

**ASFERA**

*Association Française d'Etudes et de*

*Recherches sur les Aérosols*

UFR Sciences Université Paris XII

Avenue du Général de Gaulle 94010 Créteil

Tél. : 01.45.17.18 37

E-mail : [info@asfera.org](mailto:info@asfera.org) - site : [www.asfera.org](http://www.asfera.org)

***CFA 2005***

**21<sup>EME</sup>**

**CONGRES**

**FRANÇAIS**

**SUR les**

**AEROSOLS**

**PARIS,**

**14-15 DECEMBRE**

**2005**

# 21<sup>EME</sup> CONGRES FRANÇAIS SUR LES AEROSOLS C F A 2005

14 et 15 Décembre 2005

## SOMMAIRE

	<i>Pages</i>
Éditorial par le Dr. D. BOULAUD, Président de l'ASFERA.	1
<b>PHYSIQUE DES AEROSOLS</b>	
<b>Gasphase tailoring of nanoparticle properties by surface reactions</b> A.P. Weber Institute for Mechanical Process Technology, Technical University of Clausthal, D-38678 Clausthal-Zellerfeld	<b>4</b>
<b>Faisabilité du dépôt de couches minces fonctionnalisées par electro-spray en post-décharge à pression atmosphérique</b> L.Tatoulian(1), M.Tatoulian(2), JP Borra(1) (1) Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas, UMR 8578, Ecole Supélec, Plateau de Moulon, 91192 Gif-Sur-Yvette Cedex, France. 2) Laboratoire de Génie des Procédés Plasmas et Traitement de Surfaces, Université Pierre et Marie Curie/ENSCP-11 rue Pierre et Marie Curie F-75231, Paris Cedex, France.	<b>10</b>
<b>Etablissement de la masse volumique de particules primaires et de la fonction d'évolution de la masse volumique effective des agrégats de suie</b> F.X. Ouf * (1,2), C. Coursil (2,3), A. Coppalle (1), J. Vendel(2) et M.E. Weill (1) (1) UMR 6614 CORIA, Université et INSA de Rouen, Avenue de l'université, B.P. 8, 76801 Saint-Etienne du Rouvray, France, (2) 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, (3) Centre d'Etudes et de Recherche en Thermique, Environnement et Système, Université Paris XII, 61 av. du Général De Gaulle, 94010 Créteil Cedex, France	<b>10 bis</b>
<b>Détermination expérimentale de l'indice de réfraction de particules de suie dans l'infrarouge</b> F.X. Ouf * (1,2), A. Coppalle(1), J. Vendel(2), M. E. Weill(1) et J. Yon(1) (1) UMR 6614 CORIA, Université et INSA de Rouen, Avenue de l'université, B.P. 8, 76801 Saint-Etienne du Rouvray, France, (2) 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	<b>16</b>
<b>Etude des résonances morphologiquement dépendantes</b> J. Ducastel*, L. Méès, G. Gréhan, G. Gouesbet LESP, UMR 6614/CORIA, Site Universitaire du Madrillet, Avenue de l'universite BP 12 - 76 801 Saint Etienne du Rouvray Cedex, ducastel@coria.fr	<b>22</b>
<b>Interaction entre une impulsion ultra-brève et un milieu fortement diffusif : comparaisons simulations-expériences</b> C. Calba, L. Méès, C. Rozé et T. Girasole. UMR 6614/CORIA, CNRS-INSA et Université de Rouen, Avenue de l'Université, BP 12, 76 800 Saint Etienne du Rouvray.	<b>29</b>

<b>Détermination de modèles de dépôt d'aérosols dans un réseau de fissures</b>	<b>34</b>
T. Gélain *, T. Lequette, J. Vendel.	
Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Direction de la Sûreté des Usines, des laboratoires, des transports et des déchets, BP68, 91192 Gif-sur-Yvette.	

## *FILTRATION DES AÉROSOLS*

<b>Caractérisation physique d'un agglomération électrostatique de particules à température ambiante</b>	<b>40</b>
A. CHARVET(1), A. BERNIS(1), R. BOICHOT(1)	
(1) Laboratoire d'Optimisation et de Conception en Ingénierie de l'Environnement, ESIGEC, Savoie Technolac, 73370 LE BOURGET DU LAC	
<b>Agglomération de particules de combustion par une matrice fibreuse associée à un champ électrique</b>	<b>47</b>
R. Boichot(1), A. Bernis(1), E. Gonze(1)	
(1) Laboratoire d'Optimisation de la Conception et Ingénierie de l'Environnement, Savoie Technolac, 73370 Le Bourget du Lac	
<b>Evolution de L'Efficacité de collection de fibres isolées en fonction du dépôt</b>	<b>54</b>
S. Schollmeier, J. Meyer, H. Umhauer, G. Kasper	
Institut de Génie des Procédés Mécaniques et de Mécanique, Université Karlsruhe	
<b>Etudes des pertes par évaporation suite à la filtration d'un aérosol volatil par un média fibreux</b>	<b>55</b>
J-C. Appert-Collin* (1), R. Bigaut (1)(2), D. Berner (2), S. Chazelet (1) et D. Thomas (1)	
(1) Laboratoire de Filtration des Aérosols – Laboratoire des Sciences du Génie Chimique, 1, rue Grandville, BP 20451, 54001 Nancy Cedex, (2) INRS, avenue de Bourgogne, BP 27, 54501 Vandoeuvre les Nancy cedex	
<b>Traitement combiné de composés organiques volatils et de particules sur des feutre et tissu de carbone activé</b>	<b>61</b>
C. Lorimier*(1), L. Le Coq(1), A. Subrenat(1) et P. Le Cloirec(1)	
(1) Ecole des Mines de Nantes, GEPEA, UMR CNRS 6144, 4 rue A. Kastler, BP 20 722, 44 307 Nantes cedex 3.	
<b>Utilisation de puissances électriques pulsées pour la filtration de poussières inorganiques</b>	<b>67</b>
A. Silvestre de Ferron*(1), T. Reess(1), J. Paillol(1), L. Pécastaing(1), P. Domens(1), F. Lemort(2)	
(1) Laboratoire de Génie Electrique, HélioParc Pau-Pyrénées, 2 avenue P. Angot, 64000 Pau. (2) CEA Site de Marcoule, Centre de la vallée du Rhône, DEN/DTCD/SCDV/LPIC, BP171, 30200 Bagnol-sur-céze	

## *AEROSOL ET SANTE*

<b>Particules ultra-fines (nanoparticules) et santé au travail</b>	<b>73</b>
O. Witschger	
Laboratoire de Métrologie des Aérosols, Département MP, INRS Centre de Lorraine, Avenue de Bourgogne BP 2754501 Vandoeuvre Cedex	
<b>Etude de l'aérosol de Legionella pneumophila : approche méthodologique</b>	<b>79</b>
T.-L. Ha* (1,2), E. Robine (2) et E. Géhin (1), M. Le-brun(3), M. Merchat (4)	
(1) Centre d'Etudes et de Recherche en Thermique, Environnement et Systèmes, Université Paris XII, 94010 Créteil Cedex,	
(2) Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs, Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, 77420 Champs-sur-Marne	
(3) Electricité de France, Chatou	
(4) Climespace, Paris	
<b>Caractérisation de l'exposition aux aérosols fongiques dans les environnements intérieurs : mesure de l'ergostérol et des mycotoxines aéroportées</b>	<b>84</b>
S. Moularat*, E. Robine, M. Boissier, I. Lacaze	
Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs, Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, 84 avenue Jean Jaurès, 77421 Champs sur marne.	
<b>Etude de l'écoulement de poudres à inhaler dans les voies respiratoires</b>	<b>89</b>
N. Bardin-Monnier*, L. Marchal-Heussler, M. Delarue	
Laboratoire des Sciences du Génie Chimique, 1 rue Grandville, BP 20451 54001 Nancy Cedex	

- Etude de la mise en suspension de particules par chute de poudre** **95**  
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.
- Etude de la mise en suspension de micro-gouttelettes lors de l'impact d'une goutte sur une surface sèche ou sur une flaque de liquide** **101**  
C.Motzkus \* (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'Etude et de Recherche en Thermique, Environnement et Système, Université Paris XII, 61 av. du Général de Gaulle, 94010 Créteil Cedex, France.
- Caractérisation de l'aérosol émis lors d'une découpe laser** **107**  
S. Fauvel\*(1), G. Pilot (1), G. De Dinechin (2) X. Gosse (3) et P. Arnaud (4)  
(1) Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols, IRSN/DSU/SERAC, BP 68, Bât 389, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex. (2) Groupe d'Intérêt Public Groupement d'Etudes et de Recherche pour les Applications Industrielles des Lasers de Puissance, Bât 107, 16 bis, avenue prieur de la côte d'Or, 94114 Arcueil Cedex. (3) Direction de l'Assainissement et des Projets, Maîtrise d'Œuvre Projets, COGEMA Etablissement de Marcoule, BP 76170, 30206 Bagnols sur Cèze Cedex (4) Ligne de Produit Démantèlement, SGN, RN 580, 30200 Bagnols sur Cèze
- Etude expérimentale et numérique d'une sonde isocinétique de prélèvement dans un écoulement diphasique concentré** **115**  
R. Friemel  
Office National d'Etudes et de Recherches Aérospatiales, 2 av. E. Belin, 31055 Toulouse Cedex 4
- The Measurement of Nucleation Mode Particles using an Ultrafine Water Based CPC** **121**  
E. Filimundi\*, O. Bischof and I. Bennett  
TSI Europe, Marseille, Aachen and Bristol
- Comparaison de différentes méthodes de détermination des caractéristiques fractales d'agrégats de suie d'acétylène.** **125**  
F.X. Ouf \* (1), C. Coursil(1,2), E. Gehin(2) et J. Vendel(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 Recherche en Thermique, Environnement et Système, Université Paris XII, 61 av. du Général De Gaulle, 94010 Créteil Cedex , France
- Comparaison de diagnostics optiques granulométriques : imagerie en défaut de mise au point – anémométrie phase doppler** **131**  
P. Lemaitre, E. Porcheron, A. Nuboer, L. Bouilloux, J. Vendel  
IRSN/DSU/SERAC, Laboratoire d'Expérimentations en Confinement, Épuration et Ventilation. BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette cedex.
- Mise en oeuvre de diagnostics couples pour l'étude de la captation d'aérosols par un spray d'eau** **137**  
D. Marchand<sup>\*1,2</sup>, E. Porcheron<sup>1</sup>, P. Lemaitre<sup>1</sup>, A. Nuboer<sup>1</sup>, J. Vendel<sup>1</sup>, L. Bouilloux<sup>1</sup> et G. Grehan<sup>2</sup>  
(1) IRSN/DSU, Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex. (2) UMR 6614 CORIA, Laboratoire Énergétique des Systèmes et Procédés, Site Universitaire du Madrillet, Avenue de l'université BP 12, 76 801 Saint Etienne du Rouvray Cedex.
- Annonce des exposants** **143**



## 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 21<sup>ème</sup> Congrès Annuel (CFA 2005) se tient donc, pour la deuxième fois, à la Maison de la Mutualité à Paris, les 14 et 15 décembre 2005.

Vous disposez, cette année, comme les deux années précédentes, 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 2005 réunit près de 100 participants qui vont assister à 25 communications dont deux conférences plénières présentées, d'une part par Alfred Weber Professeur à l'université technique de Clausthal, d'autre part par Olivier Witschger du Laboratoire de Métrologie des Aérosols de l'Institut National de Recherche en Sécurité de Vandoeuvre. Ces conférences vont sans doute retenir l'attention de l'assistance en abordant le même objet, les nanomatériaux, mais sous des angles très différents : les propriétés des nanomatériaux élaborés en phase aérosol, d'une part, et les effets potentiels de ces nanomatériaux sur la santé, notamment aux postes de travail, d'autre part.

Le CFA 2005 est, pour les thèmes, dans la tradition des CFA précédents, nous y retrouvons quatre grandes sessions :

- physique des aérosols,
- filtration des aérosols,
- aérosols et santé, sources potentielles,
- métrologie des aérosols et instrumentation.

Du 29 août au 2 septembre 2005 s'est tenue à Gand, Belgique, l'European Aerosol Conference 2005 qui a réuni plus de 700 participants. Durant cette conférence, Evelyne Géhin et moi-même avons représenté l'ASFERA aux bureaux directeurs de l'International Aerosol Research Assembly (IARA) et de l'European Aerosol Assembly (EAA). A cette dernière réunion, nous avons retenu la proposition faite par la future association Grecque de tenir l'EAC 2008 à Thessalonique. Pour ceux qui n'auraient pas encore noté, je vous rappelle que la prochaine conférence européenne ( EAC 2007 ) aura lieu à Salzburg en Autriche, du 9 au 14 septembre 2007 et que la future conférence internationale ( IAC 2006 ) se tiendra du 10 au 15 septembre 2006 à Saint Paul aux Etats Unis. A cet égard, je vous informe que lors de la réunion du IARA nous avons décidé que l'IAC 2010 se tiendrait à Helsinki en Finlande.

Je vous incite donc à participer activement à toutes ces conférences montrant ainsi le dynamisme de notre recherche en Science des Aérosols.

Je vous rappelle, une fois de plus, que l'ASFERA s'est dotée de son site [www.asfera.org](http://www.asfera.org) qui est opérationnel depuis plus quatre 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. Cette année nous retrouvons nos exposants. Je les remercie chaleureusement de nous faire à nouveau confiance malgré le contretemps de l'année dernière.

Une fois encore, je remercie le bureau de l'ASFERA, qui a construit ce programme du CFA 2005. Il contribue, par ailleurs, comme vous tous, au fonctionnement et au rayonnement de notre association.

Mes remerciements vont également vers les étudiants de la spécialité AERO du Master Science et Génie de l'Environnement des Universités Paris XII et Paris VII qui vont vous accueillir pendant les deux journées de la conférence.

Je remercie un grand nombre d'entre vous pour leur fidélité. Enfin, si ce Congrès annuel est si vivant, d'un niveau scientifique et technique remarquable, je n'oublie pas que c'est grâce à tous nos auteurs et talentueux conférenciers.

Je vous donne donc rendez vous à tous en 2006 pour notre 22<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**, CERTES, 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)

# GASPHASE TAILORING OF NANOPARTICLE PROPERTIES BY SURFACE REACTIONS

Alfred P. Weber

Institute for Mechanical Process Technology,  
Technical University of Clausthal,  
D-38678 Clausthal-Zellerfeld

Keywords: catalytic activity, sintering kinetics, mechanical strength

## ABSTRACT

On the examples of sintering, aerosol catalysis and mechanical strength of nanoparticle agglomerates it is shown how aerosol techniques can be employed to adjust nanoparticle properties and to analyze the resulting effects. Moreover, it is outlined that transport processes over nanoparticle agglomerates have to be understood in order to recover the properties of the individual nanoparticles.

