-dessous :

- *La disparition partielle du gâteau de filtration.* Du fait que le gâteau est le principal collecteur de particules, sa disparition lors du décolmatage provoque une chute de l'efficacité de filtration qui retombe à une valeur plus faible qu'à l'état colmaté.
- *La migration des particules dans le média* lors du choc engendré par l'à-coup de pression et qui provoque un déplacement puis un détachement de certaines particules piégées en profondeur.
- *La pénétration des particules* par des micro-perforations existantes ou par modification de la structure du média. Lors de l'à-coup de pression, un volume important d'air va passer à contre-courant, pendant un temps extrêmement court, à travers les pores du média. La conséquence est une augmentation temporaire de la taille de ces pores qui pourraient ainsi laisser passer certaines particules ou faciliter la migration de certaines autres. Une autre raison à l'effet de réentraînement par migration à travers le filtre est sans doute l'apparition de fissures, de micro-fuites au sein du média filtrant. Ces dernières peuvent traduire le vieillissement du média mais également le fait qu'il soit soumis à de trop fortes forces de tension lors du décolmatage.
- *La remise en suspension de particules du gâteau*, à l'amont du filtre. Lors du détachement de la couche de particules, une bouffée de particules est remise en suspension et va augmenter temporairement la concentration amont de poussières.
- *L'augmentation de la vitesse de filtration*, qui se produit immédiatement après la fermeture de la vanne d'amenée d'air de décolmatage. L'augmentation de la vitesse de filtration est la résultante du fort volume d'air de décolmatage couplé à la baisse de la perte de charge. Elle facilite pendant un temps court la migration des particules à travers le média.
- *La remise en suspension de particules déposées sur les parois de l'installation.* L'effet brusque de l'à-coup de pression et les turbulences que peut produire un grand volume d'air introduit en un temps très court provoquent la remise en suspension des particules qui s'étaient déposées sur les parois de l'installation (tant à l'amont qu'à l'aval du filtre).

Lors d'un décolmatage par à-coup de pression, les contributions respectives de chacun de ces mécanismes s'additionnent pour former un pic global de concentration en particules à l'aval des médias filtrants.

Les connaissances actuelles concernant ces pics perturbateurs étant, néanmoins, peu nombreuses (le lecteur pourra se référer aux articles suivants : Leith et First (1975), Dennis et Wilder (1975), Holland et Rothwell (1977), Strangert (1978), Leith et Ellenbecker (1980, 1983), Hindy (1986), Sherman et al. (1990) et Traub (2000)), l'objectif principal de cette étude est d'enregistrer et de caractériser ces bouffées de particules. Les résultats de ces travaux permettront notamment de répondre aux questions suivantes : Quels sont les mécanismes qui participent à la formation d'une bouffée de particules après un décolmatage ? Quels sont les mécanismes prépondérants et ceux qui sont minoritaires ? Quelle influence les paramètres tels que la perte de charge maximale avant décolmatage, la vitesse de filtration ou la pression du réservoir d'air comprimé ont-ils sur l'émission particulaire ? Quelles caractéristiques granulométriques les bouffées possèdent-elles ? L'association « média filtrant / particules » joue-t-elle un rôle important sur les bouffées ?

## MOYENS D'ESSAIS ET MESURES EFFECTUEES

L'étude porte sur trois bancs d'essais :

- une unité de tests mettant en œuvre un média plan circulaire de 0,13 m de diamètre ;
- un dépoussiéreur industriel comportant 12 poches rectangulaires (0,5 m × 1,5 m) ;
- un dépoussiéreur pilote industriel comportant 37 manches (1,8 m × Ø 0,155 m).

Le lecteur pourra se référer à d'autres publications pour la description complète des deux premiers bancs d'essais (Simon et al. (ASFERA 2002)) et du dépoussiéreur pilote (Callé (2000)). Chaque banc d'essais est conçu de manière à pouvoir effectuer des cycles de colmatage par des aérosols solides microniques (alumine ou bois) et décolmatage par à-coup de pression à contre-courant. Les évolutions de la perte de charge et de la concentration en particules à l'aval au cours des cycles sont enregistrées, respectivement, par des capteurs de pression différentielle et un compteur optique (Grimm® 1.108, 15 canaux de 0,3 à 20 µm).

Le suivi de la concentration numérique aval,  $C_{n,i}(t)$ ; est effectué par comptage optique (toutes les 6 secondes) pour 15 classes granulométriques (indiquées  $i$ ). Si l'on s'intéresse à un seul diamètre  $d_{pi}$  de particules,  $\overline{C_{n,i}}$  et  $\overline{C_{m,i}}$  désignent les concentrations moyennes en nombre et en masse. En supposant les particules sphériques,  $\overline{C_{m,i}}$  est donné par l'équation suivante :

$$\overline{C_{m,i}} = \rho_p \cdot \frac{\pi \cdot d_{pi}^3}{6} \cdot \overline{C_{n,i}} \quad [\text{équation 1}] \quad \text{avec} \quad \overline{C_{n,i}} = \frac{1}{n} \cdot \sum_{j=1}^n C_{n,i}(t_j) \quad [\text{équation 2}]$$

avec  $t_j$  le  $j^{\text{ème}}$  instant de mesure de  $\overline{C_{n,i}}$  sur  $n$  mesures et  $\rho_p$  la masse volumique des particules.

Les pourcentages indiqués par la suite ont été calculés à partir des masses totales relarguées (M) par bouffée, en effectuant de simples ratios de la bouffée partielle (isolant certains mécanismes – voir paragraphe suivant) par rapport à la bouffée totale (globalisant l'ensemble des mécanismes) :

$$M = t_d \cdot Q_v \cdot \overline{C_m} \quad [\text{équation 3}] \quad \text{avec} \quad \overline{C_m} = \sum_{i=1}^{15} \overline{C_{m,i}} \quad [\text{équation 4}]$$

avec  $t_d = n \times 6$  secondes, la durée totale de la bouffée de particules ;

$Q_v$  le débit volumique traité et  $\overline{C_m}$  la concentration totale en masse.

Les essais consistent à suivre en continu la concentration en particules à l'aval pendant les décolmatages. Pour mettre en évidence l'influence des différents mécanismes prenant part au pic de concentrations en particules observé lors du décolmatage, celui-ci est décomposé en deux étapes. Lorsque la perte de charge maximale est atteinte, la génération de particules est coupée, mais l'air propre d'entraînement est maintenu. Le décolmatage par à-coup de pression est alors activé. Une bouffée de particules (bouffée partielle, notée bouffée P) est alors libérée. Cette bouffée P regroupe les mécanismes suivants : migration des particules dans le média (aidée ou non par l'augmentation de la vitesse de filtration) + remise en suspension à l'amont des particules du gâteau + remise en suspension des particules déposées sur les parois de l'installation à l'amont et à l'aval. Des décolmatages en fonctionnement normal sont également effectués (décolmatage avec maintien du régime de filtration de l'air empoussiéré) ; l'ensemble des mécanismes contribuant à la bouffée de particules globale à l'aval (bouffée G) sont alors influents.

Les influences précises de l'augmentation de la vitesse de filtration et de la présence ou de la formation de micro-perforations ou de passages préférentiels n'ont pas pu être évaluées lors de ces expériences. Néanmoins, leurs effets existent pendant un décolmatage et ces mécanismes participent certainement à la bouffée globale.

Les influences de différents paramètres sur ces bouffées seront étudiées :

- granulométrie des particules (2,5  $\mu\text{m}$  - 108  $\mu\text{m}$ )
- nature des particules (alumine et bois)
- perte de charge maximale avant décolmatage  $\Delta P_{\text{max}}$  (350 Pa - 800 Pa)
- pression initiale d'air comprimé dans le réservoir  $P_r$  (3 bars - 7 bars)
- vitesse de filtration  $U_f$  (2  $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$  - 3,7  $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$ )
- nombre de cycles de colmatage/décolmatage (1 - 40 cycles)

## RESULTATS ET DISCUSSION

### Influence de la taille et de la nature des particules :

L'analyse en masse de la contribution des différents mécanismes participant au pic de particules est indiquée dans le Tableau 1, pour différentes conditions opératoires. Ces résultats sont des exemples représentatifs issus d'une série plus importante d'essais qui nous a permis de vérifier la cohérence et la reproductibilité de nos expériences.

Le pic de concentration aval attribué à la baisse d'efficacité du système par chute du gâteau après décolmatage peut être obtenue en soustrayant la bouffée P à la bouffée G.

Les pourcentages des bouffées sont déterminés à partir des masses  $M(P)$  et  $M(G)$  (cf. équation 3) :

$$\% \text{bouffée P} = \frac{M(P)}{M(G)} \cdot 100 \quad [\text{équation 5}]$$

$$\%(\text{bouffée G} - \text{bouffée P}) = \left[ \frac{M(G) - M(P)}{M(G)} \right] \cdot 100 \quad [\text{équation 6}]$$

Dépoussiéreur industriel Média T 452 SA * Uf = 2 cm.s <sup>-1</sup> Pr = 5 bar Alumine C1200 (d <sub>pm</sub> = 2,5 µm)	ΔPmax	400 Pa	700 Pa	
	%bouffée P	7,1	6,8	
	%(bouffé G - bouffée P)	92,9	93,2	
	M(G) / M(P)	70 / 4,95 mg	47 / 3,2 mg	
Banc médias plans Média T 452 SA * Uf = 2 cm.s <sup>-1</sup> Pr = 7 bar Alumine DX5R (d <sub>pm</sub> = 4,6 µm)	ΔPmax	300 Pa		
	%bouffée P	5,5		
	%(bouffé G - bouffée P)	94,5		
	M(G) / M(P)	0,17 / 0,01 mg		
Dépoussiéreur industriel Média T 452 SA * Uf = 3,7 cm.s <sup>-1</sup> Pr = 5 bar Alumine F1200 (d <sub>pm</sub> = 6 µm)	ΔPmax	350 Pa	400 Pa	
	%bouffée P	49	37	
	%(bouffé G - bouffée P)	51	63	
	M(G) / M(P)	10,5 / 5,2 mg	20,1 / 7,4 mg	
Dépoussiéreur industriel Média T 452 SA * Uf = 3,7 cm.s <sup>-1</sup> Pr = 5 bar Bois (d <sub>pm</sub> = 16,5 µm)	ΔPmax	400 Pa	550 Pa	700 Pa
	%bouffée P	95	91	84
	%(bouffé G - bouffée P)	5	9	16
	M(G) / M(P)	3,42 / 3,25 mg	3,47 / 3,17 mg	4 / 3,36 mg
Dépoussiéreur industriel Média T 452 SA * Uf = 3,7 cm.s <sup>-1</sup> Pr = 5 bar Alumine F400 (d <sub>pm</sub> = 35 µm)	ΔPmax	350 Pa		
	%bouffée P	~ 100		
	%(bouffé G - bouffée P)	~ 0		
	M(G) / M(P)	~ 65 mg		
Dépoussiéreur pilote Média TW 452 SA ** Uf = 4,5 cm.s <sup>-1</sup> Pr = 7 bar Bois (d <sub>pm</sub> = 108 µm)	ΔPmax	800 Pa		
	%bouffée P	78,2		
	%(bouffé G - bouffée P)	21,8		
	M(G) / M(P)	19,7 / 15,4 mg		
* Fibres de polyester non-tissées avec traitement de surface par calandrage thermique (Grammage = 530 g.m <sup>-2</sup> )				
** Média antistatique : Fibres de polyester non-tissées associées à des fibres en inox (Grammage = 450 g.m <sup>-2</sup> )				

Tableau 1 : Contributions massique des mécanismes prenant part à la bouffée de particules après un décolmatage, pour différentes associations « média / particules » - M = masse moyenne émise à l'aval par décolmatage.

Quels que soient le banc d'essais et les conditions opératoires de filtration et de décolmatage imposés, la prédominance de la contribution du mécanisme de baisse d'efficacité ( %(bouffée G - bouffée P) ) ne vaut que pour les aérosols de plus faible diamètre médian, pour lesquels le média, dépourvu de son gâteau de filtration, n'est pas assez performant pour assurer une efficacité suffisante et empêcher la formation de bouffées de particules. En effet, pour les aérosols de diamètre médian plus grand, les mécanismes formant la bouffée partielle deviennent fortement majoritaires, sans pour autant qu'il soit possible d'affirmer si l'un d'entre eux participe plus activement à la pollution du compartiment aval. La baisse d'efficacité consécutive à la chute du gâteau ne participe alors plus activement à la formation de la bouffée et permet à des mécanismes comme la migration des particules ou la remise en suspension des particules déposées de prendre l'ascendant.

La masse émise à l'aval après un décolmatage ne semble pas forcément diminuer lorsque la taille des particules augmente (comparaison des essais 3 et 5 à 350 Pa), laissant supposer que la déformation brutale du média lors du décolmatage par à-coup de pression modifie profondément sa structure interne pendant le choc et favorise la migration de certaines particules aux dépens de certaines autres. On peut se demander si ce bouleversement au sein du média se fait aléatoirement au grés des chocs et des modifications locales de porosité ou s'il obéit de manière stricte aux lois des forces d'adhésion particules/fibres et des forces de cohésion entre particules, à l'intérieur comme à la surface du média ? Des premières expériences viennent étayer la thèse du relargage aléatoire des particules après leur migration, également aléatoire, dans la structure du média. Ces expériences doivent néanmoins être complétées et vérifiées.

Outre l'influence de la taille des particules, qui vient d'être commentée, il semblerait que la nature des particules joue un rôle important sur la masse d'aérosol émise à l'aval d'un même média (comparaison des essais 3 et 4 à 400 Pa). En effet, on peut constater sur ces expériences que l'avantage, en termes de masse moyenne émise à l'aval par décolmatage, revient aux particules de bois. Ces dernières semblent passer en moins grande quantité massique à l'aval par rapport aux particules d'alumine et ce même en tenant compte des effets de différences de taille de particules entre les essais. En plus de la masse volumique qui, à n'en pas douter, exerce la plus grande influence, des paramètres tels que la forme des particules, leur rugosité et leur état de surface, la

dureté du matériau qui les constitue ou encore leur capacité d'adhésion et de cohésion doivent être les causes principales de cette différence.

Les analyses granulométriques de l'aérosol émis à l'aval (non présentées ici) montrent que la bouffée partielle produit, dans tous les cas de figure, des particules de taille moyenne plus importante que la bouffée globale. Les mécanismes liés à la bouffée partielle produiraient donc des particules (ou des agglomérats de particules) légèrement plus gros que l'aérosol émis lorsque l'ensemble de tous les mécanismes sont présents.

#### Influence de la perte de charge maximale avant décolmatage ( $\Delta P_{max}$ ) :

On observe (essais 3 et 4 du Tableau 1) une diminution de la part de la bouffée P et une augmentation de la part de la bouffée G lorsque  $\Delta P_{max}$  augmente. Or un  $\Delta P_{max}$  avant décolmatage plus important signifie qu'une plus grande quantité de particules s'est déposée sur le média en formant le gâteau de filtration et on pourrait donc s'attendre à une action accrue du mécanisme de remise en suspension des particules du gâteau. Cependant, la diminution de la bouffée P prouve que les mécanismes prenant part à cette bouffée ne sont pas favorisés. En effet, la couche de particules avant décolmatage étant plus épaisse, les probabilités de décolmatage par plaques et de formation de gros agglomérats lors du détachement du gâteau sont grandes. Ces agglomérats de taille et de masse importante sont susceptibles de tomber directement dans la trémie et ainsi, de ne pas être réentraînés et donc, de ne pas participer activement à la bouffée partielle. L'augmentation de la masse émise à l'aval proviendrait plutôt de l'augmentation de la part attribuée au mécanisme de chute d'efficacité du fait de la disparition du gâteau favorisée lorsque  $\Delta P_{max}$  est élevée.

#### Influence de la pression initiale du réservoir d'air comprimé avant décolmatage ( $P_r$ ) :

Dépoussiéreur industriel Média T 452 SA * Uf = 3,7 cm.s <sup>-1</sup> $\Delta P_{max}$ = 400 Pa Bois ( $d_{pm}$ = 16,5 $\mu$ m)	Pr	3 bar	5 bar	6,5 bar
	%bouffée P	68	95	96
	%(bouffée G - bouffée P)	32	5	4
	M(G) / M(P)	3,15 / 2,13 mg	3,42 / 3,25 mg	6,32 / 6,07 mg

Tableau 2 : Influence de  $P_r$  sur la répartition des mécanismes prenant part à la formation des bouffées.

Une augmentation de  $P_r$  favorise logiquement une augmentation de la masse émise à l'aval puisque, du fait du choc subi par le média et de la puissance de décolmatage, elle favorise tous les mécanismes de formation d'une bouffée de particules. Il semblerait néanmoins que la contribution des mécanismes de la bouffée partielle (notamment migration des particules et remise en suspension des particules du gâteau du fait de la brutalité du choc et de l'éclatement du gâteau à l'amont du média) soit préférentiellement accrue par l'augmentation de la pression de décolmatage.

#### Influence de la vitesse de filtration ( $U_f$ ) :

Dépoussiéreur industriel Média T 452 SA * Pr = 5 bar $\Delta P_{max}$ = 400 Pa Bois ( $d_{pm}$ = 16,5 $\mu$ m)	$U_f$	2 cm.s <sup>-1</sup>	2,8 cm.s <sup>-1</sup>	3,7 cm.s <sup>-1</sup>
	%bouffée P	97	90	75
	%(bouffée G - bouffée P)	3	10	25
	M(G) / M(P)	10 / 9,7 mg	8,34 / 7,5 mg	8,2 / 6,15 mg

Tableau 3 : Influence de  $U_f$  sur la répartition des mécanismes prenant part à la formation des bouffées.

Une augmentation de  $U_f$  conduit à une diminution de la masse émise après chaque décolmatage. Le gâteau de filtration, principal collecteur des particules, se reconstruit plus vite à forte vitesse. Les mécanismes tels que la remise en suspension des particules du gâteau ou la baisse d'efficacité ne contribuent donc que très peu de temps à l'émission particulaire. La diminution de la part de la bouffée partielle signifierait que tout ou partie des mécanismes de la bouffée partielle sont restreints lorsque  $U_f$  augmente.

## Influence du nombre de cycle effectués :

Dépoussiéreur industriel Média T 452 SA *	Nombre de cycles	Pr = 7 bar $\Delta P_{max} = 400$ Pa Uf = 2 cm.s <sup>-1</sup> Bois ( $d_{pm} = 16,5 \mu m$ )		Pr = 5 bar $\Delta P_{max} = 400$ Pa Uf = 3,7 cm.s <sup>-1</sup> Alumine C1200 ( $d_{pm} = 2,5 \mu m$ )		
		1	15	2	20	40
	M(G) / M(P)	8 / 6,1 mg	3,44 / 3,17 mg	512 / - mg	84 / - mg	40 / - mg

Tableau 4 : Influence du nombre de cycles sur la répartition des mécanismes prenant part à la formation des bouffées.

Enfin, plus le nombre de cycles effectués est grand, plus la masse émise est faible et plus la part de la bouffée partielle semble importante. L'efficacité du média seul (sans gâteau) a évolué au cours des cycles, du fait que l'imprégnation de sa structure fibreuse interne a augmentée. L'amélioration de l'efficacité du média est probablement la raison pour laquelle les bouffées de particules à l'aval s'amoindrissent, et ce, malgré le fait que le mécanisme de migration des particules dans le média doit être maximal.

Les influences de certains paramètres étudiés sont synthétisées dans le tableau suivant :

Paramètre	Evolution du paramètre	Evolution du % "bouffée partielle"	Evolution de M (bouffée G)
$\Delta P_{max}$	↗	↘	↗
Pr	↗	↗	↗
Uf	↗	↘	↘
Nombre de cycles effectués	↗	↗	↘

Tableau 5 : Influence de paramètres de filtration et de décolmatage sur les bouffées de particules.

## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Les contributions respectives des différents mécanismes participant à la formation des bouffées de particules après décolmatage dépendent fortement de l'association « média / particules ». Elles dépendent également des conditions opératoires de filtration et de décolmatage ainsi que de l'état de colmatage du média, mais dans une moindre proportion.

La nature et la taille des particules sont des facteurs importants et l'efficacité du média reste décisive au début du fonctionnement de l'installation et après plusieurs cycles.

Un bon compromis entre tous les paramètres influençant l'efficacité de décolmatage reste à être trouvé. Les travaux de cette étude permettront de s'appuyer sur des données expérimentales concrètes pour y parvenir et devraient amener à une optimisation du décolmatage en favorisant les effets bénéfiques de décrochement des particules, sans pour cela s'exposer à une émission particulière à l'aval trop importante.

Cependant des difficultés persistent, notamment dans l'incapacité d'évaluer la contribution effective de certains mécanismes comme la migration des particules (phénomènes de suintement) ou la remise en suspension du gâteau. La difficulté s'accroît encore si l'on considère que les mécanismes responsables de la bouffée ne s'additionnent pas seulement mais interfèrent entre eux d'une manière qui pourrait de plus ne pas être constante dans le temps mais dépendre de l'état de colmatage du média ou de l'efficacité de décolmatage évolutive du gâteau de particules. En effet, il arrive parfois que la bouffée partielle soit supérieure (en termes de masse et en termes de nombre de particules émises à l'aval) à la bouffée globale (résultats non présentés), laissant supposer que lorsque tous les mécanismes sont présents, il se produit des effets d'atténuation de certains mécanismes et peut être, dans le même temps, d'accentuation de certains autres.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Callé S. (2000). Influence des cycles de colmatage et décolmatage sur les performances de médias filtrants utilisés en dépoussiérage industriel, *Thèse INPL*.
- Dennis R., Wilder J.E. (1975). Fabric filter cleaning studies, *National Environmental Research Center, Report EPA 650/2-75-009*, 196 – 220.
- Hindy K.T. (1986). Influence of selected fixed parameters on pulse-jet fabric filter operation, *Atmospheric Environment* 20/8, 1517-1521.
- Holland C.R., Rothwell E. (1977). Model studies of fabric dust filtration 2 – A study of the phenomenon of cake collapse, *Filtration and Separation* 14, 224.
- Leith D., Ellenbecker M.J. (1980). Theory for penetration in a pulse-jet cleaned fabric filter, *Journal of the Air Pollution Control Association* 30/8, 877-881.
- Leith D., Ellenbecker M.J. (1983). Dust emissions from a pulse-jet fabric filter, *Filtration and Separation*, Juillet/Août, 311-314.
- Sherman C.P.C., Leith D., Symons M.J. (1990). Outlet mass flux from a pulse-jet cleaned fabric filter : testing a theoretical model, *Aerosol Science and Technology* 13/4, 423-433.
- Simon X., Bémer D., Callé S., Thomas D., Régner R., Contal P. (11 – 12 décembre 2002). Performances des dépoussiériers à manches – Etude sur média plan et sur pilote, 18<sup>ème</sup> Congrès Français sur les Aérosols, Paris.
- Strangert S. (1978). Predicting performance of bag filters, *Filtration and Separation* 15/1, 42-48.
- Leith D., First M.W. (1975). Particle collection by pulse jet fabric filter, 68<sup>th</sup> annual APCA meeting, Boston.
- Traub D.A. (2000). How to prevent dust leaks in a reverse pulsing dust collector ?, *Powder and Bulk Engineering* 14/10, 59-65.

# INFLUENCE DE FUITES SUR LES PERFORMANCES DE FILTRATION DES FILTRES À FIBRES

S. Callé\* (1), J. Vinel (1), D. Thomas (1), D. Bémer (2), P. Contal (1) et J.C. Appert-Collin (1).

Laboratoire de Filtration des Aérosols

(1) Laboratoire des Sciences du Génie Chimique / Centre National de la Recherche Scientifique  
1, rue Grandville, BP 451 54001 NANCY Cédex

(2) Institut National de Recherche et de Sécurité, avenue de Bourgogne, BP 27  
54501 VANDOEUVRE lès NANCY Cédex

\* sandrine.calle@ensic.inpl-nancy.fr

## TITLE

Study of the influence of pinholes on the filtration performance of fibrous filters

## ABSTRACT

The study presents the effect of pinholes on the pressure drop and the filtration efficiency of very high efficiency fibrous filters. Filters of glass fibers which are pierced with different sizes of hole are clogged by alumina aerosol. Results show that the generally used method of leaks detection which consists in recording pressure drop of the test filter gives no results for pinholes lower than 1.82 mm. Various methods for the measurement of the particle concentration downstream of the pierced filter are tested. The results put into the light a decrease of the filtration efficiency due to the pinholes of low diameter. As an exemple a hole of 0.18 mm of diameter leads to a decrease of the filtration efficiency from 99.99 % to 99.6 %. This value is no more representative of a High Efficiency Particulate Air Filter. A conclusion of this work is that regular sampling of the downstream effluent should be done to control the filter performance.

## RESUME

L'étude présente l'influence de percements sur la perte de charge et l'efficacité de séparation de filtres à fibres à très haute efficacité. Des filtres en fibres de verre, percés de trous de différents diamètres, sont colmatés par un aérosol d'alumine. Les résultats montrent que la méthode de détection des fuites couramment utilisée, et qui consiste en la mesure de la perte de charge du filtre testé, ne donne pas de résultats satisfaisants pour des trous inférieurs à 1.82 mm de diamètre. Plusieurs méthodes de mesures de la concentration aval ont été expérimentées. Elles permettent de mettre en évidence la baisse d'efficacité liée à la présence de trous de faibles diamètres. A titre d'exemple, un percement de 0,18 mm de diamètre conduit à une baisse d'efficacité de 99,99 % à 99,6 %, ce qui n'est plus représentatif d'un filtre à Très Haute Efficacité. Suite à ces résultats, des prélèvements à intervalles réguliers de l'effluent en aval du système de filtration doivent être réalisés pour contrôler ses performances.

## INTRODUCTION

Les systèmes de filtration des gaz sont soumis à de fortes tensions mécaniques lors de leur fonctionnement qui peuvent être à l'origine d'altérations de la structure fibreuse du média qui les constitue : étirement des fibres faisant apparaître des pores de tailles plus ou moins importantes ou même déchirement. D'autres causes peuvent être à l'origine de fuites dans les systèmes de filtration. C'est le cas des défauts d'étanchéité au niveau de la fixation des médias filtrants par exemple.

Peu d'études ont été menées sur ce sujet qui constitue pourtant un véritable enjeu d'hygiène publique et du travail. Brown (1993) indique que la présence de trous conduit à la baisse de l'efficacité de filtration et que l'accélération subie par les particules lors du passage par le trou est à l'origine de mécanismes de collection nouveaux, dépendant de la taille des particules. Le rapport entre la taille des particules et celle du trou n'est cependant pas étudié et les baisses d'efficacité ne sont pas quantifiées.

L'objectif de ce travail est de tester des filtres percés modèles, dont on maîtrise toutes les propriétés physiques, et de comparer leurs performances à celles de filtres non percés. Des mesures de perte de charge et de la concentration en aval des filtres sont réalisées. Un capteur de fuites, constitué d'un filtre THE placé en aval du filtre percé, est expérimenté.

La question est de savoir si la présence d'une fuite est détectable à partir des capteurs habituellement employés dans l'industrie et si ce n'est pas le cas, quelles en sont les conséquences en terme de baisse de l'efficacité de filtration et quelles recommandations peuvent être données.

## 1. MATERIEL ET METHODES

### 1.1 Banc d'essais et média filtrant utilisés

Le banc d'essais utilisé pour ces expériences est constitué de deux porte-filtres en série, l'un contenant le filtre testé et l'autre un filtre de sécurité, d'une boucle de régulation du débit de filtration et de capteurs de pression différentielle pour la mesure des pertes de charge du filtre testé et du filtre de sécurité (0-200 mbars et 0-100 mbars respectivement).

L'aérosol généré au moyen d'un générateur Palas à brosse tournante (RBG 1000) est un aérosol d'alumine de diamètre médian en volume égal à  $3,5 \mu\text{m}$  ( $\sigma_g = 1,5$ ). La vitesse de filtration est réglée à une valeur de  $5 \text{ cm/s}$ . La surface filtrante plane est de  $95 \text{ cm}^2$ .

Un granulomètre DEKATI pourra être utilisé pour déterminer la concentration en particules en aval du filtre percé.

Le filtre utilisé servant à la fois de filtre test et de sécurité est un filtre à très haute efficacité (THE) en fibres de verre, D309, dont les propriétés sont décrites dans le tableau ci-dessous.

Filtre	Diamètre de fibres $d_{50}$ ( $\mu\text{m}$ )	Epaisseur ( $\mu\text{m}$ )	Compacité (-)
D309	0.7	575	0.056

Tableau 1. Propriétés du filtre D309

Les trous réalisés sur les différents échantillons de ce média filtrant présentent des diamètres de  $5,6$  ;  $1,82$  ;  $0,57$  et  $0,18 \text{ mm}$ .

### 1.2 Capteur de fuites utilisant un média filtrant THE

Un système de mesure développé par Bémer et coll (2003) a été expérimenté dans cette étude. Il est constitué d'un filtre THE placé à l'aval du filtre test et équipé d'un capteur de pression différentielle. Le développement de ce capteur a pour but la détermination indirecte de l'efficacité de filtration du filtre test.

En faisant l'hypothèse que les gâteaux de particules qui se forment à la surface des deux filtres ont les mêmes propriétés (compacité, granulométrie) l'efficacité du filtre test percé est donnée par :

$$E_{\text{filtrerepercé}} = 1 - \frac{\Delta P_{\text{capteur}} - \Delta P_0}{\Delta P_{\text{neuf}} - \Delta P_0} \quad [1]$$

avec  $\Delta P_{\text{capteur}}$  la perte de charge aux bornes du filtre de sécurité,  $\Delta P_{\text{neuf}}$ , la perte de charge du filtre neuf au même instant de filtration que le filtre test percé et  $\Delta P_0$  la perte de charge initiale du filtre neuf.

## 2. CARACTERISATION DES MEDIAS FILTRANTS, SANS ET AVEC FUITES

L'objectif de cette étude préliminaire est de caractériser le comportement des filtres percés vis à vis d'un écoulement d'air propre.

### 2.1 Perméation en air propre

La perte de charge de plusieurs échantillons de filtres percés a été suivie en fonction du débit d'air propre les traversant, sur la plage 0-110 NL/min. Les résultats sont donnés sur la figure 1.

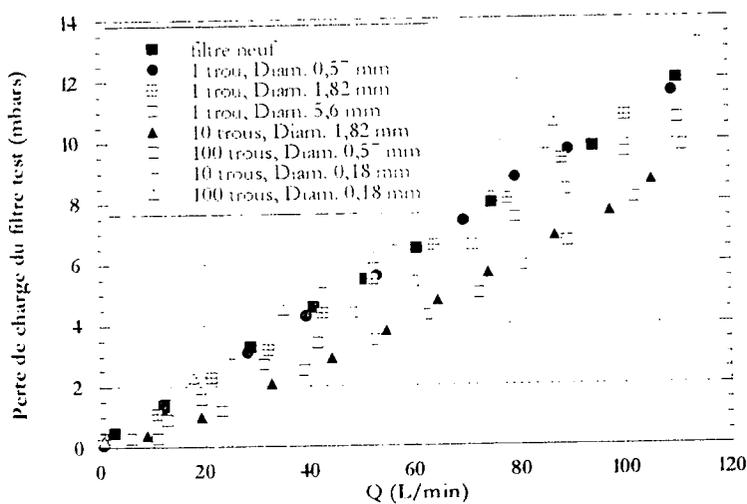


Figure 1 : Courbes de perméation à travers les filtres percés

Il apparaît sur le graphique que plus le diamètre du trou est important, plus la perte de charge du filtre percé est faible, ce qui est un résultat attendu (Fahrbach (1970)). De plus, pour une même surface de percements (1 trou, Diam. 5,6 mm ; 10 trous, Diam. 1,82 mm et 100 trous, Diam. 0,57 mm), la perte de charge est d'autant plus élevée que le nombre de trous est important. Ce phénomène est certainement dû aux effets de bords lors de l'écoulement de l'air à travers les percements. Enfin la figure 1 montre que la détection, à l'état neuf, de fuites de petits diamètres ( $\leq 1,82$  mm) est difficile par la seule mesure de la perte de charge. L'écart de valeurs avec le filtre neuf entre en effet dans l'incertitude du capteur de pression différentielle ( $\pm 0,1$  mbars).

### 2.2 Détermination de la répartition des débits entre zones filtrantes et percements

Au débit de filtration utilisé par la suite, soit  $Q_{\text{tot}} = 28,5$  L/min, la répartition des débits entre zone filtrante et zone percée peut être établie pour chaque géométrie de percement à partir de l'équation ci-dessous, établie à partir de l'égalité des résistances hydrauliques entre les deux zones :

$$Q_f = Q_{\text{tot}} \cdot \frac{S_f}{S_{\text{tot}}} \cdot \frac{\Delta P_{\text{percé}}}{\Delta P_{\text{neuf}}} \quad [2],$$

où  $Q_f$  est le débit d'air passant dans la zone filtrante.  $S_f$  et  $S_{\text{tot}}$  respectivement la surface de la zone filtrante et la surface totale et  $\Delta P_{\text{percé}}$  et  $\Delta P_{\text{neuf}}$  les pertes de charges, au débit  $Q_{\text{tot}}$ , du filtre percé et du filtre neuf.

Les résultats de cette répartition sont donnés dans le tableau suivant, avec une incertitude relative d'environ 5% du fait des faibles valeurs de perte de charge mesurées.

Percement	Débit dans la zone filtrante $Q_f$ (en % de $Q_{tot}$ )	Débit dans la zone percée $Q_p$ (en % de $Q_{tot}$ )
0	100	0
1 trou, $\varnothing$ 0,57 mm	90,9	9,1
1 trou, $\varnothing$ 1,82 mm	72,7	27,3
1 trou, $\varnothing$ 5,6 mm	45,3	54,7
10 trous, $\varnothing$ 1,82 mm	54,4	45,6
100 trous, $\varnothing$ 0,57 mm	75,5	24,5
100 trous, $\varnothing$ 0,18 mm	93,7	6,3
100 trous, $\varnothing$ 0,18 mm	96,9	3,1

Tableau 1 : Répartition des débits en air propre ( $Q_{tot} = 28,5$  L/min) pour différentes géométries de percements, filtre D309

Ces valeurs confirment les conclusions des expériences de perméation, avec un débit de fuite d'autant plus important que la taille du percement est grande et d'autant plus faible que le nombre de trous de très faible diamètre est important à surface de percement égale.

### 3. COLMATAGE DES MEDIAS FILTRANTS PERCES

L'objectif est ensuite d'étudier l'influence de ces percements sur le colmatage. Différentes investigations seront faites : suivis de la perte de charge du filtre percé et du filtre de sécurité utilisé comme capteur, observations de la surface du filtre.

#### 3.1 Influence de la surface du percement sur le colmatage

Les médias filtrants percés, caractérisés dans la partie précédente, sont colmatés avec un aérosol d'alumine. Les profils de perte de charge obtenus sont donnés sur la figure 2.

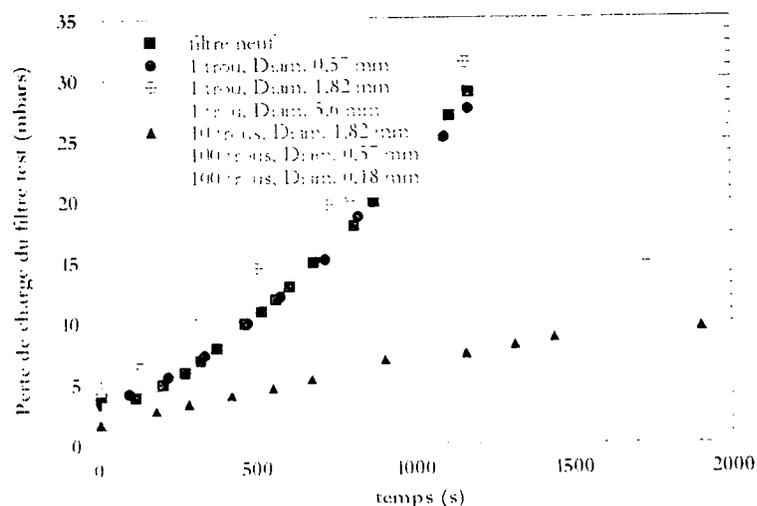


Figure 2 : Evolution de la perte de charge des filtres percés lors de leur colmatage,  $U_f = 5$  cm/s

Les profils de perte de charge lors du colmatage des filtres percés varient fortement avec la taille des percements. Pour de grandes surfaces de trous, la perte de charge croît faiblement et a même tendance à se stabiliser à partir d'une certaine durée de colmatage (1 trou, Diam. 5,6 mm). Cet état pseudo-stationnaire de la perte de charge s'explique par l'augmentation de la résistance hydraulique du filtre au cours du colmatage, qui entraîne une diminution du débit dans la zone filtrante, compensée par une augmentation du débit dans la zone de percements.

Par contre pour les faibles tailles de percement ( $\varnothing \leq 1,82$  mm) le profil de perte de charge est quasiment identique à celui du filtre neuf. Pour ce type de fuites, le suivi de la perte de charge du filtre

test est donc insuffisant pour une détection efficace. La question est maintenant de savoir si le risque engendré par ces fuites indétectables est important ou non.

### 3.2 Validation de l'utilisation du capteur de concentration aval

Lors du colmatage des filtres percés, la perte de charge du filtre de sécurité, placé à l'aval du premier, a été suivie. Elle est représentée sur la figure 3 pour les filtres percés de trous de diamètre inférieurs ou égaux à 1,82 mm.

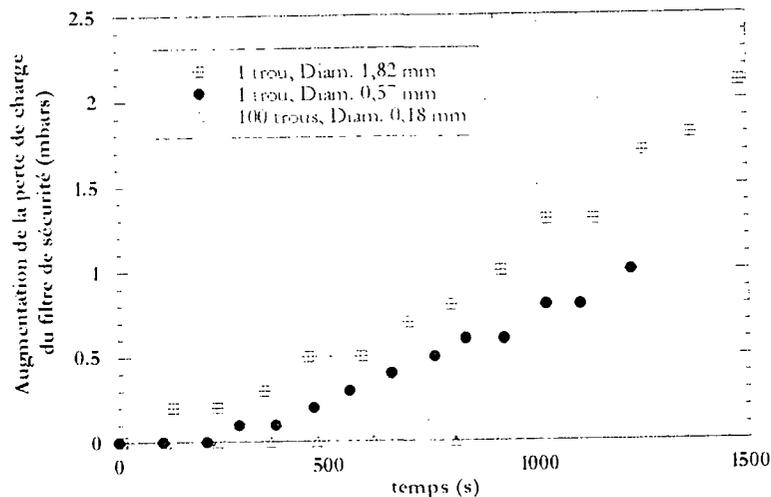


Figure 3 : Evolution de la perte de charge du filtre de sécurité placé à l'aval du filtre percé

Le capteur présenté est efficace puisqu'une dérive de la perte de charge du filtre de sécurité est observée dans les cas de colmatage des filtres percés respectivement de trous de 1,82 et 0,57 mm. Malgré la précision relativement faible du capteur (0,1 mbars), cette méthode de détection des fuites constitue une alternative intéressante au suivi de la perte de charge du filtre percé qui ne donne pas de résultats concluants (figure 2).