## INTRODUCTION

In many processes nanoparticles are produced in the gasphase, for instance when high purities are required. Further conditioning of these particles may be necessary and is most effectively done when the particles are still gasborne. One striking feature about nanoparticles is their high surface-to-volume ratio. Depending on the particle size a significant part of the atoms may be directly on the surface. Moreover, the surface atoms are also in a higher energy state rendering material properties to become size-dependent for nanoparticles. Already these points indicate the importance of the control of such surface properties for further processing of nanoscale powders. However, at the high number concentrations as encountered in industrial production processes, the nanoparticles tend to form agglomerates. Therefore, phenomena purely related to the nanoparticles may be superimposed by effects due the agglomerate structure. In this contribution, some ways to separate nanoparticle issues from agglomerate structure effects are outlined and techniques to tailor sintering kinetics, catalytic activity and mechanical strength of nanoparticles in the aerosol state by controlling the surfaces properties will be shown.

## CHARACTERIZATION OF NANOPARTICLE SURFACES – TOOLS AND FUNDAMENTAL RESULTS

The characterization of nanoparticle agglomerates opens a variety of questions for instance how large the surface of such an agglomerate is and which part interacts with the surrounding gas molecules. The last point is especially interesting with respect to the surface conditioning by chemical gas phase reactions. The tools used in this work to answer these questions together with the most essential results will be presented in this paragraph.

Schmidt-Ott *et al.* (1990) termed the surface part of aerosol agglomerates which interacts directly with the surrounding gas molecules as "exposed" surface. They showed that the *exposed surface* may be investigated by mass or momentum transfer processes when first collisions of the gas molecules are dominant. Schmidt-Ott (1988) demonstrated that for the drag force on an agglomerate (momentum transfer) this assumption is effectively true. For the mass transfer a sticking probability of one was obtained by using radioactive isotopes (hydrated Pb-211 isotopes) in attachment studies (Weber, 1992). However, in all of these studies only quantities proportional to the exposed surface were obtained and no absolute values were given. Therefore, a new approach was taken as outlined in the following. The idea was to saturate the total agglomerate surface of Pt nanoparticles with oxygen and to add later hydrogen. Since the hydrogen oxidation on Pt is an extremely fast reaction, the kinetics of

the water production reveals directly the transport processes on the agglomerate surface. At the beginning only the outermost surface of the agglomerate will participate. Later most of the surface (>95%) will be covered with hydrogen due to its higher mobility and easier adsorption. Then transport of the hydrogen by surface migration into the inner part of the agglomerate is reflected in the water formation rate. Finally, when preadsorbed oxygen is depleted the steady state water formation rate is reached at the value also obtained by simultaneous addition of both educt gases (Fig. 1). From the total amount of water produced over time, the fraction of inner surface usually not participating in the hydrogen oxidation was estimated to be about 2/3. Therefore, only 1/3 of the total surface area is involved in this chemical reaction and directly accessible from the gas phase. The total surface area of the agglomerates can be measured by nitrogen adsorption (BET). This means that for studying the properties of nanoparticles arranged in agglomerates, the transport kinetics for the reaction under investigation need to be known.

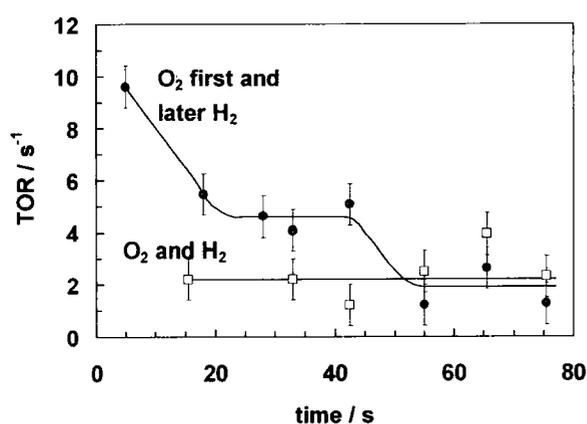


Fig. 1: Rate of water formation (in Turn-Over-Rate, TOR) as a function time for the simultaneous addition of oxygen and hydrogen and for the delayed addition of hydrogen

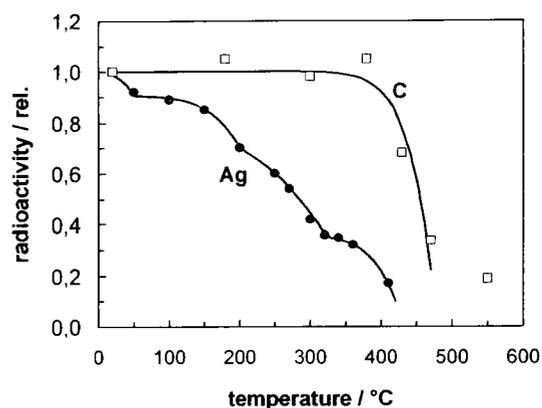


Fig. 2: Desorption of I-136 isotopes from silver and carbon nanoparticles shown as radioactivity (isotopes) remaining on the particles vs. desorption temperature

Another important issue is the uniformity of the nanoparticles within the agglomerate regarding size and surface homogeneity. While the size distribution showed standard deviations of typically less than 1.6, the *types of surface sites* varied largely depending on material and production history of the nanoparticles. As shown by adsorption/desorption experiments using radio isotopes with sticking probabilities less than one, the surface of silver nanoparticles exhibited only one type of surface site while carbon nanoparticles showed at least 4 different types of adsorption sites. (Ammann *et al.*, 1995). The results of desorption experiments performed with I-136 isotopes from Ag and C nanoparticles are shown in Fig. 2.

To monitor the chemical transformations of the educt gases interacting with the gasborne particles FTIR was used. By combining the IR analysis with a long path gas cell minute amounts of product gases can be detected. This was necessary especially for the aerosol catalysis studies where only small amounts of product gases were obtained. On one hand the available catalyst surface and contact times were small and on the other hand, in order to avoid the details of the reaction (e.g. reaction orders) it was intended to stay away from completion. In this way the concentration of the educt gases could be considered as virtually constant and the pure influence of the nanoparticles on the reaction becomes evident.

During the reaction also the particle surface state may change for instance by adsorbates. An important step in understanding and controlling nanoparticle properties is the ability to determine in situ the *surface state* of the gasborne particles. A powerful tool for the surface analysis is Aerosol Photoemission Spectroscopy (APES, see Fig. 3 (left)) where particle work function and electron emission activity are measured on gasborne aerosol particles (Weber *et al.*, 2001). Although the exact nature of adsorbates has to be specified with the support of additional off-line techniques (e.g. TGA-FTIR, EDX, AES), APES allows to quantify the amount of adsorption and to differentiate between

adsorption of molecules on the particles and surface reactions. In Fig. 3 (right) the change of the photoelectric behavior of Ni nanoparticles (2.2 nm in diameter) used as catalyst for the formation of methane from hydrogen and carbon monoxide is shown. The square root of the photoelectric yield (Weber *et al.*, 2002) is plotted vs. the photon energy where the work function is given by the x-intercept. At room temperature (without educt gases) the work function is very close to the one measured on ultrapure Ni nanoparticles.

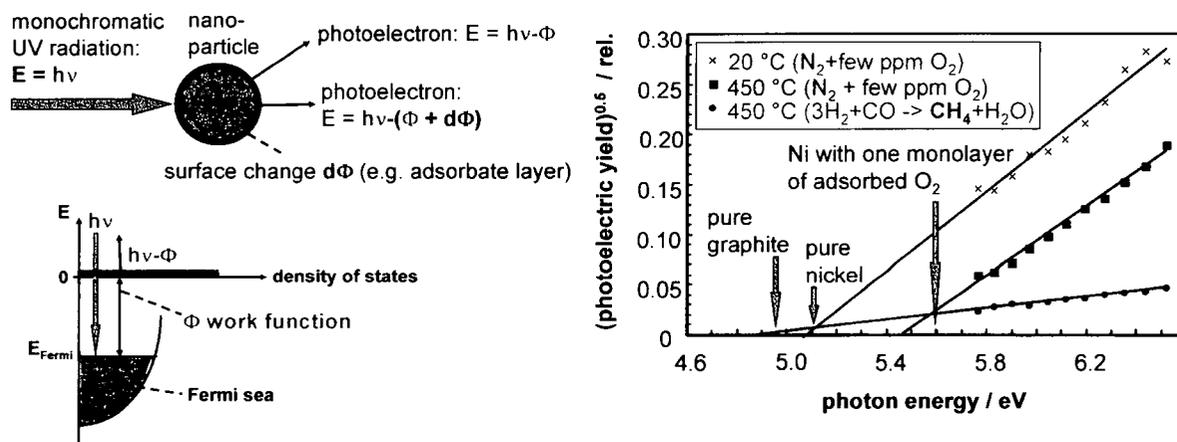


Fig. 3: (left) Schematic diagram of the photoeffect on a gasborne nanoparticle (top) and energy schema for electron escape (initially neutral particle becomes positively charged)

(right) changes of work function of Ni nanoparticles at room temperature, at elevated temperature with and without educt gases

When heating this aerosol to 450°C a shift of the work function is observed which would correspond to the adsorption of about 2/3 of an oxygen monolayer. Finally, adding the educt gases (hydrogen and carbon monoxide) at 450 °C a significant reduction of the work function and a change of the slope (related to the density of states at the Fermi level) are seen. For comparison purposes the work function of graphite is indicated in Fig. 3 (right). In fact with TGA-FTIR an amount of about a quarter of a monolayer carbon was measured. This shows that already very little carbon deposits may significantly change the nanoparticle surface regarding the photoelectric behavior and, as will be shown below, also regarding the catalytic activity (Fig. 5).

### CONTROL OF SINTERING KINETICS

During the methanation, which is an activated process requiring temperatures above 300 °C, partial sintering of the nanoparticles was observed. However, the sintering kinetics was found to depend critically on the carrier gas composition (Seipenbusch *et al.*, 2003). Therefore, the sintering kinetics was studied in well defined gas atmospheres by varying kind and amount of trace gases. The influence of the gas composition on the nanoparticles size distribution and surface state was investigated by employing transmission electron microscopy (TEM), nitrogen adsorption (BET), thermogravimetric analysis (TGA coupled to FTIR) and APES.

The controlled sintering finds applications for instance in the production of transparent high strength ceramics which can replace safety glass having the same protection effect at substantially reduced weight (by about a factor of 50).

### CATALYTIC ACTIVITY OF METAL NANOPARTICLES

The catalytic activity of aerosol particles was determined for a few rather well known reactions such as the hydrogen oxidation on Pt nanoparticles and the methanation on Ni nanoparticles. With this setup it was possible to study the reactions for contact times as short as 70 ms and to investigate

poisoning kinetics on this time scale (Weber *et al.*, 1999, Seipenbusch, 2003, Weber *et al.*, 2003). In Fig. 4 the dependence of the catalytic activity on the primary particle size is shown for Pt and Ni nanoparticles. While a quantum confinement effect was observed for the Pt activity (real “nanoeffect”), the optimal size for the Ni activity is related to CO adsorption phenomena on the nanoparticles.

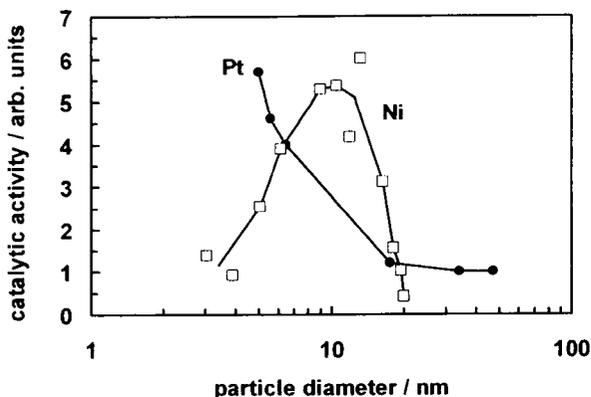


Fig. 4: Size dependence of the catalytic activity of gasborne Pt (hydrogen oxidation) and Ni nanoparticles (methanation)

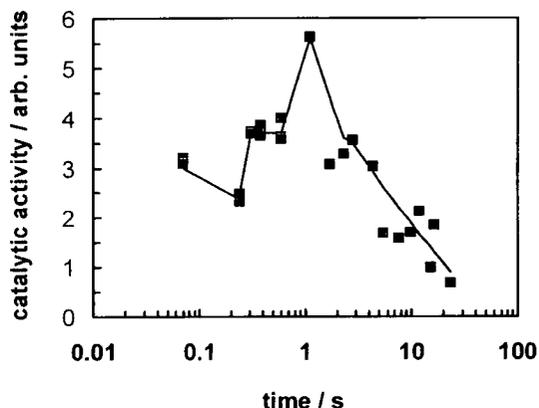


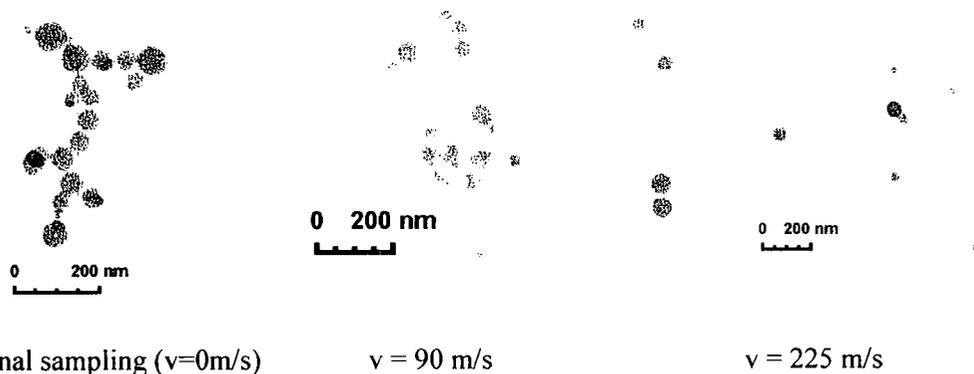
Fig. 5: Temporal evolution of the catalytic activity for Ni nanoparticles in the methanation reaction at 450°C

The temporal evolution of the catalytic activity of Ni nanoparticles in the methanation reaction is shown in Fig. 5. After an initial decay due to poisoning by carbon deposition on the Ni particle surface the particles grow into the optimal size by coalescence. Finally, poisoning takes over again leading to a substantial activity loss.

The high time resolution of aerosol catalysis makes this technique ideal to study the mere properties of catalytic particles without transport limitations. Therefore, the method may be employed for the rapid screening in catalysis development.