Ces données ont de plus été exploitées afin d'en déduire l'efficacité du filtre percé (équation [1]). Même si l'incertitude relative sur les valeurs calculées est de l'ordre de 10 % du fait des faibles valeurs de la perte de charge du filtre utilisé comme capteur, l'efficacité des filtres percés des trous de plus grand diamètre (1,82 mm et 0,57 mm) à l'état colmaté est loin d'atteindre les valeurs classiques que présentent les filtres THE. Dans les deux cas, l'efficacité se stabilise en effet au voisinage de 95 %, ce qui traduit l'influence importante du percement sur les performances de ces filtres.

Dans le cas du filtre percé de trous de 0,18 mm de diamètre et même si la surface de percement engendrée avoisine celle créée avec un trou de 1,82 mm de diamètre, aucune augmentation de la perte de charge du filtre de sécurité n'est observée. Le capteur ne met en évidence aucune baisse de l'efficacité de séparation.

### 3.3 Cas d'un percement de diamètre 0,18 mm - Mesure de l'efficacité de filtration au cours du colmatage

Afin de confirmer les observations précédentes et d'analyser de manière plus détaillée le cas extrême du filtre D309 percé d'un trou de 0,18 mm de diamètre, des mesures de la concentration aval ont été réalisées à l'aide de l'impacteur DEKATI. Les résultats sont donnés sur la figure 4.

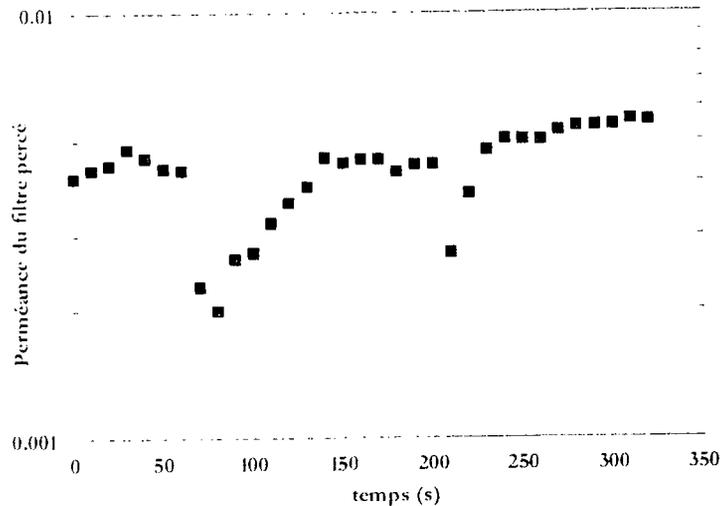


Figure 4 : Evolution de la perméance du filtre D309 percé d'un trou de 0,18 mm de diamètre -  $U_f = 5$  cm/s

Plusieurs observations peuvent être faites. La première concerne l'ordre de grandeur de la perméance du filtre percé qui, bien que faible, ne correspond plus à celle du filtre D309 neuf (voisine de  $10^{-4}$ ). Le deuxième point est l'aspect cyclique du profil de perméance au cours du temps. Une explication pourrait être le bouchage régulier du trou suivi de son débouchage sous l'effet de la pression. Des observations au microscope ont permis de mettre en évidence la forme du dépôt en cratère autour du trou, cratère qui pourrait s'effondrer dans le trou à partir d'une certaine masse. Enfin il semble sur le graphique que la perméance augmente très légèrement au cours du temps ce qui laisse à penser que les performances du filtre percé s'altèrent au cours du temps. Cette remarque est corroborée par des mesures faites au moyen du DEKATI sur deux échantillons du filtre D309, percés respectivement d'un trou de 0,57 mm de diamètre et d'un trou de 1,82 mm de diamètre. Dans chacun des cas, l'efficacité de filtration diminue, respectivement de 1% et de 7% sur une durée de colmatage de 1000 s environ.

## CONCLUSION

L'étude présentée a mis en évidence les difficultés de détection des fuites dans la structure des filtres à fibres utilisés en ventilation générale. Il a été montré que la méthode fréquemment employée dans l'industrie et qui consiste en un suivi de la perte de charge de l'installation de filtration n'était pas fiable. Des percements, même de diamètre supérieur au millimètre, ne sont pas détectables par cette méthode. En parallèle de ces observations, la baisse d'efficacité de séparation due à ces percements a été quantifiée au moyen de deux méthodes, l'une simple reposant sur le suivi de la perte de charge d'un filtre THE placé en aval du filtre percé et l'autre utilisant un impacteur DEKATI. La première méthode donne des résultats satisfaisants, même si la détermination de l'efficacité de filtration qui en découle présente des incertitudes importantes. Elle pourrait être mise en œuvre pour détecter les fuites. La seconde a permis de mettre en évidence la baisse d'efficacité de filtration due à une fuite invisible à l'œil et indétectable au moyen du simple suivi de la perte de charge. Ce résultat confirme le fait que la moindre perforation d'un filtre THE lui retire ses propriétés de filtration.

## REFERENCES

- Brown R. C. (1993). An integrated approach to the theory and applications of fibrous filters, Pergamon Press Ed., Oxford.
- Bémer D., Thomas D., Contal P., Subra I. (2003). Development of a device for the real-time measurement of the aerosol mass concentration. Applied Occupational and Environmental Hygiene. 18 . 577-583.
- Fahrbach I. J. (1970). The effect of leaks on the total penetration, velocity and concentration measurements at perforated filters. Staub Reinhaltung der Luft. 30. 45-52.

# MODELISATION NUMERIQUE DU TRANSPORT ET DE LA CAPTURE DE PARTICULES A L'INTERIEUR D'UN FILTRE TISSE

M. Bénesse, L. Le Coq, C. Sollic

Ecole des Mines de Nantes, GEPEA, 4 rue Alfred Kastler, BP 20722, Nantes cedex 3  
laurence.le-coq@emn.fr

## TITLE

Numerical modeling of particle motion and capture inside a woven filter

## ABSTRACT

Numerical modelling of particle motion and capture inside a woven filter can help to evaluate the collection efficiency behaviour of such a filter. Indeed, majority of models available in the state-of-art and dealing with collection efficiency prediction, are developed for non woven homogeneous filters. However, woven fabrics have heterogeneous structure. With this intention, a two mat fabrics geometry is realised to study the flow behaviour. Two flow regimes are studied. For the velocity of 0.5 m/s, flow behaviour is viscous and streamlines follow the filter geometry, while for the velocity of 2.5 m/s, flow behaviour shows formation of large recirculation zones on the downstream side of the filter and presents a three-dimensional aspect. Finally, velocity and pressure fields associated with the balance of forces acting on particles, allow to calculate particles trajectories through the fabrics. Study of this trajectories and deposition areas allows to estimate the filter collection efficiency.

## RESUME

Cette étude constitue une première approche de la modélisation de la capture des particules dans un milieu tissé. Cette approche permet d'estimer l'évolution de l'efficacité de collection dans un tissu. En effet, la plupart des modèles de la littérature servant à déterminer les performances d'un média filtrant ne sont applicables qu'à des milieux homogènes. Or, de par leur conception tissée, les tissus sont des milieux hétérogènes. Le recours à la modélisation numérique de la trajectoire et de la capture des particules à l'intérieur des filtres tissés semble une bonne alternative. Pour ce faire, la réalisation d'une géométrie représentant un natté de 2 a permis dans un premier temps d'étudier le comportement de l'écoulement le traversant. Deux régimes ont été étudiés. Pour une vitesse débitante de 0,5 m/s, l'écoulement est visqueux et les lignes de courant suivent parfaitement la géométrie du filtre. Pour une vitesse débitante de 2,5 m/s, l'étude de l'écoulement montre l'apparition de recirculations importantes en aval des fils et un comportement tridimensionnel marqué. Par la suite, l'association des champs de vitesse et de pression avec un bilan des forces s'exerçant sur les particules permet de calculer les trajectoires de celles-ci à l'intérieur des écoulements. L'étude de ces trajectoires et des zones de capture permet d'estimer l'efficacité de collection du tissu testé.

## I . INTRODUCTION

Les médias fibreux de carbone activé obtenus par tissage de fils multi-fibres sont des filtres prometteurs pour l'élimination de Composés Organiques Volatils en traitement d'air. Dans une préoccupation d'intensification des procédés de traitement de l'air intérieur et habitacle, le transport des particules PM10 au sein des pores de ces médias est étudié. En effet, selon le régime d'écoulement et le mode de tissage ou armure (Lu *et al.*, 1997 et Tung *et al.*, 2002), la structure de l'écoulement à l'intérieur des pores du média est très différente et modifie les forces s'exerçant sur les particules portées par l'écoulement et donc leur trajectoire. L'écoulement peut ainsi présenter des zones de recirculation peu favorables aux transferts de masse ou des accélérations brusques engendrant des contraintes de cisaillement néfastes à la capture des particules.

Les performances de filtration des médias filtrants dépendent de plusieurs paramètres tels que la taille des fibres les constituant, leur épaisseur et leur compacité. Mais l'un des paramètres les plus importants est l'efficacité de collection des particules sur les fibres seules (Langmuir, 1942 ; Davies, 1973 ; Brown, 1993). Pour des filtres de structure homogène et en filtration stationnaire, cette efficacité de collection est déterminée à l'aide de modèles semi-empiriques d'efficacité fractionnelles propres aux différents mécanismes de capture des particules mis en jeu autour des fibres. Or le tissu, de par son tissage, présente une structure hétérogène. Ces modèles ne peuvent donc pas être utilisés.

Plus récemment, certaines études menées en filtration dynamique (Lu *et al.*, 1997, Kanaoka, 2002, Lehmann, 2002, ...) optent pour une approche numérique où la trajectoire des particules autour de fibres ou d'arrangements de fibres est calculée. Ainsi, il est possible d'obtenir une compréhension plus précise de l'évolution spatiale du dépôt des particules sur les fibres. Cette approche peut être appliquée au cas du tissu pour évaluer son efficacité de collection en régime stationnaire. Pour cela une géométrie modèle de fils entrelacés représentant la structure d'un filtre tissé est réalisée. La perméabilité à l'écoulement des fils est choisie de sorte à représenter leurs constitutions multi-fibres. Dans un premier temps, l'écoulement au voisinage et au sein des pores du tissu est modélisé pour différentes conditions de vitesses grâce au logiciel Fluent. Puis l'écoulement en amont du filtre estensemencé avec des particules de taille donnée (PM10). En effectuant un bilan des forces agissant sur ces particules placées dans l'écoulement, il est ainsi possible de déterminer leur trajectoire et de localiser leur zone préférentielle de capture.

## II . MODELISATION DE L'ECOULEMENT DANS UN TISSU

La modélisation de l'écoulement à travers un tissu nécessite tout d'abord la réalisation d'une géométrie modèle. Les résultats obtenus permettent de caractériser l'écoulement et donc de définir les zones qui semblent les plus appropriées pour la capture des particules.

### II.1 . Modélisation de la géométrie d'un tissu

Le choix est fait de réaliser une géométrie simplifiée représentant un nappé de 2. En effet, ce mode de tissage ou armure présente deux avantages :

- Les pores qu'il contient sont représentatifs de l'ensemble des géométries de pore qui peuvent être rencontrées dans les assemblages de fils entrelacés.
- Ce tissu a déjà fait l'objet d'une étude expérimentale de l'écoulement au moyen d'une maquette modèle agrandi 50 fois par rapport au tissu réel (Le Coq *et al.*, 2001). La comparaison des résultats expérimentaux (Le Coq *et al.*, 2001) et des résultats de la modélisation de l'écoulement a permis de valider l'approche numérique (Bénesse *et al.*, 2003).

### II.1.1 . Conception du modèle géométrique simplifié du natté de 2

La modélisation de la géométrie du natté de 2 est obtenue par l'entrelacement de fils de diamètre moyen 400  $\mu\text{m}$  et de section droite octogonale, comme le montre la figure 1. Le maillage est réalisé à l'aide du logiciel commercial Gambit. Le choix d'utiliser des fils octogonaux est retenu pour faciliter le maillage au voisinage des fils.

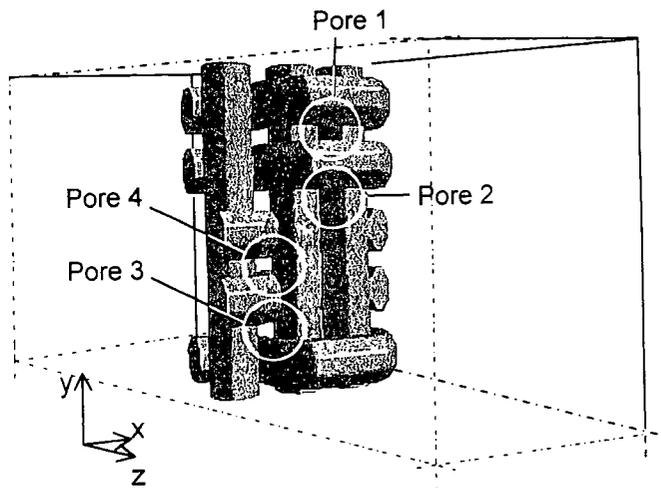


Figure 1. Représentation 3D du modèle

Bénesse *et al.* (2003) ont montré la faible influence de la forme des fils sur l'écoulement en comparant les résultats de modélisation en 2D obtenus respectivement pour des fils de sections cylindriques circulaires et octogonales. Ils ont montré qu'en utilisant cette dernière configuration, on obtient une surestimation maximale de 4% de la vitesse en aval du filtre.

Le natté de 2 est constitué de quatre géométries de pore localisées sur la figure 1.

### II.1.2 . Le maillage

La géométrie représentant le natté de 2 est introduite à l'intérieur d'un conduit rectangulaire défini numériquement. La face latérale droite et la face supérieure de ce conduit (figure 1) sont définies comme des parois imperméables alors que la face latérale gauche et la face de dessous sont des plans de symétrie (figure 1). L'ensemble de ce volume d'étude nécessite la définition de 1 150 000 cellules afin d'obtenir un maillage suffisamment fin au voisinage des fils (épaisseur de maille : 6% du diamètre des fils).

## II.2 . Modélisation de l'écoulement

La résolution des équations de Navier Stokes pour cet écoulement tridimensionnel d'air est faite à l'aide du logiciel commercial Fluent 6.0.

Des vitesses débitantes de 0,5 et 2,5 m/s correspondant à des vitesses d'air moyennes et maximales des systèmes de ventilation, sont considérées. Les nombres de Reynolds de fils correspondants sont respectivement  $Re_{fil} = 12,7$  et 63,5. D'après la théorie de l'écoulement autour d'un fil isolé (Comolet, 1976), l'écoulement est laminaire pour cette gamme de  $Re_{fil}$ , et au-delà de  $Re_{fil} = 40$ , des détachements

tourbillonnaires alternés apparaissent en aval du fil. Compte tenu des nombres de Reynolds de fil calculés pour la géométrie étudiée, le choix est donc fait de modéliser l'écoulement en régime laminaire instationnaire.

Afin de prendre en compte la structure multifibre des fils, ceux-ci sont définis comme des milieux perméables dans lesquels est appliquée la relation de Darcy (1856). Ainsi un gradient de pression apparaît dans la cellule poreuse, créant une perte de charge proportionnelle à la vitesse du fluide. Dans le cas de cette étude la perméabilité du fil est de  $1 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2$  et sa porosité de 0,49.

### II.3 . Résultats et discussions

La figure 2 présente les lignes de courant passant par le plan de symétrie vertical (face latérale gauche, figure 1). D'une manière générale, les lignes de courant en amont du tissu sont peu perturbées par les fils. Par contre, en aval de chaque pore certaines lignes de courant (pore 4) sont déviées par les jets issus des pores voisins supérieurs et inférieurs. Pour 0,5 m/s, l'écoulement est visqueux car les lignes de courant longent parfaitement les fils. De plus, l'écoulement reste bidimensionnel en sortie du filtre. Par contre, les résultats obtenus à 2,5 m/s montrent qu'il y a apparition de recirculations importantes en aval des fils (pore 4). La taille de ces recirculations est de l'ordre 1,5 fois le diamètre des fils en longueur et 0,7 fois en hauteur. De plus, ces recirculations ont un comportement tridimensionnel marqué, ce qui perturbe d'autant plus l'écoulement en aval du filtre.

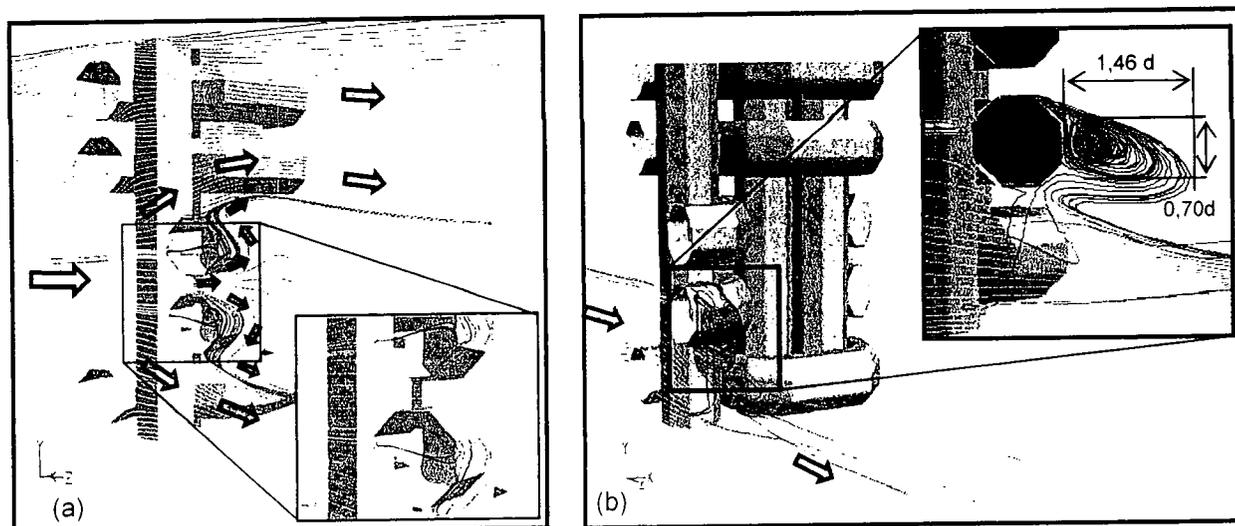


Figure 2. lignes de courants à travers le filtre pour 0,5 m/s (a) et 2,5 m/s (b).