#### MECHANICAL STRENGTH OF NANOPARTICLE AGGLOMERATES

To investigate the mechanical strength of nanoparticle agglomerates fragmentation studies were performed with a low pressure impactor. By controlling the pressure in the impaction chamber the particle impact velocity on a TEM grid was varied. Subsequently, the fraction of broken bonds was determined as a function of the impact energy by TEM image analysis as shown in Fig. 6 (Froeschke *et al.*, 2003).



Diffusional sampling ( $v=0\text{m/s}$ )

$v = 90 \text{ m/s}$

$v = 225 \text{ m/s}$

Fig. 6: Agglomerates of  $\text{SiO}_2$  nanoparticles after the impactation at different velocities

Once this technique was established, the surface state of the nanoparticles was modified by thermal treatment and photochemistry and the effect of these surface changes on the interparticle bond strength were measured (Figs. 7 and 8).

In fact, it was found that by tempering of SiO<sub>2</sub> particles and by partial oxidation of the surface of polystyrene particles a substantial enhancement of the mechanical stability of the agglomerates was achieved. On one hand, the kinetic energy needed for 50% fragmentation increased by the treatment. On the other hand, the fraction of bonds, which were not breakable up to the maximum impact velocity attainable in the current setup, increased also.

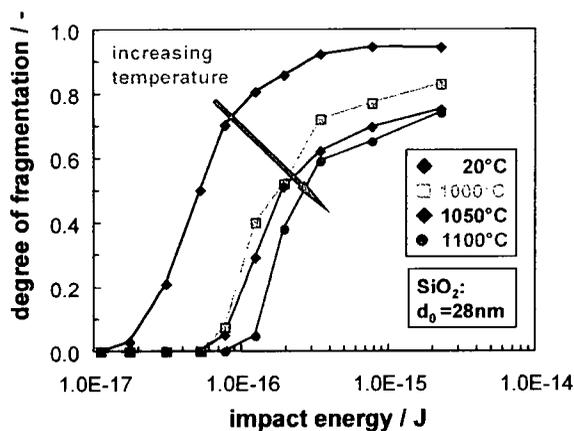


Fig. 7: Fragmentation curves for SiO<sub>2</sub> particles after tempering at different temperatures

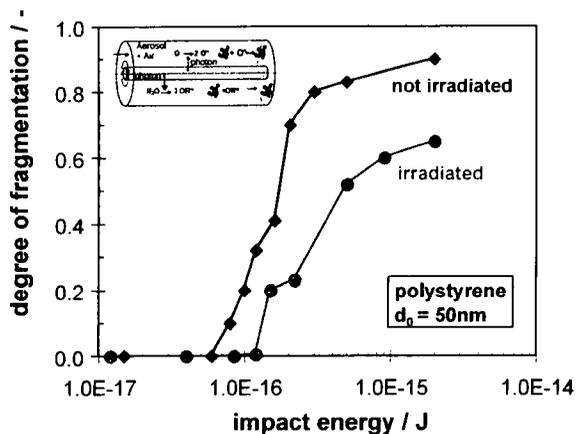


Fig. 8: Fragmentation curves for polystyrene latex agglomerates treated at different levels in a photochemical reactor

In the case of the SiO<sub>2</sub> particles the tempering may result in a change of the interparticle contact area and/or in a change of the bonding type. However, not even high resolution TEM of the contact zone was able to resolve such flattening processes. This example shows the high sensitivity of the impact fragmentation method to changes of the bond strength.

For the photochemical treatment of the polystyrene particle the surface changes have been clarified in more detail. Fig. 9 represents the results of an FTIR analysis of the particle surface before and after photochemical treatment which was done by UV irradiation of water and oxygen gas molecules leading to highly active O and OH radicals.

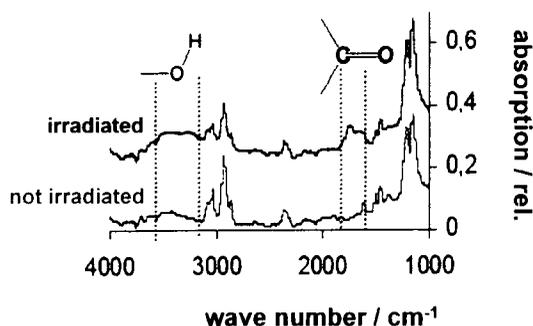


Fig. 9: FTIR spectra of the polystyrene particle surface with (irradiated) and without photochemical surface treatment

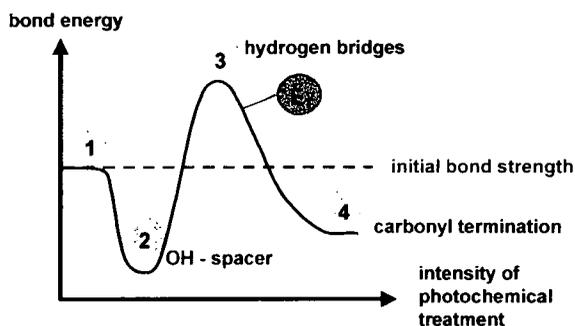


Fig. 10: Working hypothesis for the evolution of the interparticle bond energy with increasing intensity of the photochemical treatment

Fig. 10 shows the working hypothesis about the surface changes. At low oxidation intensities, the initial bond strength (1) is reduced by the formation of single OH groups on the particle surface which serve as spacer thereby reducing the bond strength (2). At higher degree of oxidation, hydrogen bridges may form between the particles which enhance the interparticle bond strength (3). Finally, at very high oxidation intensities the surface will be terminated by carbonyl groups resulting again in reduced bond energies (4). According to the fragmentation experiments (Fig. 8) and to the FTIR surface analysis (Fig. 9) the particles investigated here were in the state indicated by (E1) in Fig. 10. According to this picture, the interparticle bonding can be adjusted by the degree of photochemical surface treatment which in turn has to be defined by the residence time and the UV intensity distribution in the irradiation reactor.

Tailoring interparticle bond strength may find applications in the handling of nanoscale powders (freely flowing nanoparticles), in nanoparticle filtration (controlled adhesion to the filtration substrate), in the mixing of different nanoparticles (on a particulate level) and in the incorporation of nanoparticles into a host matrix (e.g. to form composite materials)

## CONCLUSIONS

At high number concentrations nanoparticles tend to appear as agglomerates. This has to be taken into account when studying the properties of the individual nanoparticles. Once transport processes of gas molecules to these agglomerates are understood the nanoparticle properties can be retrieved. For instance in sintering experiments with metallic nanoparticles it was found that the surface state seems to be more important for the sintering kinetics than the particle material. Aerosol techniques offer a variety of tools to nanotechnology regarding handling of nanoscale powders and on-line monitoring of nanoparticle properties. Using impact fragmentation as analytical tool this was exemplified on the adjustment of the interparticle bond strength by thermal treatment and photochemical reaction.

## ACKNOWLEDGEMENT

The contributions of M. Seipenbusch, S. Froeschke, M. Kirchhof, H.-J. Schmid, J. Salas Vicente, S.H. Bossmann, A.M. Braun and G. Kasper and the financial support by the Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) for parts of this work are highly appreciated.

## LITERATURE CITED

- Ammann, M., Baltensperger, U., Bochert, U.K., Eichler, B., Gäggeler, H.W., Jost, D.T., Türler, A., Weber, A.P. (1995) *J. Aerosol Sci.* 26, 61-70
- Froeschke, S., Kohler, S., Weber, A.P., Kasper, G. (2003) *J. Aerosol Sci.* 34, 275-287
- Froeschke, S., Kirchhof, M., Schmid, H.-J., Weber, A.P. (2004) *Proceedings EAC 2004*, S95
- Kirchhof, M., Froeschke, S., Schmid, H.-J., Weber, A.P. (2004) *Proceedings EAC 2004*, S193
- Schmidt-Ott, A. (1988) *Appl. Phys. Lett.* 52, 954-956
- Schmidt-Ott, A., Baltensperger, U., Gäggeler, H.W., Jost, D.T. (1990) *J. Aerosol Sci.* 21, 711-717
- Seipenbusch, M., Weber, A.P., Schiel, A., Kasper, G. (2003) *J. Aerosol Sci.* 34, 1699-1709.
- Seipenbusch, M. (2003) *Ph.D. thesis*, Institut für Mechanische Verfahrenstechnik und Mechanik, Universität Karlsruhe (TH), Karlsruhe, Germany
- Weber, A.P. (1992) *Ph.D. thesis*, ETH Zurich, Switzerland
- Weber, A.P., Seipenbusch, M., Thanner, Ch., Kasper, G. (1999) *J. Nanoparticle Res.* 1, 253-265
- Weber, A.P., Seipenbusch, M., Kasper, G. (2001) *J. Phys. Chemistry A* 105, 8958-8963
- Weber, A., Seipenbusch, M., Kasper, G. (2003) *J. Nanoparticle Res.* 5, 293-298

# Faisabilité du dépôt de couches minces fonctionnalisées par PEHD en post-décharge à pression atmosphérique

L.Tatoulian<sup>1</sup>, M.Tatoulian<sup>2</sup>, A. Valt<sup>2</sup>, F. Arefi<sup>2</sup>, JP Borra<sup>\*1</sup>

1) Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas, UMR 8578, Ecole Supélec, Plateau de Moulon, 91192 Gif-Sur-Yvette Cedex, France.

2) Laboratoire de Génie des Procédés Plasmas et Traitement de Surfaces, Université Pierre et Marie Curie/ENSCP-11 rue Pierre et Marie Curie F-75231, Paris Cedex, France.

## TITLE

Faisability of thin films deposited by EHDA in post-decharge at atmospheric pressure

## ABSTRACT

Deposition of poly(acrylic acid) films has been done at atmospheric pressure by Electro-HydroDynamic Atomisation (EHDA) in cone-jet mode. EHDA of ethanol in cone-jet mode has been characterised by visual, electrical and granulometric means in order to define some conditions for EHDA of acrylic acid (AA). The film coatings of poly(acrylic acid) (PAA) have been analysed with SEM, XPS, IR and Water Angle Contact. XPS analyses have revealed the high retention of carboxylic acid functionality on PAA polymer compared to AA monomer (close to 80%).

## RESUME

Ce travail vise à développer un procédé de traitement de surface par dépôt de couche mince à pression atmosphérique. Des dépôts microniques de poly(acide acrylique) (PAA) ont été réalisés sur des substrats polymères par PEHD en post-décharge à pression atmosphérique. Ce procédé de production de gouttes a été stabilisé dans un mode de production de gouttes stable appelé « cône-jet » puis caractérisé par des diagnostics visuel (lumière blanche rétro-diffusée), électrique (oscilloscope) et granulométrique (Phase Doppler Anemometry). L'influence des paramètres de régulation (tension, débit de liquide, géométrie des électrodes) sur les propriétés des gouttes a permis la validation des lois d'échelle en courant et diamètre selon le débit de liquide et de définir les domaines de fonctionnement et les conditions de dépôts associées (taille et flux de gouttes). Les films ont été analysés par MEB, XPS, IR et mesures d'angle de contact. La rétention de la fonction acide carboxylique (proche de 80%) dans le polymère déposé ainsi que la stabilité des propriétés des films après lavage à l'eau ont été confirmées.

## 1. Introduction

Les dépôts de couches minces fonctionnalisées, sur des matériaux organiques ou inorganiques, permettent de conférer au matériau les propriétés requises pour son application : le matériau acquiert une valeur ajoutée. Actuellement, les dépôts se font en grande partie par des procédés en voie « humide » où l'importante utilisation de solvants organiques pose des problèmes d'un point de vue environnemental. Ces procédés impliquent des temps de préparation relativement longs. Les procédés en voie « sèche », tels les procédés plasmas, sont caractérisés par l'absence de solvant avec des étapes d'activation rapides. Toutefois, ces procédés en voie sèche posent des problèmes quant à la spécificité des greffages fonctionnels, surtout lors de traitement à pression atmosphérique (restriction par rapport au choix du gaz plasmagène, problèmes de non-homogénéité du traitement de surface...). Les procédés de dépôt à pression atmosphérique sont donc caractérisés par des problèmes d'inhomogénéité et de vitesses de dépôt relativement lentes (quelques nm/min contre quelques  $\mu\text{m}/\text{min}$  par PEHD) [1].

Ce projet vise à développer un procédé de dépôt de couches minces à pression atmosphérique. L'objectif consiste en l'obtention d'un film polymère à partir de gouttelettes de monomère de taille, charge électrique et flux contrôlés sur la surface du matériau à fonctionnaliser avec un taux de rétention important de la fonctionnalité apportée par le monomère. Ce procédé consiste en un couplage entre un système de production de gouttes (PEHD) et un système de traitement de surface

et/ou activation de la polymérisation (Décharge à Barrières Diélectrique) à pression atmosphérique. Une étape clé de ce procédé de dépôt consiste en la caractérisation et le contrôle du système de production de gouttes. De nombreuses références bibliographiques mettent en relief les avantages de la PEHD stabilisée dans un mode de production communément appelé « cône-jet ». Dans ce mode stable de production de gouttes, la taille, la charge et le flux des gouttes sont contrôlés par des paramètres de régulation en regard des propriétés du liquide à pulvériser.

La première partie des résultats porte sur la caractérisation du procédé de production de gouttes par PEHD en mode cône-jet. La seconde partie des résultats porte sur l'analyse structurale et chimique de ces films par MEB, IR, XPS et mesures d'angle de contact.

## II. Dispositif expérimental et méthodes de diagnostic

Le système de production de gouttes par PEHD est constitué d'une buse métallique alimentée en liquide par un pousse-seringue (modèle B-D Pilote C) délivrant un débit de liquide constant de 0.1 à 200 ml/h. La buse et le liquide sont polarisés par l'application d'une haute tension délivrée par une alimentation haute tension (Brandenburg, série Alpha III, modèle 3807, Puissance 50 Watts) fournissant une tension dans une gamme de 0 à +/-30 kV et débitant un courant de 0 à +/-1,5 mA en regard d'une contre-électrode reliée à la masse et placée dans l'axe de la buse à quelques centimètres. Le générateur haute tension est relié à la buse par l'intermédiaire d'une résistance de protection (10 MΩ) permettant de limiter le courant de décharge par la chute de tension qu'elle impose à la pointe dans le cas d'un fort courant. Le courant relatif à la collection des gouttes chargées sur le plan à la masse est mesuré par l'intermédiaire d'une sonde haute tension (Tektronix, modèle P6015A, 75 MHz) reliée à un oscilloscope qui mesure la tension appliquée à la buse. Cette sonde est un pont diviseur capacitif de rapport 1000. La taille, vitesse, concentration et flux de gouttes sont obtenus par PDA (Phase Doppler Anemometry) (Dantec Electronik).

Le système de traitement de surface par DBD est placé à 15 cm en amont du système de PEHD. Ce système est composé d'une électrode haute tension couverte d'une fine couche d'alumine ( $Al_2O_3$ ) de 2 mm d'épaisseur. Cette électrode, soumise à une basse fréquence (45kHz), est placée à 1 mm de la même contre-électrode reliée à la masse que la buse de pulvérisation.

Le substrat à traiter est disposé sur la contre-électrode métallique à la masse. Les analyses XPS ont été réalisées à l'aide d'un « Surface Science Instruments » (SSI M-Probe Spectrometer). Les échantillons ont été irradiés par rayons X monochromatiques  $Al K_{\alpha}$  (1486.6 eV) en utilisant un faisceau de diamètre égal à 150µm et doté d'une puissance de 40W.

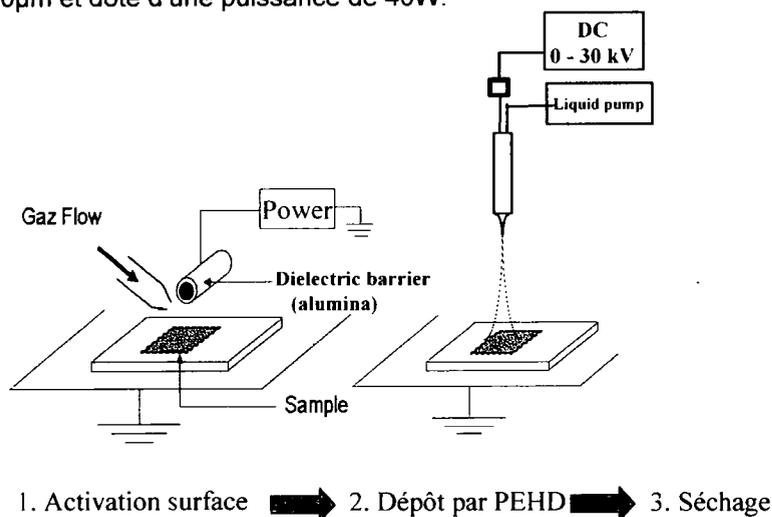


Figure 1 : Dispositif expérimental du réacteur de dépôt.

## III. Caractérisation du procédé de production de gouttes

### III.1. Validation du principe physique de l'équilibre EHD

Suivant l'intensité des forces électriques et hydrodynamiques appliquées en tous points de la surface du liquide en sortie de buse, différents modes de production de gouttes par PEHD sont définis :

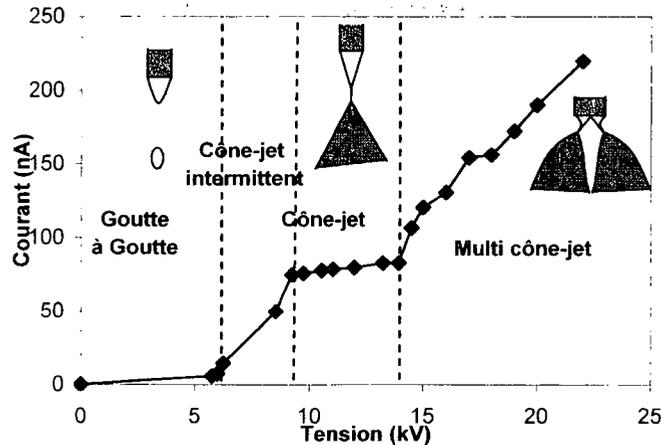


Figure 2 : Succession des modes de PEHD pour une solution d'éthanol  $25-35\mu\text{S/m}$  ;  $Q=5\text{ml/h}$  ; Buse  $3.1/0.3\text{mm}$  ;  $Di\text{-}\acute{e}=4\text{cm}$ .

- **Goutte-à-goutte** : Sans champ électrique (0kV), le liquide en sortie de buse prend la forme d'une goutte due à un équilibre entre la gravité et la force capillaire. Des gouttes millimétriques sont émises à une fréquence inférieure à 1Hz. En présence d'un champ électrique faible (faible tension), le liquide polarisé tend vers une forme cônica instable due à l'équilibre entre les forces capillaires, la gravité et les forces électriques. Aucun jet n'est produit et des gouttes sub-millimétriques sont émises dont la fréquence augmente et la taille diminue suivant une augmentation de la tension appliquée [2,3].
- **Cône-jet intermittent** : Lorsque la tension est proche de la tension seuil du mode cône-jet, un mode « cône-jet intermittent » apparaît. Dans ce mode, un cône de liquide instable se forme au bout duquel un jet se fragmente en gouttes chargées. Le courant de PEHD n'est pas constant [2,3].
- **Cône-jet** : Dans une gamme appropriée de débit de liquide et de tension, un cône de liquide stable se forme au bout duquel un jet se fragmente en gouttes microniques chargées. Ce mode de production de gouttes chargées est caractérisé par un courant de nébulisât quasi constant sur une plage de tension de quelques kV avec une variation de courant de 10 à 20%.
- **Multi cône-jet** : Au-delà de la tension maximale du mode cône-jet, le mode « multi cône-jet » apparaît : le cône de liquide se divise en plusieurs cônes de liquide plus petits pour augmenter la force capillaire nécessaire au maintien de l'équilibre EHD au sein de chaque cône. Le nombre de cônes augmente avec la tension.

### III.2. Domaines de fonctionnement (U,Q)

Le mode cône-jet est atteint pour des tensions permettant la création d'un champ électrique à la surface du liquide suffisamment fort pour atteindre l'équilibre EHD. Il existe une tension minimale, dite tension seuil, en deçà de laquelle l'équilibre EHD n'est pas atteint. De même, au-delà d'une tension supérieure à la tension maximale du mode cône-jet, le mode multi cône-jet apparaît. Il existe donc une gamme de fonctionnement en tension en dehors de laquelle le mode cône-jet n'existe pas.

Par ailleurs, si le débit de liquide est inférieur au débit minimum du mode cône-jet, les forces électriques sont supérieures aux forces hydrodynamiques. Le champ électrique à la surface du cône de liquide est trop élevé et le liquide est éjecté de la buse dans différents modes instables de pulvérisation [4]. Lorsque le débit de liquide est supérieur au débit maximum du mode cône-jet, les forces hydrodynamiques sont supérieures aux forces électriques. Le champ électrique à la surface du cône de liquide est insuffisant pour établir un équilibre EHD en mode cône-jet.

La corrélation entre les gammes de tension (U) et de débit de liquide (Q) délimite un domaine de fonctionnement (U,Q) de la PEHD en mode cône-jet. La figure ci-dessous représente un domaine de fonctionnement du mode cône-jet selon la tension et le débit de liquide pour une solution d'éthanol de conductivité de  $30\mu\text{S/m}$  :

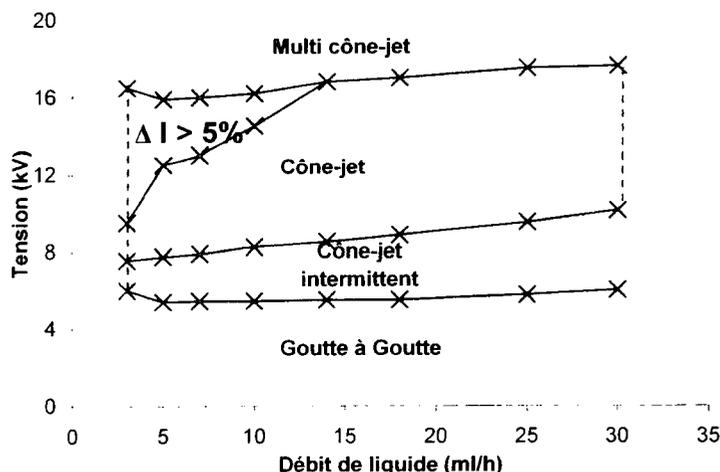


Figure 3 : Domaine (U,Q) pour buse 8/0.3mm; Di-é=4cm; éthanol 30  $\mu$ S/m.

A conductivité ( $\lambda$ ) et Q constants, on retrouve la succession des modes de PEHD à tension croissante. De plus, à  $\lambda$  et U constants, il existe une gamme de débit de liquide permettant l'établissement d'un mode cône-jet stable.

### III.3. Validation des lois d'échelle

Les **Figure 4** (a) et (b) représentent respectivement l'évolution du courant de PEHD et du diamètre modal des gouttes principales en fonction du débit de liquide. Les mesures expérimentales de courant ont été tracées en fonction du débit de liquide puis comparées avec les intensités de courant théorique calculées à partir des lois de Gañan-Calvo [5]. L'incertitude sur l'intensité du courant mesuré est fixée à 10%. L'évolution du diamètre modal des gouttes principales produites par PEHD d'éthanol en mode cône-jet dans le mode de fragmentation du jet axisymétrique a été tracée en fonction du débit de liquide; puis comparée avec les lois théoriques de Gañan-Calvo et de Hartman [6]. Pour un débit de liquide donné, le potentiel appliqué a été ajusté de façon à obtenir la distribution granulométrique la plus étroite possible. Pour un débit de liquide donné, le diamètre modal des gouttes principales a été obtenu à partir de distributions granulométriques intégrées sur toute la surface du nébulisât au plus près de la zone de fragmentation du jet.

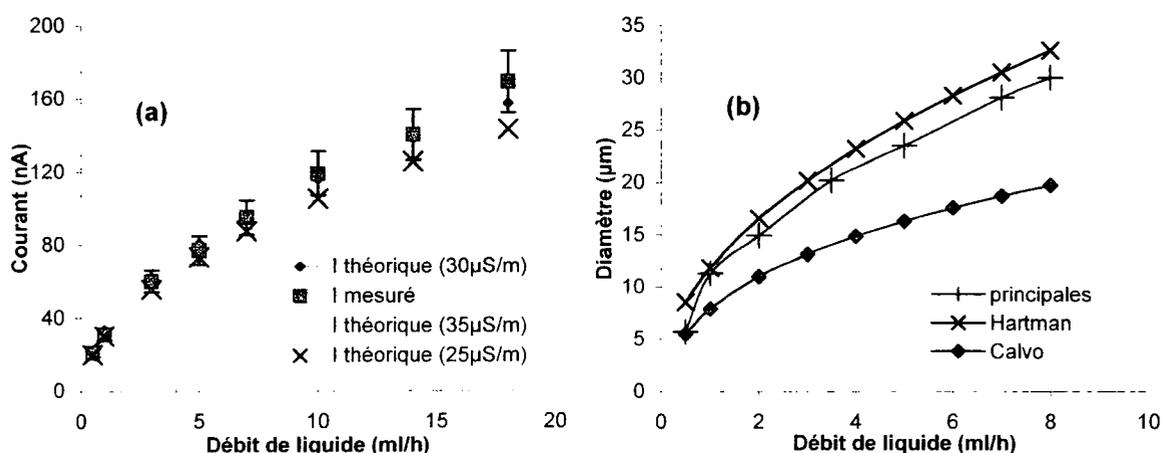


Figure 4 : (a)  $I = f(Q)$ , Di-é=4cm ; Buse 3.1/0.3mm , Ethanol 30 $\mu$ S/m ; (b)  $d = f(Q_{liq.})$  en mode de fragmentation axisymétrique; Dbuse-plan=4cm ; buse 5/0.3mm ; éthanol 30 $\mu$ S/m.

L'évolution du courant mesuré expérimentalement à partir d'une solution d'éthanol suit la loi théorique de Gañan-Calvo pour une conductivité égale à 30 $\mu$ S/m et confirme l'augmentation du courant avec le débit de liquide (**Figure 4** (a)). Par ailleurs, la **Figure 4** (b) confirme la relation de proportionnalité entre le diamètre des gouttes et le débit de liquide au sein du mode de fragmentation axisymétrique: le diamètre des gouttes augmente avec le débit de liquide. La comparaison entre les valeurs expérimentales et théoriques met en évidence une surestimation des diamètres mesurés par rapport aux valeurs théoriques calculées à partir du modèle de Gañan-Calvo. En revanche, les diamètres des

gouttes principales mesurés expérimentalement confirment la loi théorique de Hartman en mode de fragmentation axisymétrique malgré une faible sous-estimation liée à un phénomène d'évaporation.

#### IV. Faisabilité du dépôt d'acide acrylique

##### IV.1. A-t-on déposé du polymère ?

La PEHD de l'acide acrylique (AA) pur ayant été caractérisée selon le même protocole que pour l'éthanol, la solution d'acide acrylique a été pulvérisée en mode cône-jet entre 0.1 et 1 ml/h (et des tensions comprises entre 5 et 7 kV) sur des films de PE, traités ou non par DBD. En confrontant la référence PE avec le même échantillon traité par PEHD d'acide acrylique, les observations par MEB ont mis en évidence la présence d'un film homogène et dense (voir Figure 5 (a) et (b)).

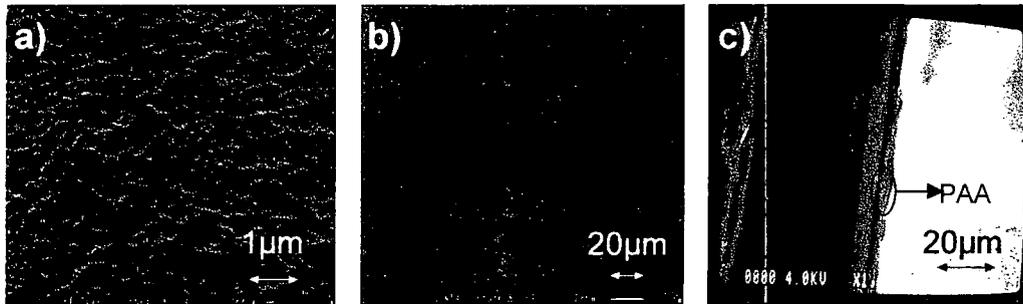


Figure 5 : Photos MEB (a) d'une surface de PE de référence (b) d'une surface recouverte d'un film de polyacide acrylique (PAA) vue de face et (c) de côté.

Les photos de la couche de PAA vue de côté nous ont permis une première estimation de l'épaisseur déposée (quelques  $\mu\text{m}$ ) (voir **Figure 5 (c)**). Des analyses par XPS et IR ont indiqués une structure chimique typique du PAA avec un taux de rétention de la fonction COOH proche de 80%. Enfin, des mesures d'angle de contact sur des films de PE traités ont confirmé la forte présence de fonctions hydrophiles en surface tandis que la surface de PE non traitée est hydrophobe.