### III . SIMULATION DE LA CAPTURE DES PARTICULES

La simulation de la capture des particules passe par le calcul de leurs trajectoires à l'intérieur du filtre. Pour cela, un bilan de forces est appliqué aux particules entraînées par l'écoulement. Ce bilan ne prend pas en compte les effets électrostatiques, la diffusion des particules, les forces de Magnus ainsi que les forces de Basset. En représentation lagrangienne, on considère que le bilan des forces s'exerçant sur une particule s'écrit d'après l'équation de Basset-Boussinesq-Oseen (Johnson, 1998) :

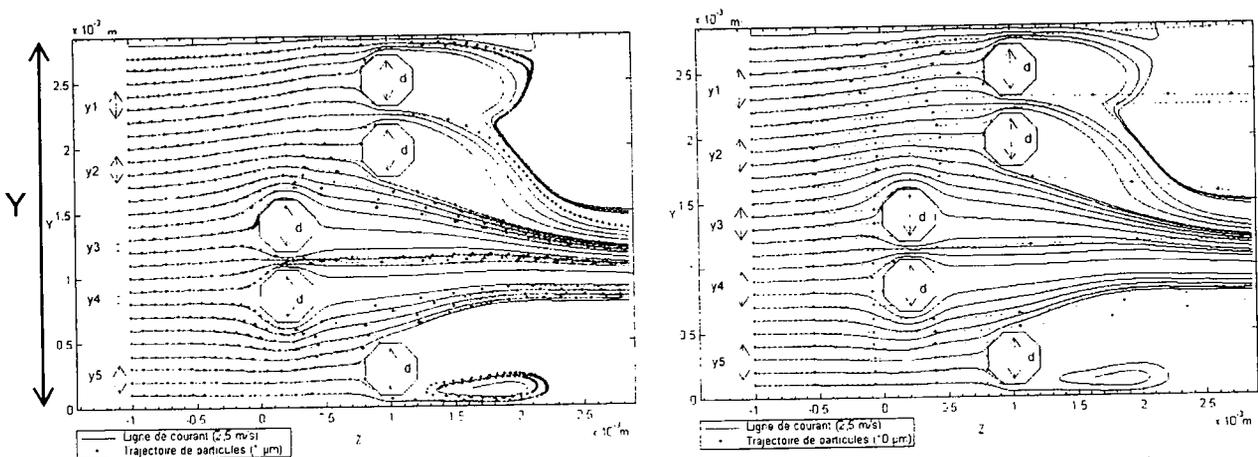
Force d'inertie des particules	Force de gravité et d'Archimède	Force de traînée	Force de masse ajoutée	Force de gradient de pression
$\frac{\pi d_p^3}{6} \rho_p \frac{d\bar{U}_p}{dt} = \frac{\pi d_p^3}{6} (\rho_p - \rho_f) \bar{g} + Cd \frac{\rho_f}{2} (\bar{U}_f - \bar{U}_p)^2 \frac{\pi d_p^2}{4} + \frac{\pi d_p^3}{12} \rho_f \left( \frac{d\bar{U}_f}{dt} - \frac{d\bar{U}_p}{dt} \right) + \frac{\pi d_p^3}{6} g \text{grad} P$				

Dans cette équation,  $d_p$  est le diamètre de la particule,  $\rho$  une masse volumique,  $U$  une vitesse,  $t$  le temps,  $g$  l'accélération de la pesanteur,  $Cd$  le coefficient aérodynamique de traînée,  $\bar{U}_p$  désignant la particule et  $\bar{U}_f$  désignant le fluide.

L'intégration de cette équation est faite à l'aide du logiciel Matlab pour des particules de différentes tailles placées dans les champs de vitesse et de pression obtenus pour la modélisation de l'écoulement à 0,5 et 2,5 m/s (§ II). Cette intégration numérique est réalisée suivant deux dimensions sur des champs extraits d'un plan de coupe vertical du domaine d'étude. Les composantes en  $x$  de la vitesse ne sont donc pas prises en compte.

La capture est assurée par une condition d'arrêt imposée aux particules qui touchent les fils ou d'autres particules déjà captées. On considère par ailleurs que ces particules ne rebondissent pas et ne sont pas relargable une fois captées.

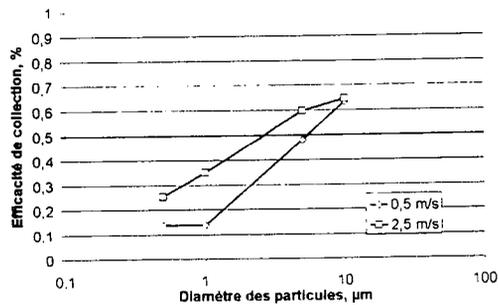
Pour les deux vitesses étudiées, les simulations sont effectuées pour des particules de diamètres différents, i.e.  $d_p = 0,5, 1, 5$  et  $10 \mu\text{m}$ . La masse volumique choisie pour les particules est celle de l'alumine ( $\rho_{\text{AL}_2\text{O}_3} = 3950 \text{ kg/m}^3$ ). Ces particules sont ensemencées à intervalle régulier sur toute la hauteur de la conduite. La vitesse d'injection des particules est égale à la vitesse de l'écoulement au point où elles sont introduites ( $\bar{U}_{p,0} = \bar{U}_f$ ). La figure 4 montre les résultats obtenus pour des particules de diamètre 1 et  $10 \mu\text{m}$  lâchées dans un écoulement de vitesse débitante 2,5 m/s.



**Figure 4.** Trajectoires 2D de particules de 1 et  $10 \mu\text{m}$  dans un champs de vitesse obtenues pour 2,5 m/s de vitesse moyenne

Plus les particules sont grosses, et plus elles quittent leur ligne de courant initiale sous l'effet des forces d'inerties. De plus, les particules de même taille ne sont pas capturées par les mêmes mécanismes selon leur localisation dans la profondeur du tissu. En effet, les accélérations du fluide apparaissant au centre des pores augmentent les effets inertiels. L'ensemble des simulations effectuées permet de calculer les efficacités de collection du filtre pour les différentes tailles de particules étudiées. En effet, considérant que  $Y$  est la hauteur de la section, et  $y_x$  la distance

entre les trajectoires limites des particules capturées par un fil  $x$  (voir figure 4), l'efficacité de collection du fil ( $E$ ) est égale au rapport  $y_x / Y$ . Les résultats d'efficacité de collection du tissu obtenus pour les deux cas de vitesses étudiées sont présentés à la figure 5.



**Figure 5.** Evolution de l'efficacité de collection sur un plan du tissu.

L'analyse de ces courbes montre que la vitesse est un paramètre important qui conditionne fortement les performances de filtration du tissu. Quand la vitesse croît, la capture par impaction inertielle augmente pour les particules de petites tailles. L'efficacité de collection passe ainsi de 13,7 % à 25,4 % pour les particules de 0,5 µm de diamètre. Les particules de plus petites tailles ne sont pas modélisées car l'équation de bilan des forces utilisée dans cette étude ne prend pas en compte les effets diffusifs.

Ces courbes montrent que les performances du tissu ne sont pas très élevées. En effet, de par sa constitution, le tissu présente des passages préférentiels au niveau des pores inter-fils par où les particules passent aisément.

#### IV . CONCLUSION

Cette étude a permis de modéliser l'écoulement 3D à l'intérieur d'un nappé de 2, et ainsi d'avoir accès aux champs de vitesse régnant à l'intérieur des pores inter-fils le constituant. De plus, un bilan des forces 2D sur les particules portées par l'écoulement a permis d'estimer l'évolution de l'efficacité de collection du tissu pour deux vitesses débitantes. Cette étude constitue une première approche de la modélisation de la capture des particules, étant donné que l'on considère une trajectoire de particules dans un plan alors que l'écoulement est tridimensionnel. Dans un second temps, le modèle a été étendu à un bilan des forces suivant les trois dimensions. Des premières simulations ont permis d'étudier la capture de particules de diamètres supérieurs à 50 µm.

#### Références bibliographiques

- Bénesse M., Le Coq L., Bellettre J. et Sollic C., 2003, Analyse de l'écoulement à travers de filtres tissés : Approche expérimentale et numérique, 6<sup>e</sup> Congrès Français de Mécanique, Nice
- Brown R.C., 1993, Air Filtration, An integrated approach to the theory and applications of fibrous filters, Pergamon press, n° ISBN 0-08-041274-2.
- Comolet R., 1976, Mécanique expérimentale des fluides, Tome II : Dynamique des fluides réels, turbomachines, Edition Masson, n° ISBN 2-225-42438-1.
- Davies C.N., 1973, Air Filtration, Academic Press Inc., n° ISBN 0-12-205660-4.
- Johnson R.W., 1998, Handbook of fluid dynamics, CRC Press, Springer, n° ISBN 3-540-64612-4.
- Kanaoka C., 2002, Simulation of dust loading process at different filtration mechanisms including electrostatic effect, International Workshop, Particle Loading and Kinetics of Filtration in Fibrous Filters, IMVM, Universität Karlsruhe.
- Langmuir I., 1942, Report on smokes and filters, Section I.U.S. Office of Scientific Research and Development, N° 865, part. IV. (Cité par Gougeon, 1994).
- Le Coq L., Pavageau M. et Sollic C., 2001, Proceeding of 2001 ASME International Mechanical Engineering Congress and Exposition, November 11-16, New York, NY.
- Lehmann M.J. et Kasper G., 2002, CFD Simulations of single fiber loading, International Workshop, Particle Loading and Kinetics of Filtration in Fibrous Filters, IMVM, Universität Karlsruhe.

## **DETERMINATION DE LA DISTRIBUTION EN TAILLE AU NIVEAU D'UN SITE DE PRODUCTION DE L'INDUSTRIE EXTRACTIVE.**

O. Le Bihan\*(1), P. Delalain (1), L. Botté (2), Y. Lemaitre (2), G. Tymen (3), F. Del Gratta (1).

(1) Direction des risques chroniques, Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques, Parc Technologique ALATA, BP 2, 60550 Verneuil-en-Halatte. (2) Carrières de Chailloué, 61500 Chailloué, (3) Université de Bretagne Occidentale, LARAAH, avenue Le Gorgeu, 29200 Brest.

olivier.le-bihan@ineris.fr

### **TITLE**

Particle size distribution in a quarry.

### **ABSTRACT**

Pneumoconiosis constitutes an important topic for occupational exposure in the quarry industry. The health effects of fine and especially ultrafine particles have to be considered. This paper presents some experimental results concerning sampling and analysis of the aerosol size distribution at a workplace, in a French quarry. A low pressure Berner impactor LPI 30 has been carried out. Samples have been analysed using a SEM microscope. Silicon and oxygen appear to be from far the main elements in the 100 nm to 10 µm particle size range.

### **RESUME**

La problématique de la pneumoconiose tient une place particulièrement importante dans le domaine de l'hygiène professionnelle, en ce qui concerne l'industrie extractive française.

La communauté scientifique internationale s'intéresse depuis peu à la toxicité des particules fines et ultrafines. Des études récentes ont montré leur rôle potentiel dans le développement des atteintes pulmonaires professionnelles.

Les travaux présentés ici ont pour but de déterminer la répartition en taille des poussières de carrières, en terme de concentration massique, de concentration en nombre, mais aussi en terme de morphologie et de composition chimique.

Une attention particulière est accordée aux particules submicroniques, et notamment ultrafines.

Pour ce faire, un impacteur en cascade basse pression Berner a été mis en œuvre au sein d'une unité de concassage secondaire et tertiaire. Les échantillons ont été analysés à l'aide d'un microscope électronique à balayage environnemental équipé de la microanalyse X.

## **INTRODUCTION**

Les poussières minérales ont été responsables de milliers de morts par pneumoconiose durant le vingtième siècle. En dépit des indéniables progrès réalisés dans le domaine de la prévention, c'est encore, tous régimes confondus (minier et général), 600 cas de pneumoconioses qui sont reconnus chaque année en France.

La prévention s'organise au niveau français autour du Règlement Général de l'Industrie Extractive (RGIE). Il consisté principalement en la mise en œuvre sur le terrain d'un instrument, le CIP 10, assurant le prélèvement des particules supermicroniques inhalables ou alvéolaires ; la première de ces fractions est soumise à des valeurs limites massiques, ce dispositif étant complété pour la seconde fraction par une prise en compte du taux de quartz.

La communauté scientifique internationale s'intéresse depuis peu à la toxicité des particules fines. Des études récentes ont montré leur rôle potentiel dans le développement des atteintes pulmonaires professionnelles.

L'INERIS réalise pour le compte du Ministère de l'industrie une étude pluridisciplinaire portant sur ces nouveaux aspects.

Il s'agit, d'une part, de déterminer la répartition en taille des poussières de carrières, en terme de concentration massique, de concentration en nombre, mais aussi en terme de morphologie et de composition chimique.

Une attention particulière est accordée aux particules submicroniques, et notamment ultrafines.

D'autre part, il est prévu dans un second temps d'évaluer l'impact de ces différentes tranches granulométriques sur la santé, ceci par le biais d'une évaluation *in vitro*, à l'aide de tests toxicologiques.

Nous présenterons ici le résultat de deux campagnes de mesure réalisées au niveau de la carrière de Chailloué (Normandie).

## **PRESENTATION DU SITE DE MESURE**

La carrière de Chailloué exploite un gisement de « grès siliceux recristallisés » ou « quartzite » qui compte parmi les plus importants de France du fait de son homogénéité (stabilité de taux de quartz) et de par sa taille.

Ce site a pour spécificité d'être doté d'unités de concassage secondaire et tertiaire confinées, au sein d'un même bâtiment, concept permettant de limiter les phénomènes de dispersion.

De ce fait, le problème du positionnement du système de prélèvement dans un panache spécifique, ne se pose pas : la source est dominante au sein du système de confinement.

## **METROLOGIE**

Un impacteur en cascade basse pression Berner LPI 30 a été mis en œuvre au sein de l'unité de concassage secondaire et tertiaire.

Un prélèvement sur filtre total (TSP) a également été réalisé lors de la première campagne.

Les échantillons ont été analysés à l'aide d'un microscope électronique à balayage environnemental équipé de la microanalyse X, permettant tout à la fois un dénombrement, la détermination du diamètre de Feret, ainsi qu'une analyse élémentaire.

La fraction ultrafine (< 0,1µm) a nécessité la mise en œuvre d'un microscope à balayage à haute résolution.

## RESULTATS

### Composition chimique des particules supérieures à 0,5 µm

Une analyse MEB automatique a été réalisée sur un filtre total. L'échantillonnage sur ce filtre a été réalisé de manière simultanée au prélèvement par impaction.

Il est important de noter que cette analyse porte sur la gamme supérieure à 0,5 µm.

- ✓ Du point de vue de l'analyse chimique, 1218 particules ont été caractérisées : 97% des particules présentent les éléments Si et O, de manière exclusive (81%) ou associés (16%) à d'autres éléments comme l'Aluminium, le Potassium, voire le Fer (Figure 1).

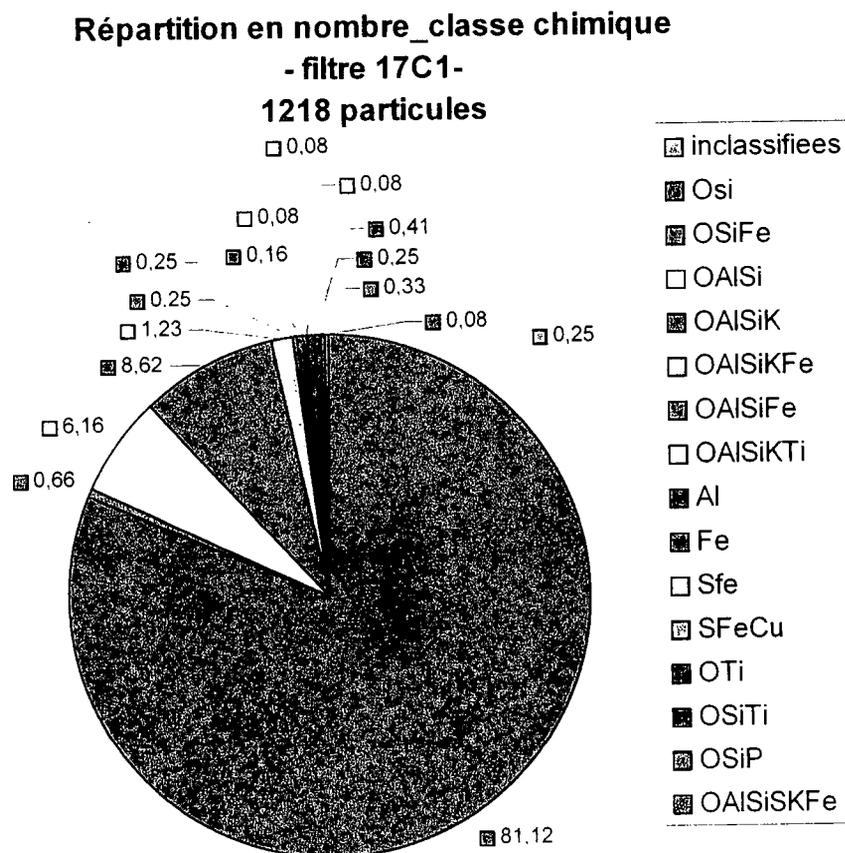


Figure 1 : analyse chimique sur filtre total, de 1218 particules, dans la gamme supérieure à 0,5 µm.

- ✓ la microanalyse X qui est une technique d'analyse chimique élémentaire ne permet pas de déterminer la structure moléculaire, ni la structure cristalline. Il n'est donc pas possible de différencier le quartz de la silice amorphe. Toutefois, nous pouvons nous baser sur la connaissance acquise par ailleurs par les analyses par CIP 10, sur ce site (gamme supermicronique) : l'expérience sur le site de Chailloué montre que la classe Si, O correspond en fait à la silice  $\text{SiO}_2$ , laquelle est généralement essentiellement sous la forme de quartz (analyses de poussières siliceuses par spectrométrie IRTF). En conséquence, en ce qui concerne le filtre étudié ici, il est très probable que les particules composées uniquement de silicium et d'oxygène (soit 81% des particules) soient des particules de quartz.