##### IV.2. Morphologie selon les conditions de PEHD

**Selon le débit de liquide :** Différentes conditions de dépôt ont été testées (voir Figure 6) :

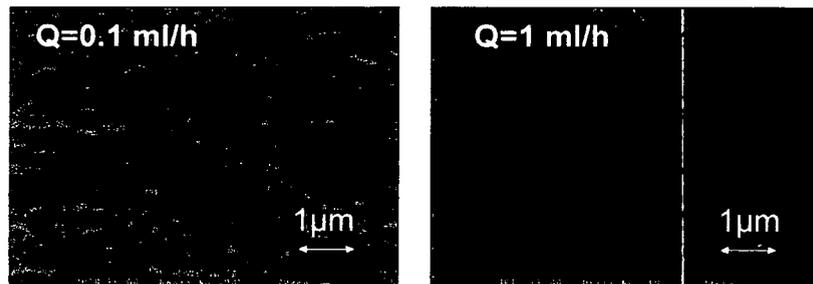


Figure 6 : Analyses MEB d'une surface de PE recouverte d'un film de polyacide acrylique pulvérisé à 0.1ml/h et 1ml/h.

Le débit de liquide de l'AA influe sur la morphologie du film de PAA. Tandis qu'à 0.1ml/h, la fine couche homogène de PAA laisse entrevoir les irrégularités de surface du PE, l'état de surface du film de PAA obtenu à 1 ml/h est homogène et exempt d'irrégularités.

- **Selon le flux de gouttes :** Les analyses par PDA nous ont montré que le diamètre et le flux des gouttes diminuent selon les directions r et Z du nébulisât, à mesure que l'on s'éloigne de la zone de fragmentation du jet. Ces profils de diamètre et flux sont à l'origine d'un profil d'épaisseur de couche déposée mises en évidence par des photos MEB effectuées en différents endroits de la couche de PAA :

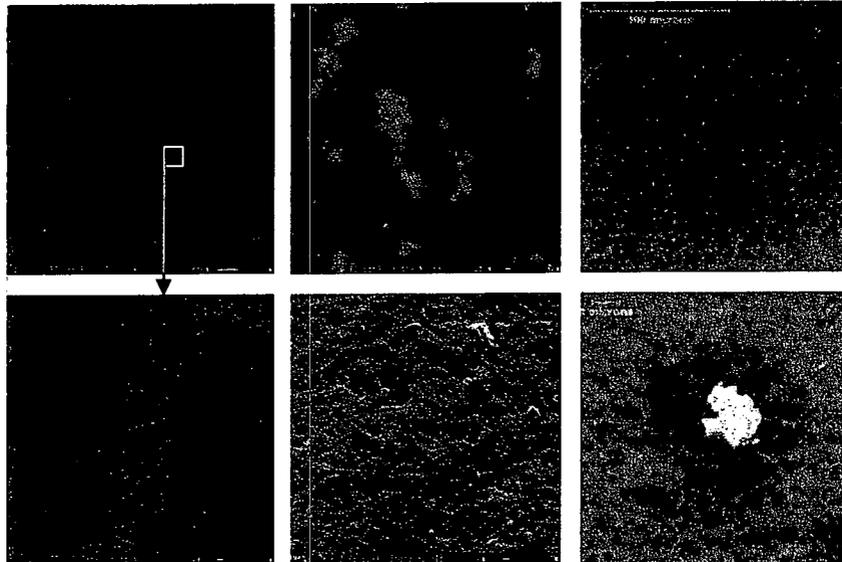


Figure 7 : Photos MEB de PAA sur PE déposées (a,b) dans l'axe du nébulisât, (c,d) à partir des bords du nébulisât et (e,f) en périphérie du

Les photos de la **Figure 7** (a) et (b) ont été prises au niveau de la couche de PAA déposées selon l'axe du nébulisât (zone de plus forte concentration en gouttes). Ces photos mettent en évidence la formation d'un film homogène épais et l'agglomération d'éléments unitaires sphériques de 50 nm (nanoboules) dans les fronts d'évaporation. La couche est de plus en plus poreuse à mesure que l'on s'éloigne de la zone couverte du centre (voir **Figure 7** (c) et (d)). En périphérie du nébulisât, il existe des fronts d'évaporation de diamètre proche de 4 à 5  $\mu\text{m}$ , caractéristiques du diamètre des gouttes unitaires (voir **Figure 7** (e) et (f)). Des nanoboules agglomérées sont confinées au sein de ces fronts d'évaporation. Ces nanoboules se forment donc au sein de chaque goutte d'AA. Nous orientons actuellement notre étude pour comprendre le rôle de ces nanoboules dans les mécanismes fondamentaux de formation des films de polymère déposés par PEHD.

## V. Conclusions

Le système de production de gouttes par PEHD a été caractérisé de façon à contrôler le diamètre et le flux des gouttes. La définition d'un protocole rigoureux pour définir des conditions de PEHD à partir d'un liquide de référence nous a permis de trouver des conditions de fonctionnement de la PEHD de l'AA en mode cône-jet. La polymérisation de l'AA déposé a été confirmée par des analyses XPS, IR et d'angle de contact. Il a été montré que le taux de fonctionnalité (calculé comme le rapport du nombre fonctions COOH en surface du polymère formé sur le nombre de fonctions COOH apportées par le monomère) pouvait atteindre jusqu'à 80%. Enfin, la morphologie des couches produites et déposées est contrôlée par les conditions de dépôt.

## Références bibliographiques

- [1] M. Tatoulian et al. (à paraître en 2006), "Deposition of Polyacrylic Acid Films at Atmospheric Pressure by Electro-Hydro Dynamic Atomisation in post-decharge".
- [2] Cloupeau M. and Prunet-Foch (1994), "Electrohydrodynamic Spraying Functioning Modes : a Critical Review" *J. Aerosol Sci.* **Vol.25**, N° 6, pp.1021-1036.
- [3] Keqi Tang and Alessandro Gomez (1996), "Monodisperse Electrosprays of Low Electric Conductivity Liquids in the Cone-Jet Mode" *Journal of Colloid and interface Science*, **Vol. 184**, N°645, pp. 500-511.
- [4] P. Ehouarn (2001), "Pulvérisation Electrohydrodynamique de liquide stabilisé par décharges électriques pour le traitement d'effluents particulières" *Thèse de l'université Paris Sud*.
- [5] A.M. Gañan-Calvo, J. Davila and A. Barrero (1997), "Current and droplet size in the electro spraying of liquids. Scaling laws" *J. Aerosol Sci.*, **Vol. 28**, N°2, pp. 249-275.
- [6] Hartman R.P.A. (1998), « Electrohydrodynamic atomization in the cone-jet mode » Netherlands, Thèse de l'Université de Delft.

# DETERMINATION DE LA MASSE VOLUMIQUE DE PARTICULES PRIMAIRES ET DE LA MASSE VOLUMIQUE EFFECTIVE DES AGREGATS DE SUIE

F.X. Ouf (1,2), C. Coursil (1,3), A. Coppalle (2), J. Vendel (1), M.E. Weill (2)

(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) *UMR 6614 CORIA, Université et INSA de Rouen, Avenue de l'université, B.P. 8, 76801 Saint-Etienne du Rouvray, France*

(3) *Centre d'Etudes et de Recherche en Thermique, Environnement et Système, Université Paris XII, 61 av. du Général De Gaulle, 94010 Créteil Cedex, France*

*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

Determination of primary particles density and soot aggregates effective density.

## ABSTRACT

The health impact of soot particles emitted by human activity justifies the large number of studies on this topic. By the way, the characterization of urban aerosol has underlined the major contribution of these particles to global urban pollution. However, the commercially available devices are not always well suited for the study of soot particles, especially when mass information is needed. The present study deals with the possibility to establish, from a number size distribution of soot particles, a mass size distribution. For this purpose, the knowledge of mass evolution versus diameter for soot aggregates is primordial. In this work, we have determined experimentally the relationship between soot effective density and aerodynamic/mobility diameters. In parallel to this study, a determination of bulk density of soot particles has been made, and comparison between this bulk density and the effective density of primary particles has underlined the reliability of our method. The results presented here deal with combustion aerosol emitted by three different fuels: acetylene, toluene and PMMA, and show promising results.

## RESUME

L'impact sanitaire des particules de suie émises par l'activité anthropique justifie actuellement un très grand nombre d'études. Ainsi, la caractérisation de l'aérosol urbain a mis en évidence une contribution majeure de ces particules à la pollution urbaine globale. Les dispositifs granulométriques couramment employés ne sont, en revanche, pas toujours adaptés à l'étude de ces particules, surtout lorsque l'on souhaite une caractérisation en termes de masse des agrégats de suie. La présente étude s'intéresse à la possibilité d'établir, à partir d'une distribution en nombre, une distribution en masse des particules de suie. Pour cela, la connaissance de la fonction d'évolution de la masse des agrégats en fonction de leur diamètre est primordiale. Dans ce travail, nous avons déterminé expérimentalement la relation existant entre la masse volumique effective des agrégats et leurs diamètres, à la fois aérodynamique et de mobilité électrique. En parallèle à cette étude, l'établissement de la masse volumique des particules primaires composant les agrégats de suie a été mené, et la comparaison entre cette masse volumique et la masse volumique effective des particules primaires a souligné la fiabilité de notre dispositif expérimental. Les résultats présentés portent sur des aérosols issus de la combustion de trois combustibles différents: l'acétylène, le toluène et le PolyMethyl MethAcrylate (PMMA), et se sont avérés particulièrement prometteurs.

## 1. Morphologie des particules de suie

La morphologie particulière des agrégats de suie rend difficile leur analyse à l'aide de dispositifs métrologiques couramment employés. En effet on assimile généralement, dans ces dispositifs, les particules étudiées à des sphères. Or une simple observation d'un agrégat à l'aide d'un microscope électronique suffit à souligner toute la complexité inhérente à l'étude de ces particules. Depuis les travaux de Jullien et Botet (1987), la morphologie de ces particules est assimilée à celle d'un objet fractal, et on peut alors relier le nombre de particules primaires  $N_p$  au diamètre de giration  $D_g$  et au diamètre des particules primaires  $D_p$  :

$$N_p = k_f \cdot \left( \frac{D_g}{D_p} \right)^{D_f} \quad (1)$$

On introduit à travers cette relation les caractéristiques fractales d'un agrégat : le préfacteur  $k_f$  et la dimension fractale  $D_f$  qui rend compte de la compacité de la particule. Cette relation fractale liant le nombre de particules primaire au diamètre de l'agrégat souligne bien l'erreur commise lors de la détermination de la masse des agrégats lorsqu'on les assimile à des objets sphériques. Dans ce but, on introduit généralement la notion de masse volumique effective afin d'intégrer la nature fractale des agrégats, et tout particulièrement le fait que la masse volumique de tels agrégats diminue lorsque leur taille augmente. On définit cette masse volumique effective à partir du diamètre de mobilité électrique  $D_m$ , qui est lié au diamètre de giration  $D_g$  des agrégats (Ouf *et al.*, 2005) :

$$\rho_e \propto D_m^{D_f-3} \quad (2)$$

Afin d'illustrer la nature singulière des particules de suie, nous représentons sur la Figure 1 l'évolution de cette masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité pour des agrégats de dimension fractale 1,8 et pour des particules sphériques.

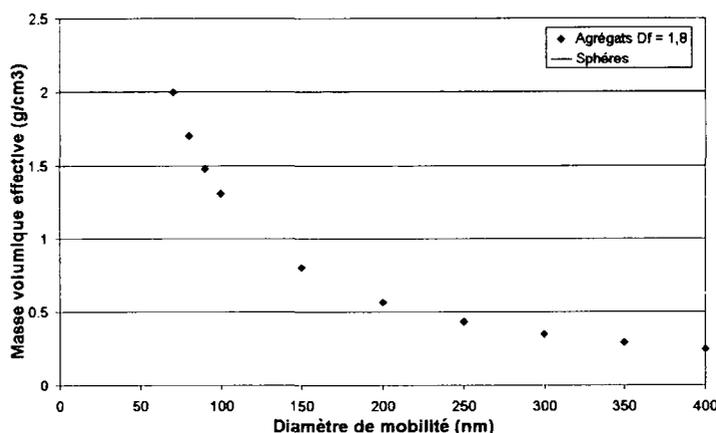


Figure 1 : Evolution de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité

Nous proposons dans ce document deux dispositifs expérimentaux permettant la détermination de la masse volumique réelle des particules primaires et de la masse volumique effective des agrégats en fonction de leur diamètre de mobilité.

## 2. Détermination expérimentale de la masse volumique des particules primaires

Le paramètre le plus aisément accessible n'est autre que la masse volumique des particules primaires composant les agrégats, masse volumique correspondant à la masse volumique réelle du matériau composant les particules de suie. Ces particules étant essentiellement composées de carbone amorphe on peut s'attendre à une masse volumique inférieure à celle du carbone sous forme graphite (2,2 g/cm<sup>3</sup>). Nous avons utilisé une méthode décrite en détail dans la norme ISO NF EN ISO 787-23, et nous présentons ici simplement les grandes lignes de cette approche. Cette dernière, basée sur le principe de la poussée d'Archimède, repose sur la détermination du volume d'un liquide déplacé par l'immersion d'une masse connue de particules. Le principe de cette mesure est présenté sur la Figure 2 et le protocole est constitué d'une pesée dans l'air ambiant du tube d'analyse ( $m_0$ ), d'une pesée de ce tube dans le liquide (éthanol) de déplacement ( $m_1$ ), puis d'une pesée d'un échantillon de particules dans l'air ( $m_2$ ), échantillon qui est ensuite compacté par centrifugation et pesé dans le liquide de déplacement ( $m_3$ ).

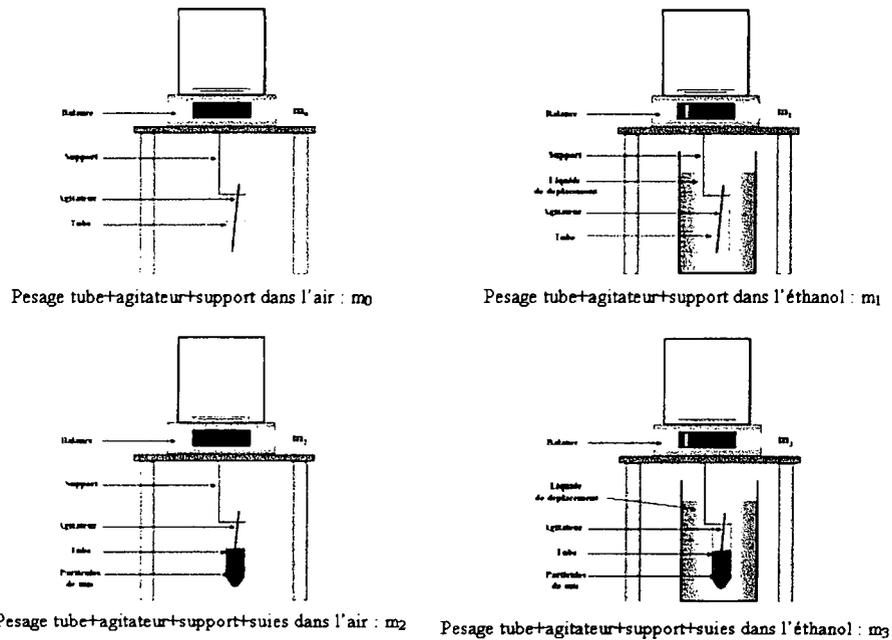


Figure 2 : Principe de détermination de la masse volumique des particules primaires

La masse volumique des particules analysées est alors de la forme :

$$\rho_{suies} = \frac{\rho_{\text{éthanol}} \cdot (m_2 - m_0)}{(m_2 - m_0) - (m_3 - m_1)}$$

Les résultats obtenus pour des particules de masse volumique connues (alumine  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , billes de verre) et pour des agrégats de suie sont synthétisés dans le Tableau 1. On retrouve des valeurs très cohérentes avec les données fournies par le fabricant des poudres de référence, et pour les agrégats on retrouve des valeurs de masse volumique proches des données rencontrées dans la littérature. Par ailleurs, cette masse volumique est inférieure à celle du graphite et cette différence s'explique par la structure interne des particules de suie qui apparaît peu ordonnée sur des clichés de microscopie électronique à haute résolution (Figure 3).

Tableau 1 : Résultats expérimentaux de masse volumique de particules

Nature	Masse volumique présente étude ( $\text{g/cm}^3$ ) ( $\pm 2\sigma$ )	Masse volumique de référence / littérature ( $\text{g/cm}^3$ )
Poudre $\text{Al}_2\text{O}_3$	3,90 (0,05)	3,95
Billes de verre	2,37 (0,10)	2,5
Agrégats acétylène	1,72 (0,11)	1,3 – 1,9
Agrégats toluène	1,46 (0,18)	1,3 – 1,9
Agrégats PMMA	1,52 (0,10)	-

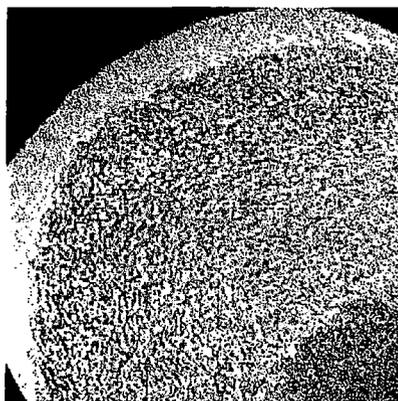


Figure 3 : Structure interne de particules primaires de PMMA

### 3. Détermination expérimentale de la masse volumique effective des agrégats

#### ➤ Base théorique et dispositif expérimental employé au cours de l'étude

La masse volumique effective n'est pas une grandeur exclusivement associée aux agrégats de suie et, par définition, elle permet de lier le diamètre aérodynamique au diamètre de mobilité électrique. C'est ce lien théorique que nous avons utilisé afin de déterminer la masse volumique effective. En effet, la mesure directe de la masse des agrégats de diamètre de mobilité électrique sélectionné étant difficile à réaliser (Ehara *et al.*, 1996, McMurry *et al.*, 2002, Park *et al.*, 2004) nous avons mis en œuvre un dispositif expérimental permettant la mesure en série du diamètre de mobilité électrique  $D_m$  et du diamètre aérodynamique  $D_a$  associé à une classe d'agrégats. Pour cela, on introduit tout d'abord le diamètre de masse équivalente  $D_{mae}$  correspondant au diamètre d'une sphère de même masse que la particule non-sphérique de facteur de forme  $\chi$ . On a alors une relation entre ce diamètre de masse équivalente et le diamètre de mobilité électrique :

$$D_m = \chi \cdot \frac{D_{mae} \cdot C_c(D_m)}{C_c(D_{mae})} \quad (3)$$

Le diamètre aérodynamique représentant le diamètre d'une sphère de masse volumique unitaire ( $\rho_0 = 1 \text{ g/cm}^3$ ) de même vitesse limite de chute que la particule réelle de masse volumique  $\rho_{pp}$ , on peut le définir aussi en fonction du diamètre équivalent en masse  $D_{mae}$  :

$$D_a^2 \cdot C_c(D_a) \cdot \rho_0 = \frac{D_{mae}^2 \cdot C_c(D_{mae}) \cdot \rho_{pp}}{\chi} \quad (4)$$

A l'aide de ces deux définitions on peut alors relier le diamètre de mobilité électrique  $D_m$  au diamètre aérodynamique  $D_a$  par la relation suivante :

$$D_a^2 \cdot C_c(D_a) \cdot \rho_0 = D_m^2 \cdot C_c(D_m) \cdot \frac{[C_c(D_{mae})]^2 \cdot \rho_{pp}}{[C_c(D_m)]^2 \cdot \chi^3} = \rho_e \cdot C_c(D_m) \cdot D_m^2 \quad (5)$$

La masse volumique effective  $\rho_e$  est donc définie telle que :

$$\rho_e = \frac{[C_c(D_{mae})]^2 \cdot \rho_{pp}}{[C_c(D_m)]^2 \cdot \chi^3} \quad (6)$$

On peut alors, connaissant le couple ( $D_a$ ,  $D_m$ ) pour une classe sélectionnée d'agrégat, déterminer la masse volumique effective de ces particules. Le dispositif expérimental associé à la détermination de la masse volumique effective des particules de suies est présenté sur la Figure 4 : il permet, de plus, de déterminer la dimension fractale des agrégats (Ouf *et al.*, 2005).

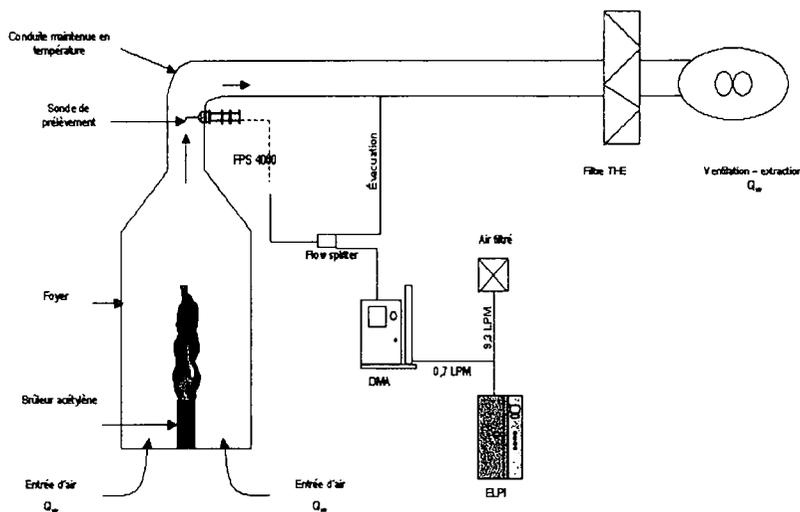


Figure 4 : Dispositif expérimental de détermination de la masse volumique effective

Il se compose d'un foyer d'environ 1 m<sup>3</sup> dans lequel les particules de suies sont produites à partir de différents combustibles. L'alimentation en air du foyer est imposée par un système de ventilation et le débit correspondant est compris entre 50 et 500 m<sup>3</sup>/h. Les agrégats de suie sont prélevés à l'aide d'une sonde isocinétique et d'un système de dilution à deux étages (DEKATI FPS 4000). On sélectionne un diamètre de mobilité électrique à l'aide d'un analyseur de mobilité (TSI DMA 3080L) et on mesure en sortie le diamètre aérodynamique médian correspondant, à l'aide d'un impacteur électrique basse pression ELPI (DEKATI).

➤ **Résultats expérimentaux de masse volumique effective de particules de suie**

Au cours de cette étude, quatre types de particules ont été étudiés, en premier lieu des particules sphériques de DOS (DiOctyl Sébacate) de masse volumique connue, afin de valider notre protocole et ensuite des particules de suie produites lors de la combustion d'acétylène, de toluène et de PolyMethyl MethAcrylate (PMMA). Les fonctions d'évolution de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique et du diamètre aérodynamique sont présentées sur la Figure 5.

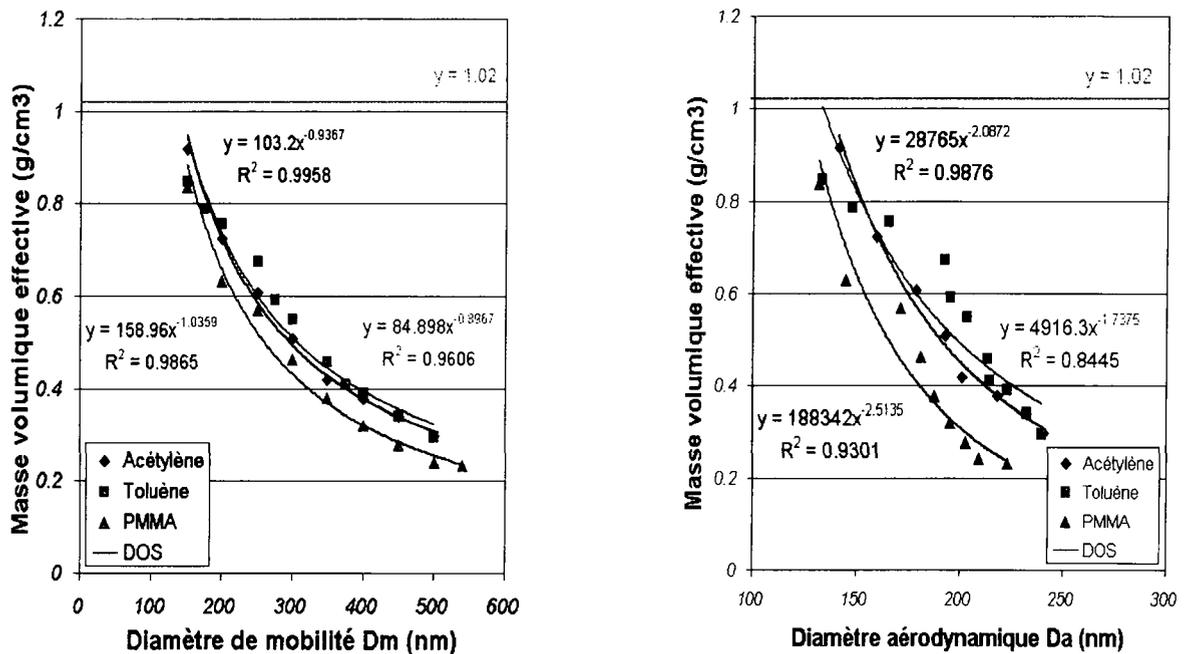


Figure 5 : Fonctions expérimentales d'évolution de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique D<sub>m</sub> (gauche) et du diamètre aérodynamique D<sub>a</sub> (droite).

Pour les particules sphériques de DOS, on retrouve une masse volumique effective constante de 1,02 g/cm<sup>3</sup> légèrement supérieure à la valeur attendue de 0,92 g/cm<sup>3</sup>. Pour les agrégats de suie, on retrouve bien la fonction d'évolution théorique attendue entre la masse volumique effective et le diamètre de mobilité. Par ailleurs on constate une évolution équivalente pour le diamètre aérodynamique des agrégats. On peut de plus, à partir de cette fonction d'évolution, déterminer la dimension fractale des agrégats : une discussion sur ce point est menée dans les travaux de Ouf *et al.* (2005).

**4. Discussions des résultats expérimentaux de masse volumique**

Nous venons de présenter deux méthodes de détermination de masse volumique, la première pour les particules primaires et la seconde pour la masse volumique effective des agrégats. Afin de souligner la fiabilité de notre méthode, nous allons comparer la masse volumique des particules primaires déterminée à partir de la fonction d'évolution de la masse volumique effective avec la masse volumique des particules primaires établie à l'aide de la méthode de déplacement de liquide. Dans la partie 3, nous avons montré qu'il existait une relation puissance entre la masse volumique effective et le diamètre de mobilité des particules. Après avoir appliqué une régression de type puissance, nous avons alors les relations suivantes :

- Particules de suie issues de la combustion d'acétylène :  $\rho = 103,2 \cdot D_m^{-0,9367}$  (7)
- Particules de suie issues de la combustion de toluène :  $\rho = 84,898 \cdot D_m^{-0,8967}$  (8)
- Particules de suie issues de la combustion de PMMA :  $\rho = 158,96 \cdot D_m^{-1,0359}$  (9)

La limite inférieure de cette fonction étant représentée par la masse volumique des particules primaires nous pouvons alors estimer à l'aide de cette fonction la taille de ces particules. Le diamètre des particules primaires est tout d'abord déterminé directement sur les clichés de microscopie électronique, et les récents travaux de Ouf *et al.* (2005) permettent de lier ce diamètre au diamètre de mobilité :

$$\frac{D_p}{D_m} = \beta \text{ avec, respectivement, pour l'acétylène, le toluène et le PMMA : } \beta = 0,8 ; 0,73 ; 0,6$$

La masse volumique effective des particules primaires est alors déterminée à l'aide des relations (7-9) et en intégrant le diamètre de mobilité ainsi déterminé. Les résultats sont synthétisés dans le Tableau 2 et sont comparés aux valeurs issues de la mesure par déplacement de liquide de la partie 2 qui apparaissent particulièrement cohérents.

Tableau 2 : Comparaison des résultats expérimentaux de masse volumique de particules

Combustible	D <sub>p</sub> (nm)	β	D <sub>m</sub> (nm)	ρ <sub>e</sub> (g/cm <sup>3</sup> )	ρ <sub>pp</sub> (g/cm <sup>3</sup> )
Acétylène	64	0,8	80	1,70	1,72
Toluène	70	0,73	96	1,42	1,46
PMMA	53	0,6	88	1,53	1,52

## Conclusions et perspectives

Au cours de cette étude, une méthode de détermination de la masse volumique des particules primaires a été mise en œuvre. La présente étude a, de plus, permis l'établissement de la fonction d'évolution de la masse volumique effective des agrégats de suie en fonction de leurs diamètres de mobilité et aérodynamique. Ces fonctions d'évolution se sont révélées comparables à celles attendues par la théorie fractale. Nous avons, de plus, étendu cette fonction d'évolution au cas des particules primaires, et la masse volumique effective ainsi déterminée s'est révélée cohérente avec la masse volumique réelle déterminée par déplacement de liquide. Cette approche, menée sur un aérosol de référence sphérique et sur des particules de suie issues de la combustion d'hydrocarbures, apparaît très prometteuse, et les perspectives envisageables sont nombreuses. Il serait ainsi intéressant de comparer la distribution granulométrique en masse déterminée à l'aide de cette fonction de masse volumique effective avec la granulométrie en masse réellement établie par un impacteur ANDERSEN. Sur ce point, des travaux permettant d'étendre la fonction d'évolution de la masse volumique à des agrégats de diamètres supérieurs à la limite du DMA sont à envisager (SMEC : Gensdarmes, 2000). On peut enfin envisager la détermination du diamètre des particules primaires à partir de la valeur de la masse volumique de ces particules et en appliquant la fonction d'évolution de la masse volumique effective.