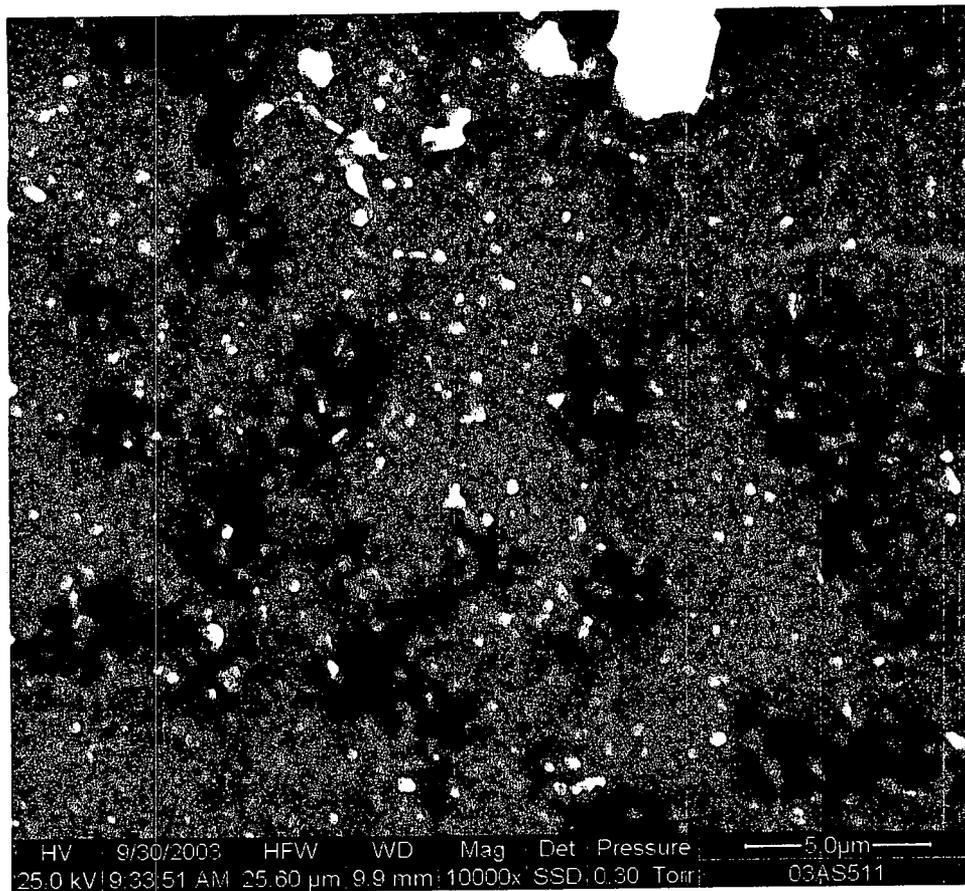


Photo 1 : détail de l'étage de prélèvement de la gamme 60 nm – 130 nm.

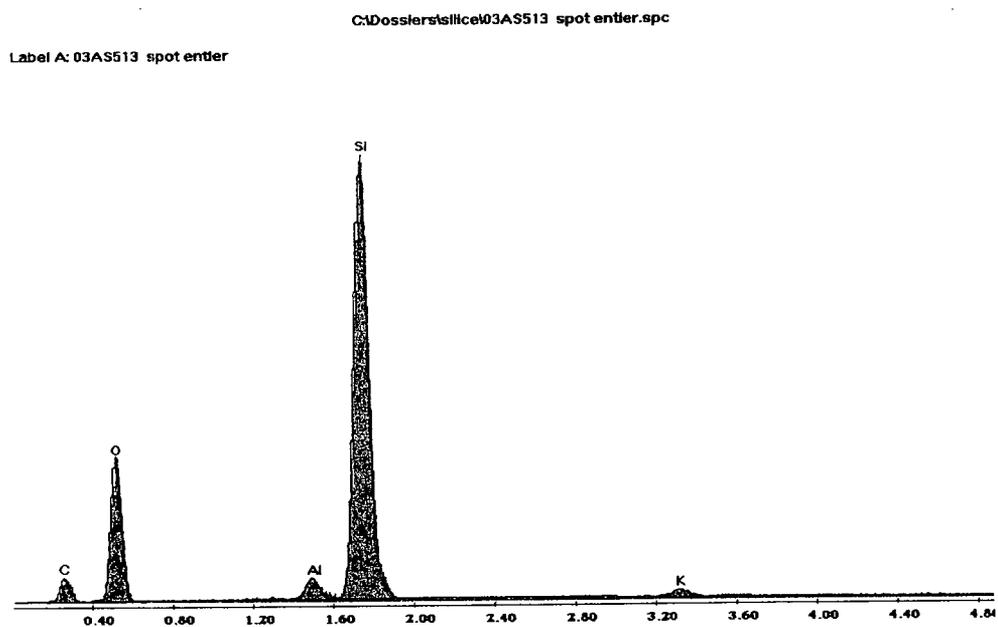


Figure 2 : analyse chimique d'un spot entier de l'étage 0,25 - 0,5 μm.

## Particules inférieures à 0,5 µm

Nous considérons dans cette partie un prélèvement par impaction en cascade réalisé au niveau du concasseur secondaire.

- ✓ Présence de particules submicroniques et ultrafines ?

L'impacteur en cascade a pour objectif de prélever l'ensemble des particules existant dans la gamme 60 nm – 16 µm, et donc notamment 60 nm – 1.0 µm (gamme submicronique). En ce qui concerne le prélèvement étudié ici, une visualisation à l'œil nu montre la présence de matière pour la totalité des filtres de l'impacteur : nous sommes donc en présence de particules submicroniques.

Nous avons cherché à préciser les caractéristiques des particules dans la gamme d'entrée (étage 1 : 60 nm – 130 nm). Une analyse manuelle de cet étage a été réalisée, jusqu'à 100 nm (minimum détectable). Ceci nous a permis de mettre en évidence l'existence de particules pour des diamètres descendant jusqu'à notre limite de détection, 100 nm, qui correspond à la partie supérieure de la gamme des particules ultrafines.

Un détail de la zone d'impaction est donné par la photo 1.

- ✓ Composition élémentaire

Deux surfaces d'impaction ont fait l'objet d'une analyse élémentaire par sonde X : elles correspondent aux gammes 60 – 130 nm et 250 – 500 nm.

Nous observons la prédominance des éléments Si et O. Le lien avec le procédé industriel en présence est donc parfaitement évident.

A titre d'exemple, la figure 2 fournit l'analyse chimique d'un spot de l'étage 0,25 – 0,50 µm. La présence de Carbone est liée à la nature du support d'échantillonnage.

Une analyse individuelle de particules a été réalisée au sein de la gamme 0,25 – 0,50 µm. Pour toutes les particules analysées (soit un sous-groupe des particules collectées) on note l'apparition de raies de l'Aluminium, du Potassium, et dans certains cas, du Fer.

## CONCLUSION

Une campagne de mesure a été réalisée en juillet 2003 sur le site de la carrière de Chailloué. Les objectifs principaux ont été :

- en parallèle à l'approche réglementaire, de caractériser la granulométrie de l'aérosol produit,
- de déterminer si celui-ci comprend des particules submicroniques, voire ultrafines.

Deux prélèvements simultanés, effectués au niveau d'un site confiné de concassage, par impaction et filtration totale, ont été analysés par microscopie électronique à balayage. Les éléments suivants ont été observés :

- présence de particules submicroniques sur toute la gamme 100 nm – 1000 nm,
- présence de particules en entrée de gamme ultrafine ( ≈ 100 nm),
- domination des éléments Silicium et Oxygène pour les gammes submicronique et supermicronique.

# ETUDE EXPERIMENTALE ET NUMERIQUE DU DEPOT DES PARTICULES DANS UNE ENCEINTE EN FONCTION DES STRATEGIES DE VENTILATION.

J. Bouilly\*, K. Limam, C. Béghein, F. Allard

LEPTAB, Université de La Rochelle, Av. M. Crépeau, 17 042 La Rochelle cedex 01, France  
jbouilly@univ-lr.fr

## TITLE

Experimental and numerical study on indoor particle deposition according to ventilation strategies.

## ABSTRACT

A cubic experimental chamber with 2.5m of sides was designed to measure the impact of the ventilation on the indoor particle concentration. Particles of 0.3 – 15 micrometer aerodynamic diameter were used. Two ventilation parameters were studied: the ventilation rate (0.5 and 1.0 ach) and the inlet and outlet locations.

Results show that for particles lower than 5µm diameter, deposition depends both on the airflow path within the room and on the strength of the ventilation. The effect of the inlet and outlet locations is less notable for coarse particles. Nevertheless, this parameter has to be taken into account to predict particle indoor air quality.

In this way, a numerical model of particle dispersion was developed. The program can calculate instantaneous distributions of air velocity, using the large eddy simulations (LES) method. Trajectories of particles are obtained by implementing a Lagrangian particle model into the LES program. A comparison of numerical and experimental results is given for 5 and 10 micrometer particles.

Particle behavior is well predicted and this model seems to be adapted to predict indoor particle air quality in buildings. More confrontations are needed for a better validation of the numerical model, essentially with small particles.

## RESUME

Cette étude présente des mesures expérimentales de dépôt de particules (0,3 – 15 micromètres de diamètre) dans une enceinte ventilée, de 2,5m de côté. Deux paramètres de ventilation ont été étudiés : le taux de renouvellement d'air (0,5 et 1,0 vol.h<sup>-1</sup>) et la position des entrées et sorties d'air. Les résultats montrent que pour les plus grosses particules (diamètre supérieur à 5 micromètres), l'effet de la stratégie de ventilation est négligeable, alors que pour les particules plus petites, le dépôt dépend du renouvellement d'air et de la stratégie de ventilation.

Ainsi, pour prendre en compte ce dernier paramètre, nous avons développé un modèle numérique de dispersion des particules dans les ambiances. Les vitesses instantanées de l'écoulement d'air sont calculées en utilisant la méthode de simulation des grandes échelles (LES) et les trajectoires des particules sont obtenues à l'aide d'une méthode Lagrangienne. L'influence de la stratégie de ventilation sur le dépôt des particules est également démontrée. De plus, nous proposons une comparaison avec les résultats expérimentaux pour deux tailles de particules (5 et 10 micromètres de diamètre aérodynamique). Ce modèle numérique semble adapté pour la prédiction de la qualité particulaire de l'air dans les bâtiments, cependant d'autres confrontations sont nécessaires, notamment pour les petites particules.

## 1. INTRODUCTION

Depuis quelques années, la qualité de l'air est devenue un sujet de préoccupation majeure. Du fait que les personnes passent la plupart de leur temps à l'intérieur des bâtiments, il est nécessaire de prédire les niveaux de pollution auxquels ils sont exposés dans le but de limiter les risques liés à la santé. Les informations sur la concentration des polluants peuvent être utilisées pour une meilleure conception des systèmes de ventilation et améliorer ainsi la qualité de l'air intérieur. Les polluants auxquels nous nous intéressons ici sont les particules solides (poussière atmosphérique).

Le dépôt des particules sur les surfaces ainsi qu'une stratégie de ventilation adaptée permettent de réduire substantiellement la concentration particulaire de l'air intérieur. Afin de prédire la pollution particulaire dans les bâtiments, il est courant d'utiliser un paramètre dénommé constante de dépôt globale. On se reportera aux travaux de Hinds (1982), Wallace (1996) ou plus récemment Lai (2002a) pour une synthèse des valeurs expérimentales de ce paramètre. Généralement, ces études montrent que pour une même taille de particules, cette constante de dépôt globale est très variable, du fait de l'influence de divers paramètres.

Nous pouvons citer par exemple l'effet de la taille des enceintes expérimentales (Nazaroff et al., 1993), la rugosité des surfaces (Abadie et al., 2001), l'écoulement d'air (Nomura et al., 1997; Jamriska et al., 2000; Lai et al., 2002b), ou bien la présence de mobilier (Thatcher et al., 2002).

Dans un premier temps, à l'aide de mesures de concentration particulaires, dans une enceinte expérimentale, ventilée mécaniquement, nous avons étudié l'influence de la stratégie de ventilation sur la constante de dépôt globale. Les résultats expérimentaux ont montré que ce paramètre influençait la valeur de la constante de dépôt globale.

Dans un second temps, nous avons choisi de développer un modèle numérique de dispersion des particules dans l'ambiance. En effet, en calculant les trajectoires d'un grand nombre de particules, on peut simuler le transport et le dépôt des particules dans une enceinte et étudier ainsi la variation de concentration particulaire en fonction du temps. Ceci nous permet d'obtenir une valeur de la constante de dépôt globale pour chaque cas testé. Finalement, à l'aide de cet outil numérique, nous montrons l'influence de la stratégie de ventilation sur cette constante de dépôt globale.

## 2. EXPERIMENTATIONS

### 2.1 Modélisation

Pour évaluer l'évolution de la concentration particulaire dans une pièce, en condition isotherme, l'équation de bilan massique du polluant s'écrit en fonction de l'air pollué entrant, du dépôt des particules sur les surfaces et de l'air pollué extrait. Si l'on considère que la pièce est correctement ventilée, que la concentration en polluant est homogène et qu'il n'y a pas de source de pollution interne, la variation de concentration en fonction du temps est donnée par la relation suivante :

$$\frac{dC_i(t)}{dt} = \lambda_v C_o(t) - \lambda_v C_i(t) - \lambda_{de} C_i(t) \quad (1)$$

Où  $t$  est le temps (h),  $C_i(t)$  est la concentration particulaire intérieure (nombre de particules.m<sup>-3</sup>) au temps  $t$ ,  $\lambda_v$  est le taux de renouvellement d'air (h<sup>-1</sup>),  $C_o(t)$  est la concentration particulaire extérieure au temps  $t$ , et  $\lambda_{de}$  est la constante de dépôt des particules (h<sup>-1</sup>).

Dans le cas où la concentration particulaire pénétrante  $C_o$  est négligeable (en comparaison avec la concentration particulaire intérieure) ou bien lorsque le système de ventilation est équipé d'un filtre à très haute efficacité, l'infiltration des particules provenant de l'extérieur peut être négligée. La solution analytique de l'Equation 1 devient:

$$C_i(t) = C_i(0) \exp(-\lambda_g \times t) \quad (2)$$

Où  $C_i(0)$  est la concentration particulaire intérieure au temps initial et  $\lambda_g = \lambda_v + \lambda_{de}$  représente la constante de dépôt globale (h<sup>-1</sup>).

## 2.2 Description de l'expérimentation

Les mesures de concentration particulaire ont été réalisées dans une enceinte cubique de 2,5m de côté, dont les parois sont en bois. La Figure 1 représente le schéma de principe de l'expérimentation. Les mesures sont effectuées en condition isotherme ( $20^{\circ}\text{C} \pm 2^{\circ}\text{C}$ ), de même que l'humidité relative est restée sensiblement constante ( $50\% \pm 10\%$ ) lors de la campagne expérimentale.

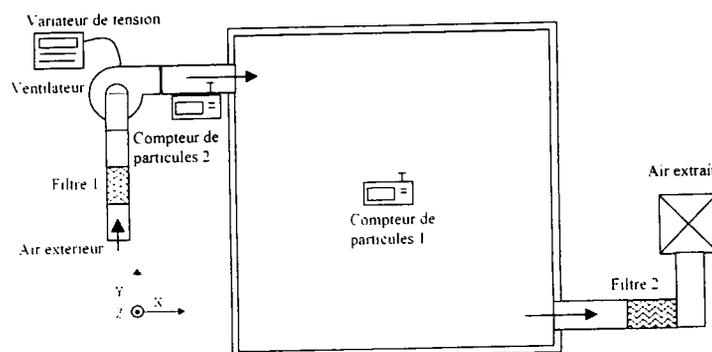


Figure 1. Schéma de principe de l'expérimentation (plan médian)

La pièce est équipée d'un système de ventilation mécanique couplé à un variateur de tension, ce qui nous permet d'ajuster le débit d'air aux valeurs désirées (correspondant à un taux de renouvellement d'air de 0,5 ou  $1,0 \text{ vol.h}^{-1}$ ). Des filtres à très haute efficacité ont été placés en amont et en aval de la cellule de manière à limiter la pénétration des particules contenues dans l'air extérieur ainsi que le rejet vers l'extérieur des particules introduites dans la cellule. Les positions des entrées et des sorties d'air sont modulables selon la stratégie de ventilation désirée (Cf. Tableau 1). Les mesures de concentration particulaire sont réalisées à l'aide de compteurs de particules optiques, ceci pour des tailles de particules variant de  $0,3$  à  $15\mu\text{m}$  de diamètre. Le compteur placé au niveau de la bouche d'injection permet de contrôler si la concentration de particules pénétrant dans la pièce est négligeable. Le compteur placé au centre de la pièce mesure la décroissance de la concentration des particules injectées.

Tableau 1. Position des bouches d'injection et d'extraction selon la stratégie de ventilation

	Configuration 1 "Soufflage Bas - Extraction Haute"	Configuration 2 "Soufflage Haut - Extraction Basse"	Configuration 3 "Soufflage Haut - Extraction Haute"
Position de la bouche d'injection (m)	$X = 0 ; Y = 0.30 ; Z = 1.25$	$X = 0 ; Y = 2.2 ; Z = 1.25$	$X = 0 ; Y = 2.2 ; Z = 1.25$
Position de la bouche d'extraction (m)	$X = 2.5 ; Y = 2.2 ; Z = 1.25$	$X = 2.5 ; Y = 0.30 ; Z = 1.25$	$X = 2.5 ; Y = 2.2 ; Z = 1.25$

On fixe le débit de ventilation à la valeur désirée. Les compteurs de particules sont mis en fonctionnement. La Figure 2 représente typiquement l'évolution de la concentration des particules en fonction de leur taille et du temps. La concentration des particules est mesurée chaque minute, ceci pendant une durée approximative de 2 heures pour chaque cas testé. Les valeurs durant les 15 premières minutes correspondent à la pollution particulaire dite "de fond". Au temps  $t=15\text{min}$ , les particules sont injectées de manière répartie dans l'ensemble du volume. La décroissance linéaire (en échelle logarithmique) correspond en fait à la décroissance exponentielle de la concentration particulaire en fonction du temps. La constante de dépôt globale  $\lambda_g$  (Cf. Equation 2) est déduite par régression sur cette portion de courbe. Le coefficient de corrélation  $r^2$  obtenu est à chaque fois supérieur à 0,95. Toutes les expérimentations ont été reproduites au moins 5 fois.

Nous pouvons noter qu'afin de pouvoir utiliser un modèle mono-zone, il faut vérifier que la concentration particulaire à l'intérieur de la pièce doit être homogène. Pour cela, nous avons réalisé des mesures préliminaires de concentration à l'aide des deux compteurs de particules dans l'enceinte, ceci en différents points. L'erreur relative de concentration maximale observée entre les deux compteurs, dans l'enceinte était de 9%. Ceci implique donc que, dans notre cas, nous pouvons utiliser le modèle proposé précédemment (Cf. Equation 1) afin de déterminer la constante de dépôt globale  $\lambda_g$ .

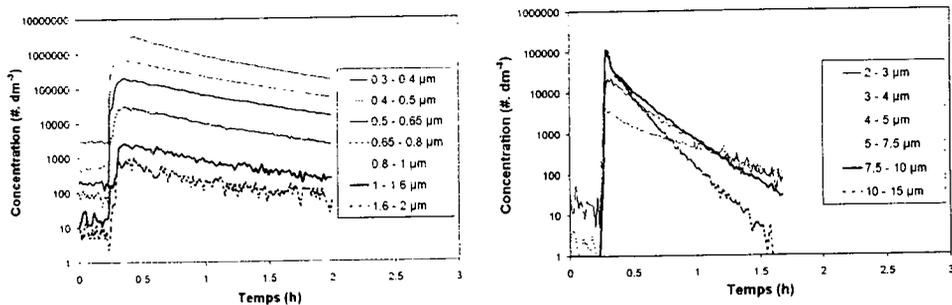


Figure 2. Concentration pour diverses tailles de particules, lors d'une expérimentation.

### 2.3 Résultats expérimentaux

La Figure 3 représente l'évolution de la constante de dépôt globale en fonction de la taille des particules, ceci pour chaque stratégie de ventilation (gauche:  $0,5 \text{ vol.h}^{-1}$  ; droite:  $1,0 \text{ vol.h}^{-1}$ ). Les barres d'erreur correspondent aux déviations observées lors des 5 mesures effectuées pour chacun des différents cas testés. Pour les deux taux de renouvellement d'air, la configuration "Haut-Haut" donne les valeurs de  $\lambda_g$  les plus faibles alors que la configuration "Haut-Bas" donne les valeurs les plus élevées. Pour les particules supérieures à  $5 \mu\text{m}$  de diamètre, l'effet de la stratégie de ventilation devient négligeable sur la constante de dépôt globale. En revanche pour les particules plus fines, on peut noter une variation de la constante de dépôt globale de l'ordre de 25% (pour  $0,5 \text{ vol.h}^{-1}$ ).

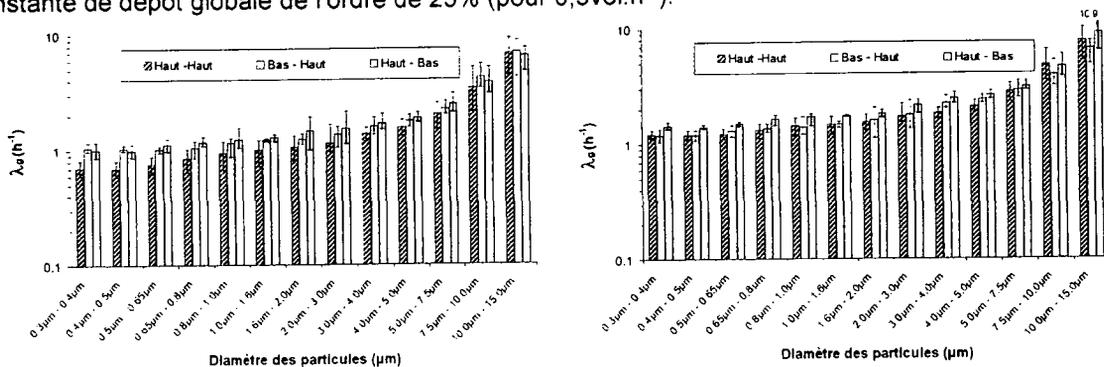


Figure 3. Influence de la stratégie de ventilation sur  $\lambda_g$  (gauche:  $0,5 \text{ vol.h}^{-1}$  ; droite:  $1,0 \text{ vol.h}^{-1}$ ).

### 3. MODELISATION NUMERIQUE

Afin de prendre en compte l'effet de la stratégie de ventilation, nous avons utilisé un modèle lagrangien pour les particules. Nous considérons que ces dernières sont suffisamment diluées et n'influencent donc pas l'écoulement fluide. De plus, elles ne peuvent pas coaguler les unes aux autres, et on considèrera ici qu'elles adhèrent aux parois qu'elles rencontrent. Nous avons choisi d'étudier des particules de  $5 \mu\text{m}$  et de  $10 \mu\text{m}$  de diamètre. Un bilan des forces agissant sur une particule dans un écoulement fluide permet d'obtenir l'équation du mouvement de la particule :

$$\frac{\pi}{6} d_p^3 \rho_p \frac{dU_i}{dt} = C_d \frac{\pi}{8} \rho d_p^2 |u_i - U_i| (u_i - U_i) + F_e \quad (3)$$

Dans cette équation,  $d_p$  et  $\rho_p$  sont le diamètre et la densité de la particule,  $\rho$  est la masse volumique du fluide,  $C_d$  est le coefficient de traînée de la particule dans le fluide, il dépend du régime d'écoulement autour de la particule (Hinds, 1982),  $U_i$  et  $u_i$  sont les vitesses instantanées de la particule et du fluide suivant la direction  $x_i$ .  $F_e$  désigne l'ensemble des forces extérieures qui s'exercent sur la particule (force de gravité pour cette étude). Cette équation est résolue à chaque pas de temps pour chaque particule et permet d'obtenir les composantes de vitesses de la particule à chaque instant. A partir des composantes  $U_i$ , on déduit la position  $x_i$  de la particule :

$$\frac{dx_i}{dt} = U_i \quad (4)$$

La résolution de l'équation du mouvement de la particule nécessite la connaissance à chaque pas de temps des vitesses instantanées  $u_i$  du fluide. Nous avons pour cela choisi d'utiliser la simulation des grandes échelles. Cette technique consiste à appliquer un filtre aux équations de Navier-Stokes et de la continuité, et à calculer l'évolution dans le temps des vitesses et pressions pour les structures dont la taille est supérieure à celle du filtre. L'influence des grosses structures sur les plus petites structures est représentée par l'adjonction d'un modèle spécifique. Nous avons validé le couplage modèle de Smagorinsky (1963) – modèle de particules en confrontant nos résultats numériques à l'expérimentation de Snyder et Lumley (1971) qui ont calculé des dispersions transversales de particules injectées dans un écoulement turbulent de grille. Pour le cas étudié ici, c'est le modèle dynamique développé par Jiang et Chen (2001) qui a été utilisé plutôt que celui de Smagorinsky car l'écoulement dans une pièce ventilée n'est pas homogène.

A un instant initial, un grand nombre de particules est injecté aléatoirement dans l'ensemble du volume de la pièce (1000 particules). Des calculs statistiques sont effectués à la fin de chaque pas de temps afin de comptabiliser le pourcentage de particules qui restent dans l'écoulement, qui se déposent sur chaque surface, qui sont évacuées par la reprise (bouche d'extraction). A partir de la décroissance du pourcentage de particules dans la pièce, nous pouvons déterminer la valeur de la constante de dépôt globale  $\lambda_g$  correspondante à la stratégie de ventilation simulée. En effet, la répartition des particules reste homogène durant la simulation quelque soit la stratégie de ventilation simulée, ce qui nous permet d'utiliser le modèle mono-zone décrit par l'Equation 1 et de déterminer la constante de dépôt globale.

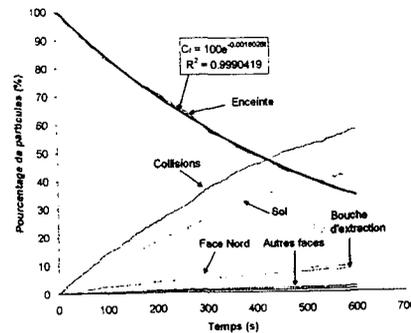


Figure 4. Exemple de répartition des particules dans l'enceinte (cas HB 1vol.h<sup>-1</sup>)

Par exemple, pour le cas de la Figure 4, cette constante est égale à 0,0018023s<sup>-1</sup> soit  $\lambda_g=6,49h^{-1}$ . Nous avons remarqué que les valeurs des constantes de dépôt différaient d'une configuration à l'autre (Cf. Figure 5, valeurs numériques), ce qui tend à prouver que non seulement le régime d'écoulement mais également le champ de vitesses influence la vitesse de dépôt des particules dans une enceinte. La plus faible constante de dépôt globale est 1,61h<sup>-1</sup>, elle correspond à la configuration "Haut-Haut", 0,5vol.h<sup>-1</sup>. La plus forte valeur (6,49h<sup>-1</sup>) a été obtenue pour la configuration "Haut-Bas", 1,0vol.h<sup>-1</sup>. On constate également que pour les particules de 5 $\mu$ m et de 10 $\mu$ m, c'est la configuration "Haut-Bas", 1,0vol.h<sup>-1</sup> qui donne les valeurs de constantes de dépôt les plus élevées.

#### 4. DISCUSSION

La Figure 5 représente la comparaison entre les valeurs de constantes de dépôt globales obtenues numériquement et expérimentalement, (A gauche: 0,5vol.h<sup>-1</sup>; A droite: 1,0vol.h<sup>-1</sup>).

Les valeurs obtenues à l'aide du code de calcul sont en accord avec les expérimentations. Pour un taux de renouvellement d'air de 0,5vol.h<sup>-1</sup>, nous observons que pour les particules de 10 $\mu$ m, il n'existe presque pas de différence entre les trois configurations ("Haut-Bas", "Bas-Haut", "Haut-Haut"), les points sont confondus sur le graphique. De plus, pour les particules de 5 $\mu$ m de diamètre, le code de calcul prédit bien une constante de dépôt globale supérieure pour la configuration "Haut-Bas" que pour la configuration "Bas-Haut".

Pour un taux de renouvellement d'air de 1,0vol.h<sup>-1</sup>, pour les particules de 5 $\mu$ m de diamètre, on constate un léger écart (environ 10%) entre les valeurs numériques et expérimentales, cependant le code de calcul montre que plus la taille des particules est faible, plus la stratégie de ventilation influence sur la constante de dépôt globale.

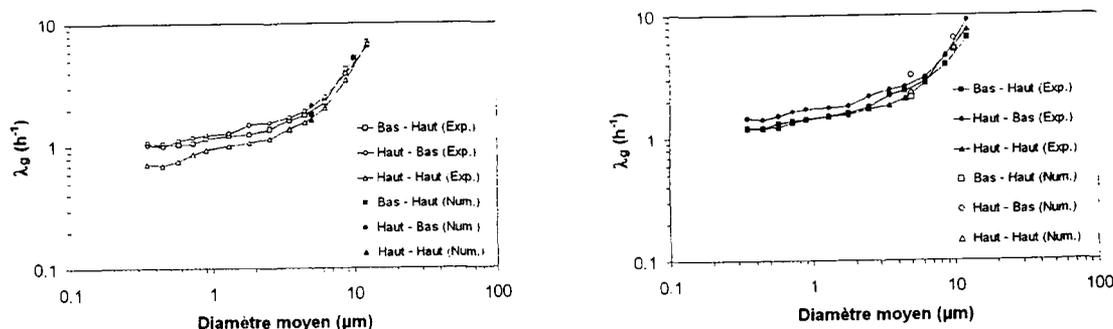


Figure 5. Comparaison entre les valeurs expérimentales et numériques de la constante de dépôt globale (A gauche: 0,5vol.h<sup>-1</sup>; A droite: 1,0vol.h<sup>-1</sup>).

## 5. CONCLUSION

La prédiction du comportement particulaire dans une enceinte ventilée par le code de calcul semble en accord avec les mesures expérimentales pour les particules de 5 $\mu$ m et de 10 $\mu$ m de diamètre. Cette méthode s'avère bien adaptée pour prédire le comportement particulaire dans les ambiances habitables. Au-delà de la prédiction des concentrations particulaires dans l'air intérieur, on peut déterminer avec précision quelles sont les zones de dépôt préférentielles (non présenté dans cette étude). Un autre avantage est qu'il est facile de tester différents scénarii de ventilation et de déterminer quel est celui qui offrira la meilleure qualité particulaire de l'air intérieur (constante de dépôt globale la plus élevée) tout en limitant le taux de renouvellement d'air. Toutefois, nous souhaitons multiplier les confrontations avec des mesures expérimentales pour une validation plus complète du code de calcul, notamment pour les particules dont le diamètre est inférieur à 5 $\mu$ m.

## REMERCIEMENTS.

Ces travaux font partie de la thèse "Étude de l'impact de la pollution particulaire sur la qualité de l'air intérieur en site urbain" co-financée par l'ADEME et la Région Poitou-Charentes. Les calculs ont été effectués sur le calculateur IBM SP du CINES à Montpellier, France.

## REFERENCES

- Abadie M, Limam K, and Allard F. 2001. Indoor particle pollution : effect of wall textures on particle deposition. *Building and Environment*, Vol (36), pp 821-827.
- Hinds W C. 1982. *Aerosols Technology, Properties, Behaviour and Measurement of Airborne Particles*. Wiley-Interscience Publication, New York.
- Jamriska M, Morawska L and Clark B A. 2000. Effect of ventilation and filtration on submicrometer particles in an indoor environment. *Indoor Air*. Vol 10, pp 19-26.
- Jiang, Y., et Chen, Q., 2001, Study of natural ventilation in buildings by large eddy simulation, *J. Wind Eng. Ind. Aerodyn.*, 89 (13):pp.1155-1178.
- Lai A C K. 2002a. Particle deposition indoors: a review. *Indoor Air*. Vol 12, pp211-214.
- Lai A C K, Byrne M A, and Goddard A J H. 2002b. Experimental studies of the effect of rough surfaces and air speed on aerosol deposition in a test chamber. *Aerosol Science and Technology*. Vol 36, pp 973-982.
- Nazaroff W W, Gadgil A J and Weschler C J. 1993. Critique of the use of deposition velocity in modeling indoor air quality. *Modeling Indoor Air Quality and Exposure*. STP 1205, American Society for Testing and Materials. Philadelphia, PA, pp81-104.
- Nomura Y, Hopke P K, Fitzgerald B, and Mesbah B. 1997. Deposition of particles in a chamber as a function of ventilation rate. *Aerosol Science and Technology*, Vol 27,pp 62-72.
- Smagorinsky, J., 1963, General circulation experiments with the primitive equations. I. The basic experiment, *Monthly Weather Review* (91) : pp.99-164.
- Snyder, W.H., and Lumeley, J.L., 1971, Some measurements of particle velocity autocorrelation functions in a turbulent flow, *J. Fluid Mech.* 48 (1) : pp. 41-71.
- Thatcher T L, Lai A C K, Moreno-Jackson R, and al. 2001. Effects of room furnishings and air speed on particle deposition rates indoors. LBNL Report 48414, *Atmospheric Environment*. Vol 36, pp 1811-1819.
- Wallace L A. 1996. Indoor Particles: A Review. *Journal Air Waste Manage. Assoc.* Vol 46, pp 98-126.

# CARACTERISATION D'AEROSOLS GENERES PAR ABLATION LASER DE PEINTURES SUR BETON

M. Géléoc\* (1) et F. Gensdarmes (2)

(1) Commissariat à l'Energie Atomique, Service de Chimie Physique, Laboratoire Interaction Laser-Matière. CEA-Saclay, DEN/DPC/SCP, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, geleoc@cea.fr

(2) Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols. IRSN/DSU/SERAC – BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette cedex.

## TITLE

Characterization of laser-generated aerosols in ablation of paints from concrete surfaces

## ABSTRACT

In the field of nuclear plant decommissioning, we study a surface decontamination process based on laser ablation. This technology allows to remove and store only the thin contaminated layer of a structure rather than to treat the entire structure as a waste. Nevertheless, during laser ablation, gases and particulate matter are released from the target as airborne contaminants. These aerosols can influence the process efficiency either by particles redeposition on the treated surface or by beam attenuation or optical damages to the laser ablation system. The aim of the study is to characterize the aerosols produced by laser ablation of paints from concrete surfaces in order to provide data for the optimization and the safety assessment of the process. The experimental set-up and the results determining laser fluence and paint type effect on aerosols production in a single shot regime are presented.

## RESUME

Dans le domaine du démantèlement des installations nucléaires, nous étudions un procédé de décontamination de surface basé sur l'ablation laser. Cette technologie permet le décapage et le stockage de la seule couche contaminée plutôt que le traitement de l'ensemble de la structure en tant que déchet. Cependant, durant l'ablation laser, des aérocontaminants sont générés par la cible sous forme de gaz et d'aérosols. Ces aérosols peuvent diminuer l'efficacité du procédé en se redéposant sur la surface traitée, en atténuant le faisceau laser ou en endommageant les composants optiques du système. L'objectif de l'étude est de caractériser les aérosols produits par l'ablation laser de peintures sur béton pour d'une part, améliorer l'efficacité du procédé, d'autre part fournir des données nécessaires à l'analyse de sûreté. Le banc expérimental et les résultats obtenus pour déterminer l'effet de la fluence laser et du type de peinture sur la production des aérosols en régime mono-tir sont présentés.

## INTRODUCTION

Dans le domaine de l'assainissement et du démantèlement des installations nucléaires, nous étudions un procédé de décontamination de surface basé sur l'ablation laser. Cette technologie permet de décontaminer une paroi en la découpant sur une épaisseur contrôlée ce qui permet de limiter le volume de déchets. L'avantage de ce type de technologie est la précision, la rapidité et l'automatisation de l'opération.

Jusqu'à présent, les principaux efforts de recherche et de développement ont porté sur la mise en oeuvre et l'efficacité du procédé d'ablation laser. Cependant, l'utilisation de ce système conduit à l'émission de grandes quantités de particules qui résultent de l'interaction entre le laser et les matériaux attaqués (Lee et Cheng 2004a et 2004b). Ces particules que l'on retrouve sous la forme d'aérosols peuvent engendrer des problèmes d'efficacité du procédé en se déposant sur les composants optiques ou sur les surfaces traitées. L'émission de ces aérosols peut également avoir un impact direct sur la sûreté du procédé vis-à-vis des protections individuelles ou collectives à mettre en oeuvre. En effet, l'opérateur doit être protégé de l'inhalation et de la toxicité des particules ; tandis que sur le chantier, les moyens de confinement et d'épuration doivent être efficaces. Une meilleure connaissance des caractéristiques des aérosols émis lors d'opérations d'ablation laser permettra de mieux évaluer la sûreté du procédé, d'optimiser les moyens de confinement et d'épuration à mettre en oeuvre et d'optimiser le procédé d'ablation.

L'objectif de cette étude est de caractériser qualitativement et quantitativement les aérosols produits par ablation laser de peintures sur béton en fonction de différents paramètres opératoires. Nous présentons le banc expérimental et les résultats obtenus pour déterminer l'effet de la fluence laser et du type de peinture sur la production des aérosols en régime mono-tir.

## DESCRIPTION DU MONTAGE ET DES CONDITIONS D'EXPERIMENTALES

Le banc "Basse Cadence" (Figure 1) est basé sur l'utilisation d'un laser Nd:YAG ("Brilliant" Quantel) de type Q-switch émettant à 1064, 532 ou 266 nm, selon le mode de fonctionnement choisi, respectivement fondamental, doublé ou quadruplé. Pour cette étude, le laser fonctionne en mode doublé.

L'énergie de l'impulsion est de 180 mJ à 532 nm en sortie de laser, la durée d'impulsion (largeur à mi-hauteur) est de  $4 \pm 1$  ns et la cadence nominale de travail est de 10 Hz, mais le laser peut également être utilisé en régime mono-tir, comme c'est le cas dans cette étude. En champ proche, le faisceau présente un profil gaussien de diamètre 5 mm et une divergence de 5 mrad. Une mise en forme du faisceau et une homogénéisation du profil d'intensité sont effectuées par diaphragmation. Un système afocal combinant deux lentilles convergentes est utilisé pour réduire les dimensions du faisceau et transporter l'image du diaphragme sur l'échantillon.

Nous obtenons ainsi sur l'échantillon un faisceau carré homogène de 700  $\mu\text{m}$  de côté ; un profil d'intensité uniforme à bords raides facilite la mesure en temps différé des tailles de cratères sur un analyseur de surface 3D, ainsi que la connaissance précise de la fluence laser déposée. La puissance du laser est contrôlée avant chaque mesure en interposant sur le faisceau incident un calorimètre étalonné. La fluence laser sur l'échantillon varie grâce à un système d'atténuation du faisceau comprenant une lame à retard  $\lambda/2$  et un cube polariseur.

Tableau 1 : Caractéristiques énergétiques du faisceau sur l'échantillon pour les fluences étudiées.

Puissance Laser (W)	Energie Impulsion (mJ)	Fluence Laser ( $\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$ )
0,24	24,5	5,0
0,10	9,8	2,0
0,06	2,9	0,6

L'efficacité d'ablation, définie comme la masse ablatée par quantité d'énergie délivrée à la surface, dépend principalement de la fluence, de la longueur d'onde et de la durée d'impulsion du laser. Les valeurs de fluences étudiées sont choisies d'après les courbes de profondeur ablatée par tir en fonction de la fluence, obtenues pour la peinture époxy étudiée soit 0,6, 2 et 5  $\text{J} \cdot \text{cm}^{-2}$  (Brygo *et al.*, 2004). Ces valeurs correspondent respectivement à la fluence au voisinage du seuil d'efficacité d'ablation, à la fluence au maximum d'efficacité d'ablation et à une fluence de saturation d'efficacité d'ablation. Dans ces conditions expérimentales, un plasma laser dont l'intensité est une fonction croissante de la fluence est créé au niveau de l'échantillon lors de chaque tir.