## Références bibliographiques

- Ehara, K., Hagwood, C. and Coakley, K.J. (1996). Novel method to classify aerosol particles according to their mass-to-charge ratio – aerosol particle mass analyzer, *J. Aerosol Sci.*, 27, 217-234
- Gensdarmes, F. (2000). Le processus de charge électrique : des aérosols non radioactifs en milieu fortement ionisé, des aérosols radioactifs artificiels émetteurs bêta, *Thèse de doctorat, Université Paris XII*
- Jullien, R. and Botet, R. (1987). *Aggregation and fractal aggregates*, ISBN 9971-50-248-8
- McMurry, P.H., Wang, X., Park, K. and Ehara, K. (2002). The relationship between mass and mobility for atmospheric particles: a new technique for measuring particle density, *Aerosol Sci. Technol.*, 36, 227-238
- Ouf, F.X., Coursil, C., Coppalle, A., Vendel, J. et Weill, M.E. (2005). Comparaison de différentes méthodes de détermination des caractéristiques fractales d'agrégats de suie, *21<sup>ème</sup> Congrès Français sur les Aérosols*
- Park, K., Kittelson, D.B. and McMurry, P.H. (2004). Structural properties of diesel exhaust particles measured by transmission electron microscopy (TEM): relationships to particle mass and mobility, *Aerosol Sci. Technol.*, 38, 881-889

# DETERMINATION EXPERIMENTALE DE L'INDICE DE REFRACTION DE PARTICULES DE SUIE DANS L'INFRAROUGE

F.X. Ouf (1,2), A. Coppalle (2), J. Vendel (1), M.E. Weill (2), J. Yon (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 determination of soot refractive index in the infrared.

## ABSTRACT

The study of physical properties of soot particles produced during combustion is a complex subject but of a great interest within the framework of the study of the safety of an installation, with respect to the fire hazard. These characteristics are, in this case, particularly useful in order to predict the behaviour of containment barriers in situation of fire, but also in order to estimate the contribution of these particles to radiative transfers. The aim of this study is to determine the radiative properties of soot particles produced during combustion. A specific device, which establishes extinction and vertical-vertical scattering coefficients, has been developed and has allowed to determine the refractive index of soot particles in the infrared. This determination also needed the establishment of size distribution and morphological properties of soot aggregates.

We present in this document the experimental device developed, and the validation of this device on latex spheres which optical properties are well known. First results of extinction coefficients will be presented and will underline the similar optical behaviour of different soot aggregates. Values of refractive index will be detailed and discussed, and a direct application of these values will be carried out in order to determine the soot volume fraction. A comparison with reference method will underline the efficiency of our method.

We will conclude on the validity of the information brought by this device and on the prospects of this study. A discussion is included, on the utility of mean values of refractive index and on the determination of total emissivity of soot particles.

## RESUME

L'étude des propriétés physiques des particules de suie produites lors de la combustion est un sujet complexe mais d'un grand intérêt dans le cadre de l'étude de la sûreté d'une installation vis-à-vis du risque d'incendie. Ces caractéristiques sont dans ce cas particulièrement utiles pour prédire le comportement des barrières de confinement en situation d'incendie mais aussi afin d'estimer la contribution de ces particules aux transferts radiatifs. L'objectif de la présente étude est la détermination des propriétés radiatives des particules de suie produites lors de la combustion. Pour cela, un banc spécifique, permettant l'établissement des coefficients d'extinction et de diffusion vertical-vertical, a été mis au point et a permis de déterminer l'indice de réfraction dans l'infrarouge des agrégats de suie. Cette détermination a, de plus, nécessité l'établissement de la distribution granulométrique et des caractéristiques morphologiques des agrégats de suie.

Nous présentons dans ce document le dispositif expérimental développé ainsi que sa validation sur des billes de latex dont les propriétés optiques sont parfaitement connues. Des résultats bruts de coefficient d'extinction sont aussi présentés, et soulignent le comportement optique très proche des agrégats issus de différents combustibles. Les valeurs d'indice de réfraction sont ensuite détaillées et discutées et une application directe de cette grandeur est menée afin de déterminer la fraction volumique en particules de suie. Une comparaison avec une méthode de référence de détermination de la fraction volumique est effectuée et souligne la très bonne cohérence des informations apportées par ce dispositif.

Nous concluons sur la validité des informations apportées par ce dispositif et sur les perspectives de cette étude. Une réflexion est menée sur l'utilisation des valeurs moyennes d'indices à des agrégats issus d'autres combustibles et sur la détermination de l'émissivité totale des particules de suie.

## 1. Morphologie des particules de suie

Les particules de suie sont en réalité des agrégats de particules primaires de quelques dizaines de nanomètres de diamètre (Figure 1). La structure complexe de ces agrégats a longtemps rendu difficile leur étude et il a fallu attendre que le concept d'objet fractal soit introduit afin de 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 morphologie fractale des particules de suie rend compte de leur complexité ; ainsi, on peut relier le nombre de particules primaires de l'agrégat  $N_p$  au diamètre  $D_g$  de ces particules primaires par la relation suivante (Jullien et Botet, 1987) :

$$N_p = k_f \left( \frac{D_g}{D_p} \right)^{D_f}$$

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

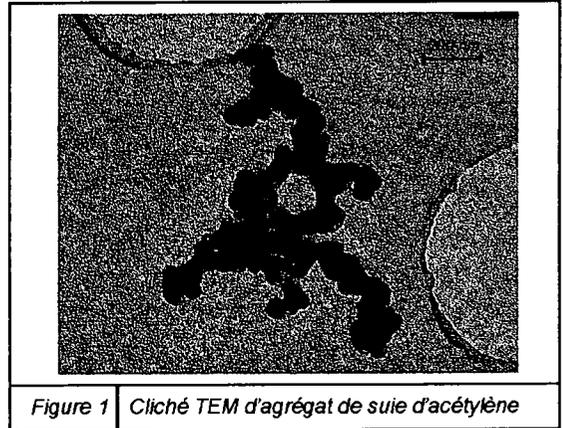


Figure 1 Cliché TEM d'agrégat de suie d'acétylène

## 2. Principe de détermination de l'indice de réfraction des particules de suie

La détermination de l'indice de réfraction repose sur une méthode d'inversion de données visant à comparer les propriétés optiques établies expérimentalement à ces mêmes propriétés estimées à partir d'un code de calcul fondé sur la théorie de Rayleigh. La première phase de détermination de l'indice de réfraction consiste en l'établissement expérimental des coefficients d'extinction et de diffusion dans le plan vertical – vertical des particules de suie. La principale difficulté réside dans la sensibilité du dispositif expérimental et tout particulièrement dans la faiblesse des signaux d'extinction et de diffusion dans l'infrarouge. Ce dispositif, dénommé EXSCA pour Extinction-SCattering, présenté sur la figure 2, est composé d'une cellule multi-passages d'extinction, d'une cellule de diffusion et permet la détermination des coefficients d'extinction et de diffusion des particules de suie à deux longueurs d'onde : 632 et 1064 nm.

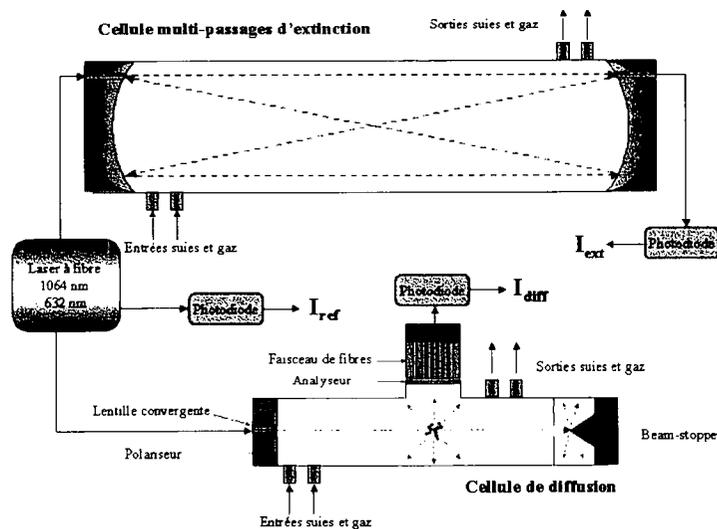


Figure 2. Schéma descriptif du dispositif EXSCA de détermination des propriétés optiques

Tout d'abord pour l'extinction, la cellule multi-passages permet d'obtenir plusieurs mètres de trajet optique à partir d'une cellule d'un mètre et permet ainsi d'établir le coefficient d'extinction dans l'infrarouge. Pour déterminer le coefficient d'extinction, on mesure le signal incident de référence que l'on compare au signal éteint, le coefficient d'extinction est alors défini à l'aide de la loi de Beer-Lambert.

Pour la diffusion, la mesure est plus complexe car elle nécessite un étalonnage reposant sur un aérosol dont la production peut être maîtrisée et dont les propriétés d'extinction et de diffusion sont connues. Nous avons utilisé pour étalonner la cellule de diffusion des billes de latex (Duke Scientific) de 200 nm dont les signaux de diffusion sont sensiblement supérieurs au bruit de fond de la cellule. Une validation de la méthode d'étalonnage a été menée en calculant à partir d'un code de calcul fondé sur la théorie de Rayleigh et de Mie et en comparant les coefficients d'extinction ainsi calculés aux coefficients mesurés à l'aide du banc EXSCA. Les résultats de cette phase de validation de la méthode d'étalonnage sont présentés sur la figure 3.

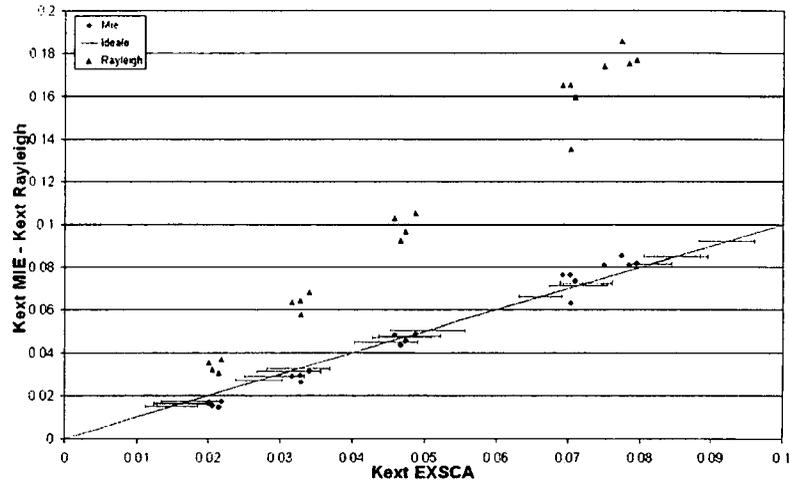


Figure 3. Validation du protocole d'étalonnage du dispositif EXSCA sur des billes de latex

On voit ainsi que notre protocole de validation et le calcul fondé sur la théorie de Mie donne des valeurs cohérentes de coefficients d'extinction avec les données expérimentales apportées par le banc EXSCA, et que ce protocole est utilisable afin d'étalonner la cellule de diffusion.

La seconde phase de la détermination de l'indice de réfraction des particules de suie repose sur l'estimation des coefficients d'extinction et de diffusion de ces particules à l'aide d'un code de calcul fondé sur la théorie de Rayleigh-Debye-Gans, appliquée aux Agrégats Fractaux (RDG-FA, Koylu and Faeth, 1993). Nous détaillons ici le principe de ce calcul dont les données d'entrée sont la distribution granulométrique déterminée à l'aide d'un SMPS, les caractéristiques morphologiques des agrégats  $D_f$ ,  $k_f$  et  $D_p$  ainsi qu'un indice de réfraction initial supposé  $m$ . La première phase du calcul consiste en la détermination des sections efficaces d'absorption  $C_a^p$ , de diffusion verticale-verticale  $C_{vv}^p$ , diffusion  $C_d^p$  et d'extinction  $C_e^p$  des particules primaires qui sont telles que :

$$C_a^p = \frac{\pi^2 \cdot D_p^3 \cdot E(m)}{\lambda} \quad C_{vv}^p = \frac{\pi^4 \cdot D_p^6 \cdot F(m)}{4 \cdot \lambda^4} \quad C_d^p = \frac{2\pi^5 \cdot D_p^6 \cdot F(m)}{3 \cdot \lambda^4} \quad C_e^p = C_a^p + C_d^p$$

Avec :

$\lambda$  : longueur d'onde (nm)

$E(m)$  et  $F(m)$  : fonctions de l'indice telles que  $E(m) = \text{Im}\left(\frac{m^2-1}{m^2+2}\right)$   $F(m) = \left|\frac{m^2-1}{m^2+2}\right|^2$

La distribution granulométrique en diamètre de giration est ensuite déterminée à partir de la distribution granulométrique en mobilité électrique issue du SMPS et à partir de la relation issue des travaux de Rogak *et al.* (1990) et est de la forme :  $D_g = \beta \cdot D_m$  ( $1,0 < \beta < 1,6$ ). A partir de cette distribution granulométrique en diamètre de giration, on étend les sections efficaces d'une particule primaire à celles de l'agrégat à l'aide de la RDG-FA et qui sont alors de la forme :

$$C_g = N_p \cdot C_a^p \quad C_{vv}^g = N_p^2 \cdot C_{vv}^p \cdot f \quad C_d^g = N_p^2 \cdot C_d^p \cdot g \quad C_e^g = C_a^g + C_d^g$$

Avec :

$f$  et  $g$  : facteurs de forme intégrant la morphologie ( $D_f$  et  $k_f$ ) de l'agrégat.

Les coefficients d'extinction et de diffusion vertical-vertical sont alors calculés en appliquant ces sections efficaces aux classes de la distribution granulométrique, et ces coefficients sont alors comparés aux coefficients expérimentaux estimés à partir du dispositif EXSCA. A l'aide d'un logiciel d'inversion, on effectue

des itérations successives afin de déterminer l'indice de réfraction permettant de faire converger les coefficients numériques vers les coefficients expérimentaux. La figure 4 détaille le protocole de détermination de l'indice de réfraction et la phase d'inversion des données recueillies.