Le profil spatial du faisceau sur l'échantillon est contrôlé sur une voie de prélèvement par une caméra CCD reliée à un système d'acquisition et d'analyse de faisceau. La durée de l'impulsion laser est contrôlée via la détection d'une fuite du faisceau à travers un miroir par une photodiode rapide reliée à un oscilloscope de bande passante 500 MHz.

Les échantillons étudiés, fabriqués au laboratoire, sont constitués d'une couche de peinture grise de type caoutchouc chloré ou résine époxy, de quelques dizaines de micromètres d'épaisseur, sur des cubes de béton d'un centimètre cube. Ces peintures sont largement utilisées pour protéger les surfaces en béton de la corrosion du fait de leur excellente résistance aux produits chimiques et à l'eau, notamment dans les installations nucléaires. Lors d'un tir laser unique, la peinture est ablatée sans que le béton soit atteint.

L'échantillon cible est placé dans une cellule de 100 cm<sup>3</sup>, ventilée par de l'air atmosphérique. Elle est dotée de hublots de CaF<sub>2</sub> pour le passage du faisceau. Les aérosols produits par l'ablation laser de la peinture sont échantillonnés directement à la sortie de la cellule et mesurés avec un impacteur électrique basse pression (ELPI) en temps quasi réel (1Hz). Pour cette étude, l'ELPI est équipé d'un étage de filtration à détection électrique et la granulométrie est effectuée en diamètre aérodynamique dans une gamme comprise entre 7 nm et 10 µm (Moisio *et al.*, 2003). Pour éviter un phénomène de saturation de l'ELPI dû à la forte concentration des aérosols, un système de dilution est connecté à l'ELPI. En conséquence, la ventilation de la cellule qui contient la cible est pilotée par le débit de prélèvement du système de dilution qui est égal à 5 l.min<sup>-1</sup> pour l'ensemble des expériences. Pour ce débit, le facteur de dilution des aérosols est égal à 9,2 et l'ensemble des résultats présentés prend en compte ce facteur.

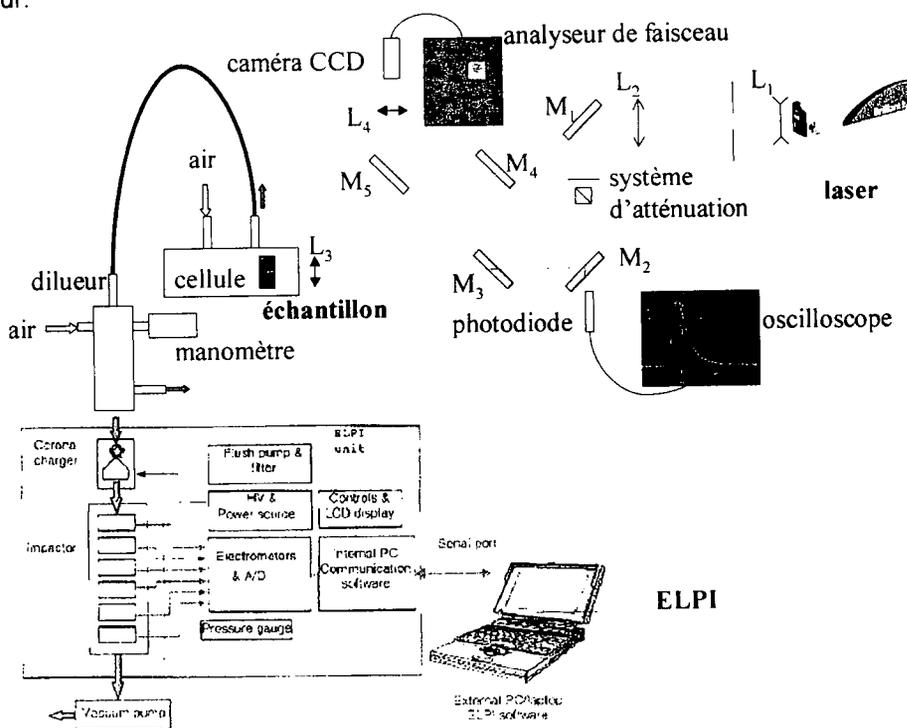


Figure 1 - Schéma général du banc expérimental.

## RESULTATS EXPERIMENTAUX

Pour illustrer l'émission fugace de l'aérosol, la figure 2 présente des mesures de concentration obtenues lors d'un tir laser sur une peinture à base de résine époxy. Les résultats sont obtenus pour trois tirs distincts avec trois fluences différentes égales à 0,6, 2 et 5 J.cm<sup>-2</sup>. Ces mesures correspondent à la concentration numérique totale déterminée par l'ELPI dans une gamme de diamètres compris entre 7 nm et 10 µm.

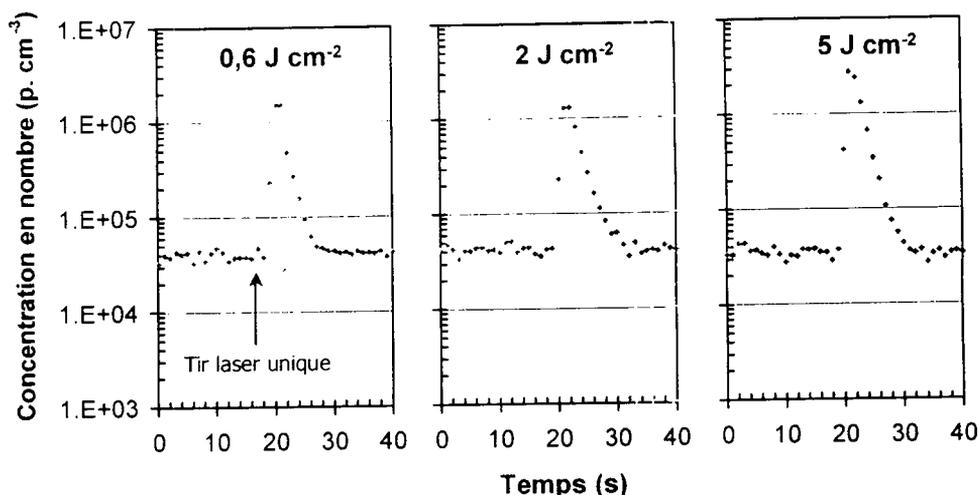


Figure 2 - Concentration totale de l'aérosol mesurée à la sortie de la cellule pour différentes fluences.

Sur cette figure, nous remarquons juste après chaque tir laser une augmentation rapide de la concentration, puis une décroissance exponentielle jusqu'à la concentration stable initiale d'environ  $4 \times 10^4$  p.cm<sup>-3</sup>. Cette concentration stable correspond au bruit de fond dû à la présence de l'aérosol d'origine atmosphérique qui ventile la cellule.

Par ailleurs, l'aérosol étant émis sous la forme d'une bouffée, nous notons une évolution très rapide de la concentration sur environ 10 s. Des évolutions très similaires sont enregistrées pour les différentes fluences étudiées. Signalons que pour une fluence égale à  $5 \text{ J.cm}^{-2}$ , la concentration maximum atteinte est égale à  $2,8 \times 10^6$  p.cm<sup>-3</sup>, elle est légèrement supérieure à celles atteintes pour les autres fluences ( $1,3 \times 10^6$  p.cm<sup>-3</sup> pour  $2 \text{ J.cm}^{-2}$  et  $1,5 \times 10^6$  p.cm<sup>-3</sup> pour  $0,6 \text{ J.cm}^{-2}$ ).

Cependant, ces valeurs de concentration sont insuffisantes pour caractériser précisément l'émission de la bouffée d'aérosol lors du tir. En effet, ces concentrations résultent de la quantité totale de particules émises mais également du volume et du débit de ventilation de la cellule qui contient la cible. En conséquence, il paraît judicieux de déterminer la quantité totale de particules émises à partir de l'évolution de la concentration. Pour cela, nous calculons pour chaque mesure de bouffée l'intégrale de la concentration de l'aérosol sur le volume échantillonné par le système pendant la bouffée. Pour faire ce calcul, nous soustrayons la concentration correspondant au bruit de fond dû à la présence de l'aérosol d'origine atmosphérique dans la cellule.

L'ensemble des résultats ainsi obtenus pour les deux peintures et les trois fluences étudiées est synthétisé sur la figure 3. Pour chaque couple de paramètres peinture-fluence, nous réalisons entre 3 et 5 tirs.

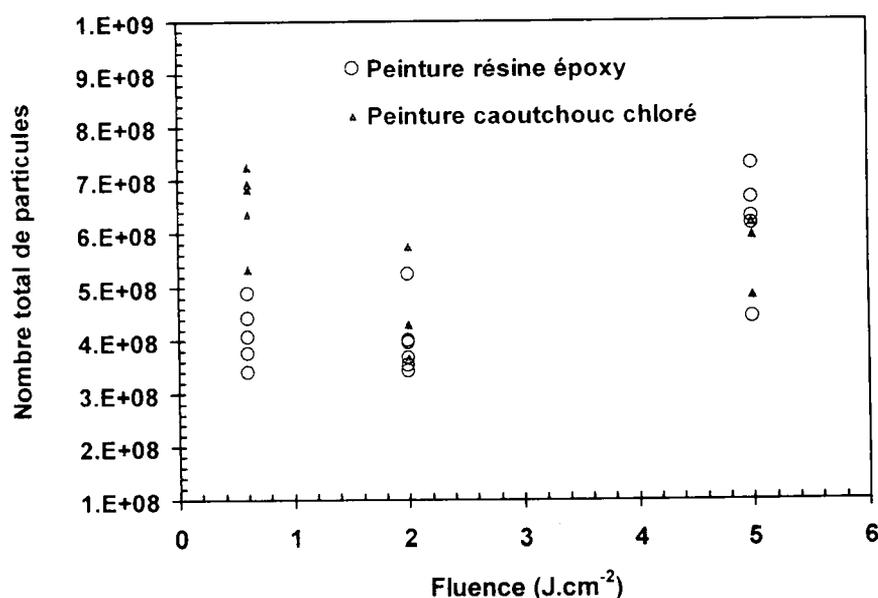


Figure 3 - Nombre total de particules échantillonnées en fonction de la fluence du tir.

Sur la figure 3, nous remarquons que le nombre de particules émises dans l'ensemble des cas est compris entre  $3 \times 10^8$  et  $8 \times 10^8$ . Les résultats obtenus pour un couple peinture-fluence sont assez bien reproductibles, les dispersions observées peuvent être dues à des défauts d'application de la peinture sur les échantillons en béton. Compte tenu des faibles différences observées et de la dispersion des résultats, il est difficile de déterminer un effet de la fluence sur le nombre total de particules produites.

La granulométrie des particules émises lors du tir d'ablation a été déterminée à l'aide de l'ELPI en calculant la granulométrie moyenne sur la totalité de la mesure de la bouffée d'aérosol. Les résultats obtenus pour les différentes peintures et les différentes fluences sont semblables, sauf pour la fraction mesurée sur le premier canal de l'ELPI et correspondant à des diamètres compris entre 7 et 29 nm.

La figure 4 présente la distribution granulométrique moyenne de l'aérosol obtenue pour un tir d'ablation sur la peinture époxy avec une fluence égale à  $5 \text{ J.cm}^{-2}$ . Les abscisses des points représentés sur cette figure correspondent aux diamètres caractéristiques des milieux de chaque canaux de mesure de l'ELPI.

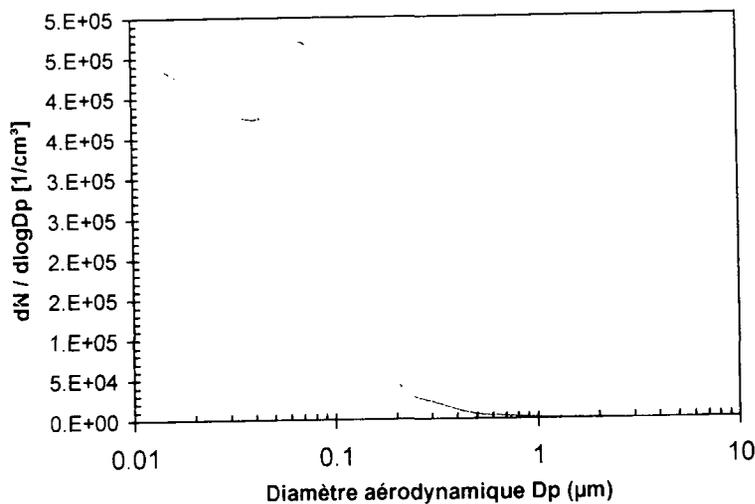


Figure 4 - Distribution granulométrique moyenne de l'aérosol émis lors d'un tir.

La figure 4 montre que l'aérosol est essentiellement composé de particules de diamètres inférieurs à  $0,3 \mu\text{m}$ . Le diamètre médian en nombre de cette distribution est égal à 29 nm. L'écart-type géométrique qui caractérise la dispersion des particules autour du diamètre médian ne peut pas être déterminé avec fiabilité car l'ELPI dispose d'un seul canal de mesure en-dessous de 29 nm. En conséquence, il n'est pas possible de déterminer les diamètres correspondant aux fractions cumulées inférieures à 50 % qui sont nécessaires au calcul fiable de l'écart-type géométrique ou d'un autre paramètre caractérisant la dispersion.

Au cours des différentes expériences d'ablation nous avons remarqué des différences sur les quantités de particules ultra-fines qui était émises en fonction des peintures et des fluences. Pour illustrer ces différences, nous représentons sur la figure 5 la fraction en nombre de particules ayant un diamètre inférieur à 29 nm pour chaque expérience d'ablation. Ces résultats correspondent à la fraction de l'aérosol mesurée par le premier canal de l'ELPI, c'est-à-dire pour des diamètres compris entre 7 et 29 nm.

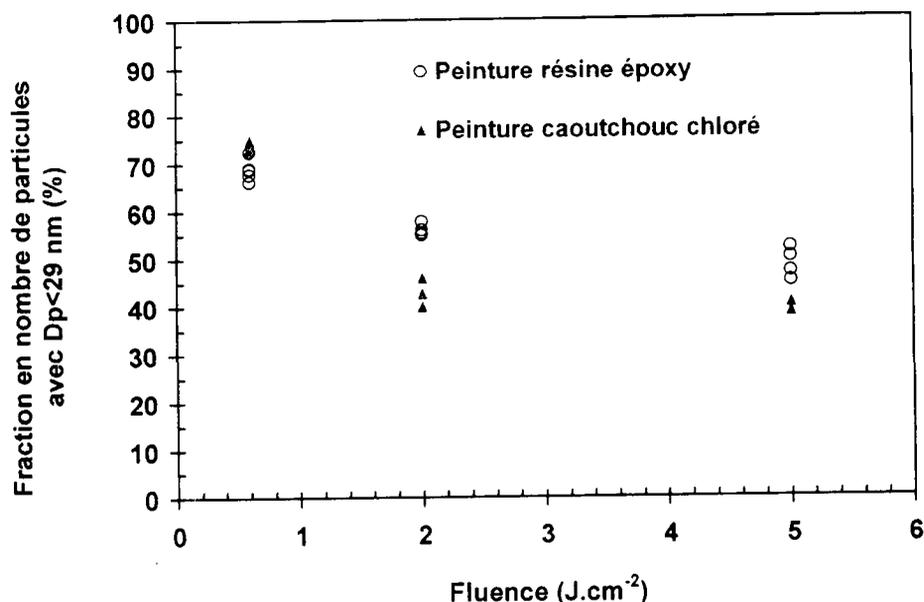


Figure 5 - Fraction de particules de diamètre inférieur à 29 nm en fonction de la fluence du tir.

La figure 5 montre une diminution de la fraction de particules ultra-fines inférieures à 29 nm en fonction de la fluence, ceci pour les deux types de peintures étudiées. Cette fraction est d'environ 70 % pour une fluence égale à  $0,6\text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$  pour les deux types de peinture, tandis qu'elle est égale à environ 55 % à  $2\text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$  pour la peinture époxy et environ 45 % à  $2\text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$  pour la peinture au caoutchouc chloré. Par ailleurs, pour les fluences égales à 2 et  $5\text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$ , la fraction de particules ultra-fines est plus importante pour la peinture époxy.

## CONCLUSION

D'une façon générale, les mesures réalisées montrent les possibilités offertes par l'ELPI pour caractériser les aérosols émis par ablation laser. Ces premiers résultats montrent des effets de la fluence laser, d'une part sur la quantité totale de particules produites, d'autre part sur la fraction de particules ultra-fines surtout au niveau du seuil d'ablation. Une étude devra être menée pour comprendre ces effets sur la formation de l'aérosol. Les perspectives de cette étude sont d'examiner l'utilisation de l'ELPI avec étage de filtration pour la détermination des masses d'aérosols émises en effectuant des comparaisons avec un système de mesure de référence par prélèvement sur filtre, d'étudier l'émission de l'aérosol en fonction de la cadence de tir (mono-tir ou multi-tirs à 10 Hz) et de la longueur d'onde et de corrélérer ces données avec les caractéristiques des cratères formés que nous pouvons déterminer à l'aide d'un profilomètre à 3 dimensions.

## RÉFÉRENCES

- Lee D.W., Cheng M.D. (2004a) Particle generation by laser ablation during surface decontamination. *J. of Aerosol Science*. In Press.
- Lee D.W., Cheng M.D. (2004b) Investigations of nanoparticle generation during surface decontamination by laser ablation at low fluence. *J. of Aerosol Science*. In Press.
- Brygo F. et al. (2004) High repetition rate laser ablation of paint, *Abstracts of the 18<sup>th</sup> international conference in surface modification technologies*.
- Moisio M., Tuomenoja H. et Niemelä V. (2003) Improved data reduction for electrical filter stage in ELPI. *J. of Aerosol Science - Abstracts of the European Aerosol Conference s1029-s1030*.

# **CARACTERISATION DES AEROSOLS POLLUANTS PRODUITS DANS UN AMPLIFICATEUR DE LASER DE PUISSANCE**

F. Gensdarmes (1), G. Basso (1), I. Tovina (2), P Manach (2) et S. Palmier\* (2)

(1) Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols. IRSN/DSU/SERAC – BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette cedex

(2) Commissariat à l'Energie Atomique - DAM/CESTA, Département Lasers de Puissance. BP 2 - 33114 Le Barp

## **TITLE**

Characterization of pollutant aerosols produced in an amplifier of powerful laser.

## **ABSTRACT**

The objective of this study is the characterization of the aerosols present in an amplifier of a powerful laser in order to provide optimization of monitoring and removal of the airborne pollutant and thus to better control the lifespan of the optical components. For that purpose, we determine the size distribution and the concentration of the aerosols produced at the time of the activation of the amplifier. The results show an important production of ultra-fine particles and the appearance of micronic particles during the operation of the ventilation system of the amplifier.

## **RESUME**

Cette étude a pour objectif de caractériser les aérosols présents dans un amplificateur de laser de puissance afin d'optimiser les moyens de surveillance et d'épuration des polluants particuliers et ainsi de mieux contrôler la durée de vie des composant optiques. Pour cela, nous déterminons la granulométrie et la concentration des aérosols produits lors de l'activation de l'amplificateur. Les résultats montrent une production importante de particules ultra-fines et l'apparition de particules microniques lors la mise en route du système de ventilation interne à l'amplificateur.

## INTRODUCTION

Généralement, l'utilisation de lasers nécessite la mise en oeuvre de moyens de protection des systèmes optiques contre les aérosols afin d'optimiser et de préserver leur performance. Une chaîne laser comporte plusieurs parties dont une section amplificatrice composée de plusieurs modules. Ces modules contiennent plusieurs plaques de verre dopé au néodyme qui sont pompées (éclairées) par des lampes flashes et apportent ainsi l'énergie lumineuse nécessaire à l'amplification d'un faisceau laser pilote.

La production d'aérosols polluants dans des cavités d'amplification a été observée depuis les années 80 sur le laser Shiva dédié aux recherches sur la fusion. Dans ces systèmes, les aérosols peuvent se déposer sur les surfaces des plaques lasers et les endommager au cours de tirs successifs. Pour conserver les performances de ces modules d'amplification on cherche généralement à maintenir une atmosphère ultra-propre en particules à l'aide de systèmes de ventilation et d'épuration des particules.

L'objectif de notre étude est de caractériser les aérosols produits dans la Ligne d'Intégration Laser (LIL) du CEA/CESTA, qui est une chaîne prototype du futur Laser Mégajoule (LMJ). Plus particulièrement, nous étudions la pollution particulaire générée dans un module d'amplification lors de son activation par les lampes flashes.

La mesure de ces aérosols est une étape préliminaire nécessaire afin d'identifier les mécanismes de production et de dépôt des particules sur les plaques laser. En parallèle, la connaissance des caractéristiques (granulométrie, concentration) des particules permet d'optimiser les moyens de surveillance et d'épuration de ces aérosols polluants.

## DESCRIPTION DE L'INSTALLATION ET DES CONDITIONS EXPÉRIMENTALES

Nous représentons sur la figure 1 un schéma général de la chaîne laser qui compose la LIL, ainsi que le schéma détaillé d'une cavité d'amplification équipée d'un système de prélèvement et de mesure des aérosols. La chaîne laser est composée d'un système permettant de délivrer un faisceau laser pilote dans une chaîne d'amplification. Le faisceau laser est ensuite transporté, converti en fréquence et focalisé sur une cible. Afin de caractériser l'aérosol qui est produit dans un module d'amplification, nous disposons une sonde de prélèvement à l'intérieur d'une cavité contenant des plaques laser. Signalons que l'ensemble des cavités d'un amplificateur est maintenue en atmosphère ultra-propre à l'aide d'un système de ventilation par de l'azote filtré. En condition normale, le débit d'azote injecté dans l'amplificateur est faible et permet de maintenir l'ensemble des cavités en légère surpression pour éviter la pénétration de polluants extérieurs. En condition d'essai, le débit d'azote est augmenté après l'activation de l'amplificateur et le tir laser afin d'épurer l'aérosol qui est produit.

Afin de caractériser l'aérosol produit dans les cavités plaques des amplificateurs de la LIL, nous utilisons simultanément 3 instruments permettant de déterminer ses caractéristiques sur une large gamme de dimensions et de concentrations. Un Compteur de Noyaux de Condensation (CNC - 3022A) est utilisé pour déterminer la concentration totale de l'aérosol. Cet appareil permet de détecter des particules de diamètre supérieur à 7 nm et de mesurer des concentrations sur une large gamme comprise entre  $10^{-2}$  p.cm<sup>-3</sup> et  $10^7$  p.cm<sup>-3</sup>.

Un impacteur basse pression à détection électrique (ELPI) est utilisé pour mesurer la granulométrie de l'aérosol en quasi temps réel ( $f=0,1$  Hz) sur une gamme de diamètres aérodynamiques compris entre 30 nm et 10  $\mu$ m. Toutefois cet appareil n'est pas adapté à la mesure de faibles concentrations inférieures à 1 p.cm<sup>-3</sup> (Marjamäki *et al.*, 2000) pouvant être rencontrées dans les atmosphères à empoussièremement contrôlé.

Pour mesurer la granulométrie de particules en faibles concentrations, nous utilisons un APS (Aerodynamic Particle Sizer - 3321). Cet appareil permet de détecter et de mesurer individuellement des particules de diamètres aérodynamiques compris entre 0,6  $\mu$ m et 20  $\mu$ m.

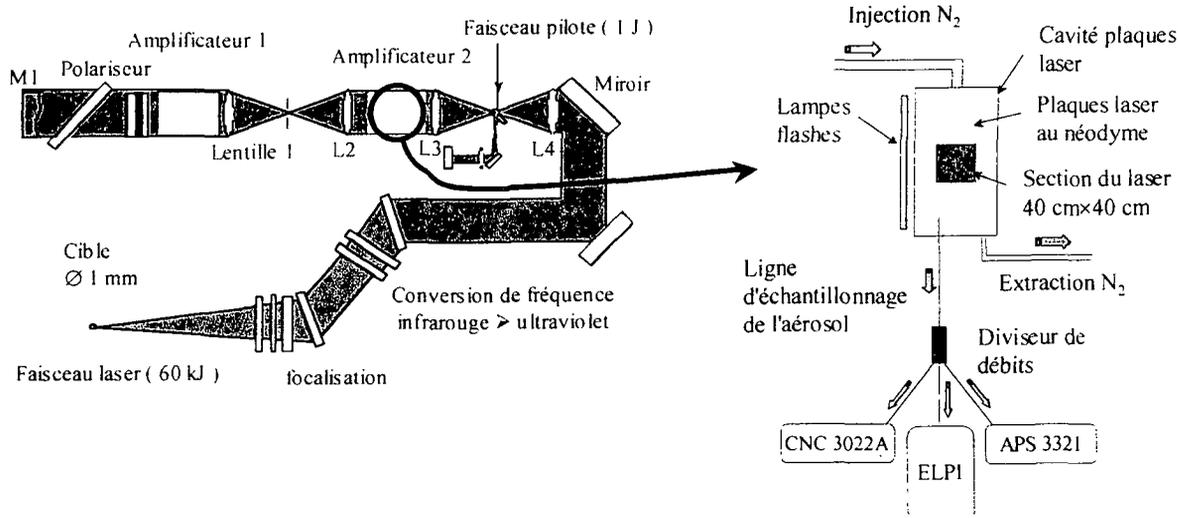


Figure 1 - Schéma général de la chaîne laser (à gauche) et de la cavité d'amplification équipée pour les mesures d'aérosols (à droite).

## RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Sur la figure 2, nous représentons la concentration totale de l'aérosol mesurée avec le CNC lors d'une phase d'activation de l'amplificateur et de fonctionnement du système de ventilation par de l'azote afin d'épurer les particules. Signalons que les concentrations représentées sont des valeurs moyennes sur un temps d'intégration égal à 10 s.

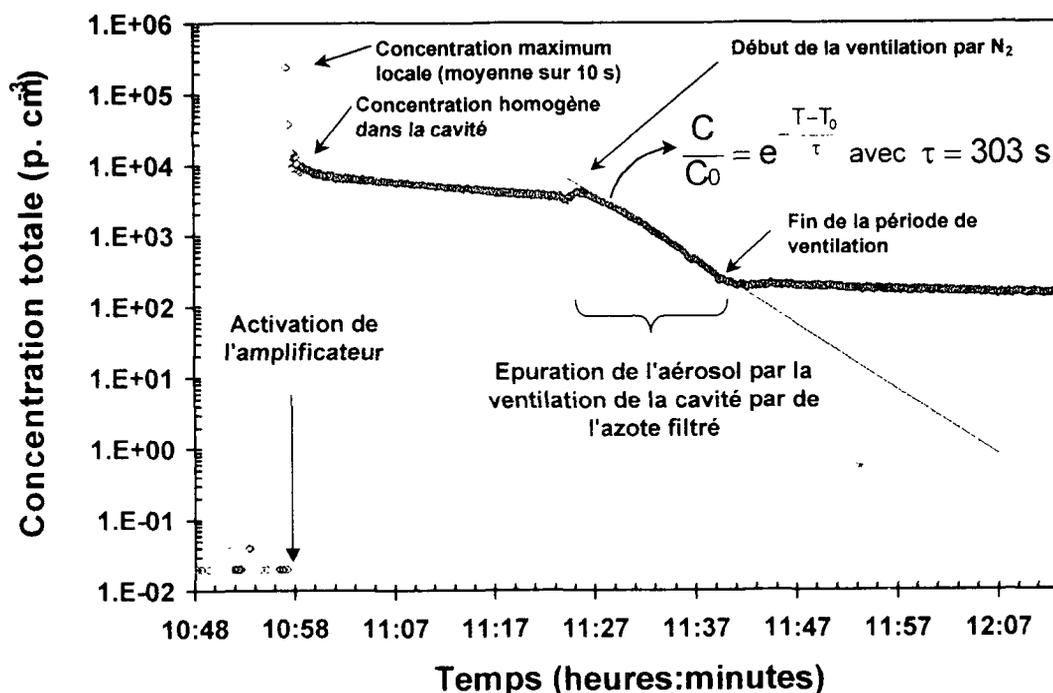


Figure 2 - Mesure de la concentration de l'aérosol dans une cavité plaque lors de l'activation de l'amplificateur.

Sur la figure 2 nous constatons qu'avant l'activation de l'amplificateur, la concentration des particules dans la cavité plaque est très faible : elle est inférieure à  $0,1 \text{ p. cm}^{-3}$ . Dès l'activation de l'amplificateur, la concentration augmente pour atteindre un maximum égal à  $2 \times 10^5 \text{ p. cm}^{-3}$ , puis décroît

vers une valeur plus stable d'environ  $8 \times 10^3$  p.cm<sup>-3</sup>. Nous pouvons supposer que la concentration maximum enregistrée correspond à une valeur locale à proximité de la sonde de prélèvement au moment de l'activation de l'amplificateur. En revanche, la concentration stabilisée après le maximum correspond à une concentration homogène de l'aérosol dans le volume de la cavité. Après ce pic de concentration, nous constatons pendant la phase stabilisée, une légère décroissance de la concentration de l'aérosol. Cette légère décroissance peut être attribuée à deux principaux facteurs. Premièrement, cette décroissance peut être attribuée au faible débit d'azote filtré qui est injecté dans la cavité afin de maintenir celle-ci en surpression par rapport à l'environnement. Deuxièmement, cette décroissance peut résulter du dépôt des particules sur les surfaces de la cavité. Le mécanisme de dépôt majoritaire impliqué dans cette observation peut être la diffusion Brownienne compte tenu de la granulométrie ultra-fine des particules produites (cf. fig. 3).

Par la suite, nous constatons sur la figure 2, vers 11h 27, une décroissance exponentielle de la concentration dans la cavité. Cette décroissance correspond à la mise en service du système de ventilation des cavités par un débit important d'azote filtré afin d'épurer rapidement l'aérosol. Cette décroissance peut être décrite de façon analytique par une loi exponentielle en supposant que la concentration  $C$  dans la cavité est homogène à chaque instant. On obtient ainsi la relation :  $C/C_0 = \exp(-(T-T_0)/\tau)$  où  $C_0$  représente la concentration initiale à l'instant  $T_0$  et  $\tau$  le temps caractéristique d'épuration de l'aérosol. L'ajustement de cette relation sur nos données expérimentales permet de déterminer un temps caractéristique d'épuration égal à 303 s. Vers 11h40, la ventilation des cavités est arrêtée, nous constatons alors qu'il subsiste une concentration supérieure à 100 p.cm<sup>-3</sup>.

Sur la figure 3 nous présentons la distribution granulométrique cumulée en nombre de l'aérosol mesurée par l'ELPI. Cette granulométrie correspond à la distribution moyenne de l'aérosol intégrée sur 6 min entre 11h04 et 11h10 pendant la période de concentration stabilisée (cf. fig. 2).

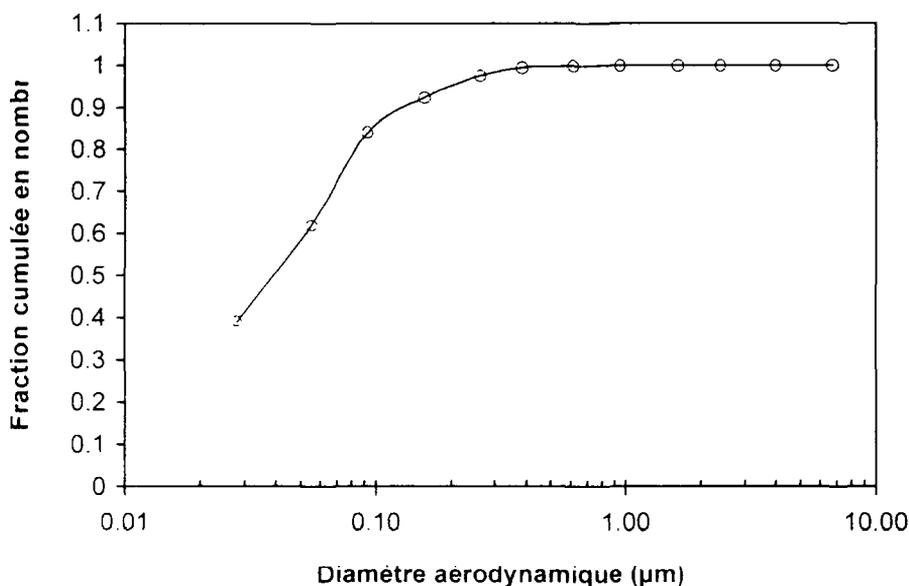


Figure 3 - Distribution granulométrique en nombre de l'aérosol présent dans la cavité après l'activation de l'amplificateur.

La figure 3 montre que l'aérosol est essentiellement composé (95 %) de particules fines de diamètre inférieur à 0,2 μm. Le diamètre médian en nombre de cette distribution est égal à 40 nm. Compte tenu du diamètre médian de cet aérosol nous pouvons supposer que la diffusion Brownienne peut être un mécanisme de dépôt des particules important sur les parois de la cavité.

Afin de déterminer la présence de plus grosses particules qui pourraient être en faibles concentrations devant la proportion de particules fines, nous utilisons l'APS. Sur la figure 4 nous représentons les concentrations de particules mesurées sur différentes classes granulométriques et correspondant aux différents canaux de mesure de l'APS. Ces concentrations correspondent au comptage des particules sur un temps égal à 60 s.

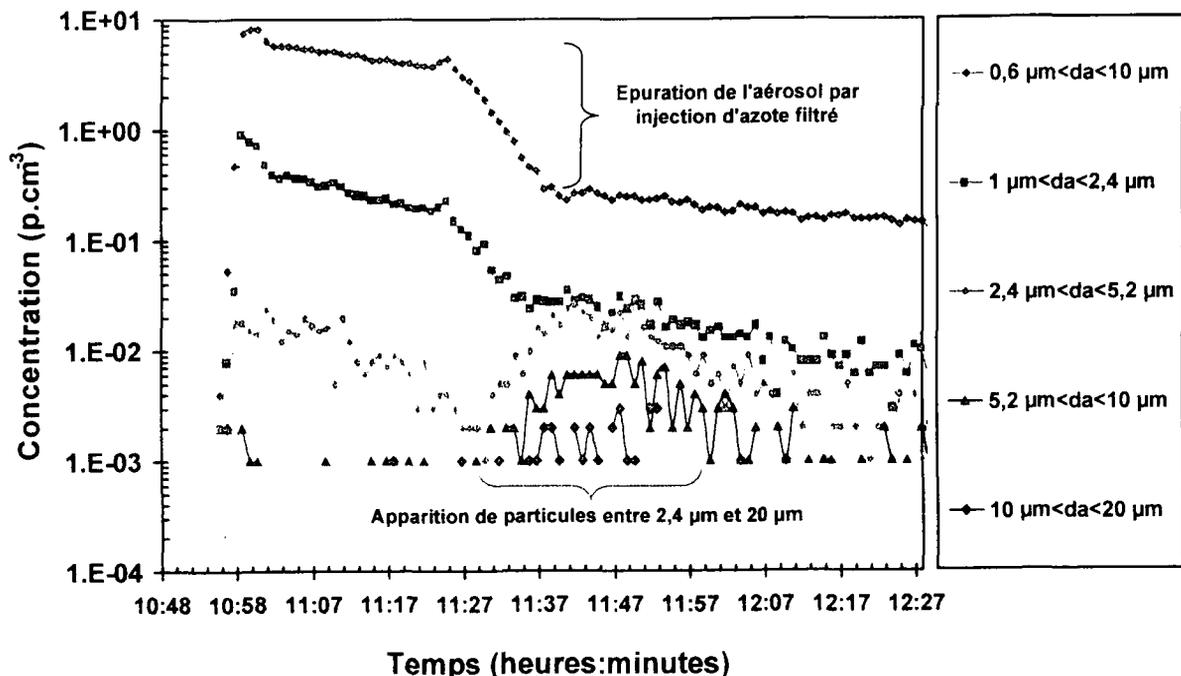


Figure 4 - Mesure des concentrations sur différentes classes granulométriques avec l'APS.

La figure 4 montre clairement la présence de particules de diamètres aérodynamiques ( $da$ ) compris entre  $0,6 \mu\text{m}$  et  $2,4 \mu\text{m}$  avec des concentrations inférieures à  $10 \text{ p.cm}^{-3}$ . L'évolution de la concentration est globalement semblable à celle mesurée par le CNC. Nous observons un maximum de concentration, une phase de stabilisation puis une décroissance due à la ventilation de la cavité. En revanche, nous remarquons la présence de particules de plus gros diamètres compris entre  $2,4 \mu\text{m}$  et  $20 \mu\text{m}$ . L'évolution de la concentration de ces particules n'est pas semblable au reste de l'aérosol. En effet, nous observons une augmentation de la concentration à partir de 11h30 soit quelques minutes après le début de la mise en fonctionnement de la ventilation. Nous pouvons faire plusieurs hypothèses pour expliquer l'origine de cette augmentation : la mise en suspension par l'écoulement d'air provoqué lors de la ventilation, des frottements mécaniques lors de l'action de la ventilation ou simplement la propreté du gaz injecté.

## CONCLUSION

Les résultats obtenus montrent que l'aérosol produit dans les cavités contenant les plaques laser est composé de particules ultrafines en grande concentration, mais également de particules de tailles microniques. Par ailleurs, la mesure de la concentration dans la cavité en quasi temps réel permet de déterminer le taux global d'épuration des particules dû à la ventilation de la cavité par l'azote filtré.

Ces mesures permettent de supposer que l'aérosol produit lors de l'activation de l'amplificateur a plusieurs origines. Les particules ultra-fines peuvent provenir de réactions de photolyse dans le gaz. En revanche, les particules microniques peuvent être produites par des contraintes mécaniques qui sont inhérentes à l'activation de l'amplificateur. Par ailleurs, les mesures montrent l'apparition de particules pendant la phase de ventilation qui est destinée à épurer l'aérosol. L'origine de ces particules peut être due à de la mise en suspension de particules déposées sur les surfaces.

## RÉFÉRENCES

Marjamäki M., Keskinen J., Chen D.A. et Pui D.H.Y (2000) Performance evaluation of the electrical low-pressure impactor (ELPI). *J. Aerosol Science*, **31**, 249-261