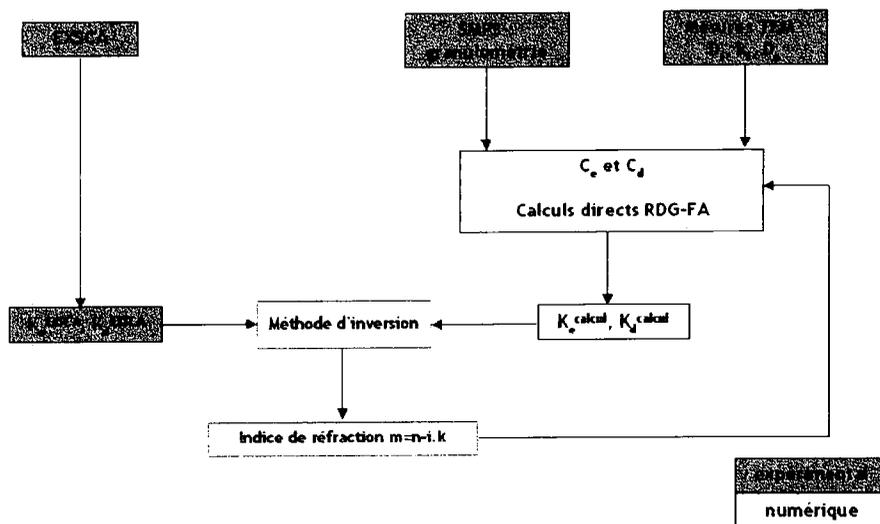


Figure 4. Schéma descriptif du protocole de détermination de l'indice de réfraction des particules de suie

### 3. Résultats expérimentaux de détermination de l'indice de réfraction

Nous présentons sur la figure 5 les coefficients d'extinction fournis par le banc EXSCA en fonction de la concentration massique en particules de suie mesurées par un *Tapered Element Oscillating Microbalance* (TEOM). On voit à travers cette représentation qu'il existe un lien très fort entre ce coefficient d'extinction et la masse de particules en présence. On remarque, de plus, que ce lien est le même pour les trois combustibles, soulignant ainsi des propriétés d'extinction proches pour les particules de suie issues des trois combustibles.

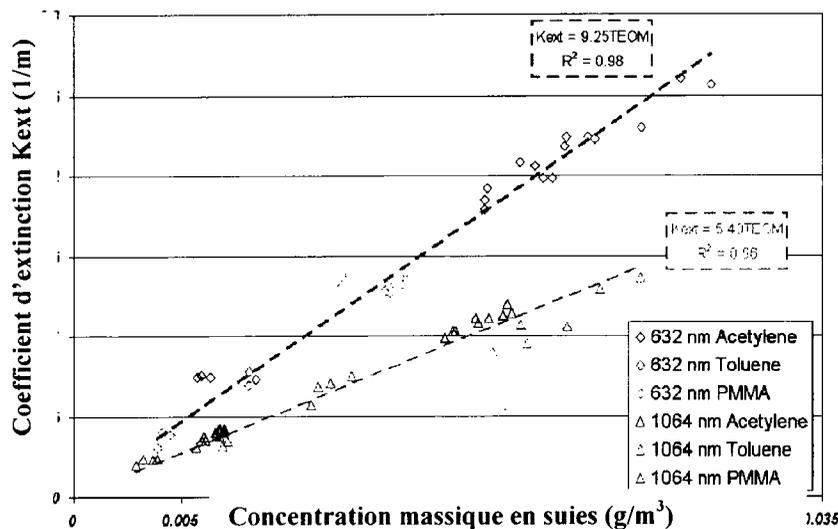


Figure 5. Evolution du coefficient d'extinction en fonction de la concentration massique de suies

Le tableau 1 présente les propriétés des agrégats produits par l'acétylène, le toluène et le PMMA, et utilisées dans la méthode d'inversion. On retrouve dans ce tableau de synthèse les valeurs de dimension fractale  $D_f$ , de préfacteur  $k_f$ , de diamètre des particules primaires  $D_p$  ainsi que le rapport  $\beta$ . De plus amples informations sur les moyens de détermination de ces caractéristiques sont disponibles dans les travaux de Ouf *et al.* (2005a, b).

Tableau 1. Synthèse des caractéristiques morphologiques utilisées pour l'inversion des données

Combustible	Débit (m <sup>3</sup> /h)	D <sub>r</sub>	k <sub>r</sub>	D <sub>p</sub> (nm)	β
Acétylène	450	1,85	2,31	66	1,5
	100	1,93	1,68	64	1,5
Toluène	450	1,86	1,89	52	1,5
	100	1,81	2,62	70	1,5
PMMA	450	1,78	2,84	42	1,5
	100	1,74	2,63	53	1,5

Les résultats d'indice de réfraction pour les différents combustibles sont présentés dans le tableau 2, pour deux conditions de ventilation et pour les deux longueurs d'onde d'étude.

Tableau 2. Résultats d'indice de réfraction des particules de suie

λ (nm)	Fuel	Flow (m <sup>3</sup> /h)	Real part n	Imaginary part k
<b>632</b>	Acétylène	450	1,55 ± 0,05 ▲	0,55 ± 0,09 ▲
		100	1,63 ± 0,19 ▲	0,69 ± 0,05 ▲
	Toluène	450	1,49 ± 0,28 ▲	0,63 ± 0,04 ▲
		100	1,30 ± 0,18 ▲	0,56 ± 0,08 ▲
	PMMA	450	1,62 ± 0,19 ▲	0,62 ± 0,11 ▲
		100	1,69 ± 0,11 ▲	0,67 ± 0,14 ▲
<b>1064</b>	Acétylène	450	1,72 ± 0,11 ◆	0,89 ± 0,20 ◆
		100	1,75 ± 0,19 ◆	1,05 ± 0,25 ◆
	Toluène	450	1,73 ± 0,13 ◆	0,88 ± 0,30 ◆
		100	1,44 ± 0,22 ◆	0,69 ± 0,25 ◆
	PMMA	450	1,75 ± 0,19 ◆	0,88 ± 0,17 ◆
		100	1,73 ± 0,26 ◆	0,76 ± 0,12 ◆

Tout d'abord, si on compare les indices de réfraction aux deux longueurs d'onde et pour chaque combustible on obtient des valeurs d'indice plus importantes pour 1064 nm. Cette évolution de l'indice est cohérente avec l'évolution théorique calculable à partir de relations de dispersion. Ensuite, si on compare les valeurs obtenues pour les différents combustibles, on observe assez peu de différences pour les deux longueurs d'onde. L'effet du combustible apparaît donc assez négligeable, et nous introduisons une valeur moyenne de l'indice de réfraction pour chacune des longueurs d'onde :

- $m = 1,55 - 0,62.i$  à 632 nm
- $m = 1,74 - 0,86.i$  à 1064 nm

#### 4. Détermination de la fraction volumique de particules de suie

Afin de valider la méthode de détermination de l'indice de réfraction, nous comparons la fraction volumique déterminée à l'aide du coefficient d'absorption avec une fraction volumique de "référence". Cette fraction volumique de référence est déterminée à partir de la concentration massique mesurée à l'aide d'une microbalance TEOM, et à partir de la masse volumique des particules primaires (Ouf *et al.*, 2005b) :

$$F_{vTEOM} = \frac{C_{massiqueTEOM}}{\rho_{pp}} = \text{Volume occupé par les agrégats}$$

On compare cette fraction volumique avec la fraction volumique "optique" définie à partir du coefficient d'absorption :

$$F_{vEXSCA} = -\frac{\lambda}{6\pi E(m)} \cdot K_{abs}$$

Nous présentons sur la figure 6 la comparaison entre ces deux fractions volumiques, comparaison qui souligne la très bonne cohérence entre ces informations. On retrouve, à partir de nos mesures de coefficient d'extinction couplées aux valeurs d'indice déterminées, une fraction volumique "optique" à près de 20 % de la fraction volumique de référence. Cette phase permet ainsi d'apporter plus de poids aux valeurs d'indice établies et, par la même occasion, de souligner la possible application des valeurs moyennes d'indice présentées dans la partie 3 à des agrégats de suie issues d'autres combustibles.

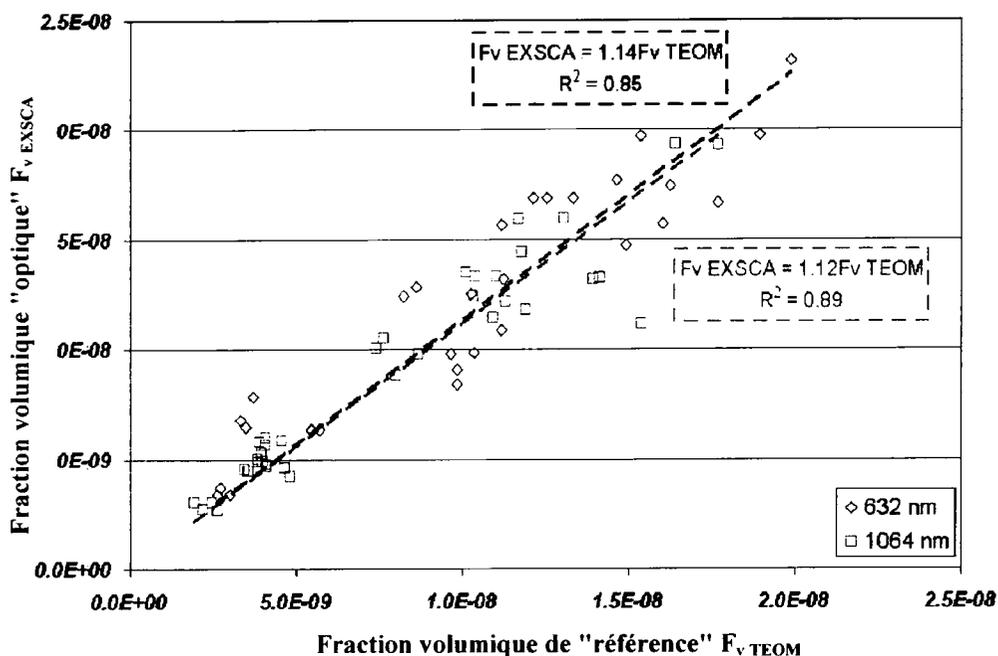


Figure 6. Comparaison de la fraction volumique EXSCA avec la fraction volumique de référence TEOM

## **Conclusions et perspectives**

Au cours de cette étude, un dispositif expérimental de détermination de la partie réelle et imaginaire de l'indice de réfraction des particules de suie a été mis en œuvre. Ce protocole repose sur une méthode d'inversion basée sur la RDG-FA, nécessitant la connaissance des caractéristiques physiques des agrégats étudiés : distribution granulométrique et morphologie. L'indice de réfraction de particules de suie produites par différents combustibles a ensuite été déterminé et les résultats ont souligné la relative cohérence des indices existant entre les combustibles. La nature du combustible ne semble donc pas avoir un effet significatif sur cet indice de réfraction et nous avons alors déterminé un indice moyen de  $m=1,55-0,62.i$  à 632 nm et de  $m=1,74-0,86.i$  à 1064 nm. Afin de confirmer la fiabilité des valeurs d'indice de réfraction obtenues, une comparaison entre la fraction volumique calculée à partir de ces indices et la fraction volumique réelle des particules de suie a été effectuée.

Les perspectives de ce travail concernent tout d'abord la détermination des propriétés radiatives des agrégats de suie et tout particulièrement l'établissement, à l'aide de relations de dispersion, de l'émissivité totale de ces particules. Il serait de plus intéressant d'étudier l'effet d'échelle en menant des expérimentations à grandeur réelle et ainsi étudier la représentativité des informations issues de cette étude analytique. Le dernier point d'étude pourrait enfin porter sur le développement d'un dispositif permettant l'établissement des propriétés optiques des suies sur une large gamme de longueur d'onde afin de minimiser l'incertitude induite par l'utilisation des relations de dispersion.

## **Références bibliographiques**

- Jullien, R., Botet, R. (1987). *Aggregation and fractal aggregates*, ISBN 9971-50-248-8
- Köylü, U.O. and Faeth, G.M. (1993). Radiative properties of flame-generated soot, *Journal of Heat Transfer*, 115, 409-417
- Ouf, F.X., Coursil, C., Géhin, E. et Vendel, J. (2005a). Comparaison de différentes méthodes de détermination des caractéristiques fractales d'agrégats de suie, *21<sup>ème</sup> Congrès Français sur les Aérosols*
- Ouf, F.X., Coursil, C., Coppalle, A., Vendel, J. et Weill, M.E. (2005b). Détermination de la masse volumique de particules primaires et de la masse volumique effective des agrégats de suie, *21<sup>ème</sup> Congrès Français sur les Aérosols*
- Rogak S.N. and Flagan R.C. (1990). Stokes drag on self-similar clusters of spheres, *Journal of Colloid and Interface Science*, 134, 206-218
- Van-hulle, P., Talbaut, M., Weill, M. and Coppalle, A. (2000). Inversion method and experiment to determine the soot refractive index: application to turbulent diffusion flames, *Measurement Science and Technology*, 13, 375-382

# Etudes des résonances morphologiquement dépendantes.

*J. Ducastel, L. Méès, G. Gouesbet et G. Gréhan*

Laboratoire d'Electromagnétisme et Systèmes Particulaires  
UMR 6614/ CNRS-INSA et Université de Rouen  
Avenue de l'Université  
76800 Saint Etienne du Rouvray.  
[ducastel@coria.fr](mailto:ducastel@coria.fr)

**Résumé :** La mesure des propriétés de gouttes en cours d'évaporation est un défi qui exige le développement de techniques de mesure performantes. Parmi celles-ci la caractérisation des gouttes en taille et indice de réfraction à partir des Résonances Morphologiquement Dépendantes (MDR en anglais) est particulièrement attractive car applicable à des gouttes de petites dimensions.

## **Introduction.**

Pour brûler un combustible liquide, celui-ci est le plus souvent introduit sous la forme d'un nuage de petites gouttelettes appelé spray. Durant les dernières décennies un effort important a été dédié à la compréhension de l'évolution de tels sprays, essentiellement en relation avec l'accroissement de la production d'énergie et la réduction de la formation des polluants. Cependant ces efforts ont été limités à des mesures géométriques comme la vitesse et la taille des gouttes. Actuellement, un défi important est de mesurer aussi des quantités thermo-chimiques comme la température et la composition de gouttes en écoulement. Pour atteindre cet objectif différentes techniques ont été développées ou sont en cours de développement, chacune avec ses avantages et ses limitations, chacune avec une sensibilité différente aux gradients internes à la goutte en fonction du principe physique sur laquelle la technique est basée.

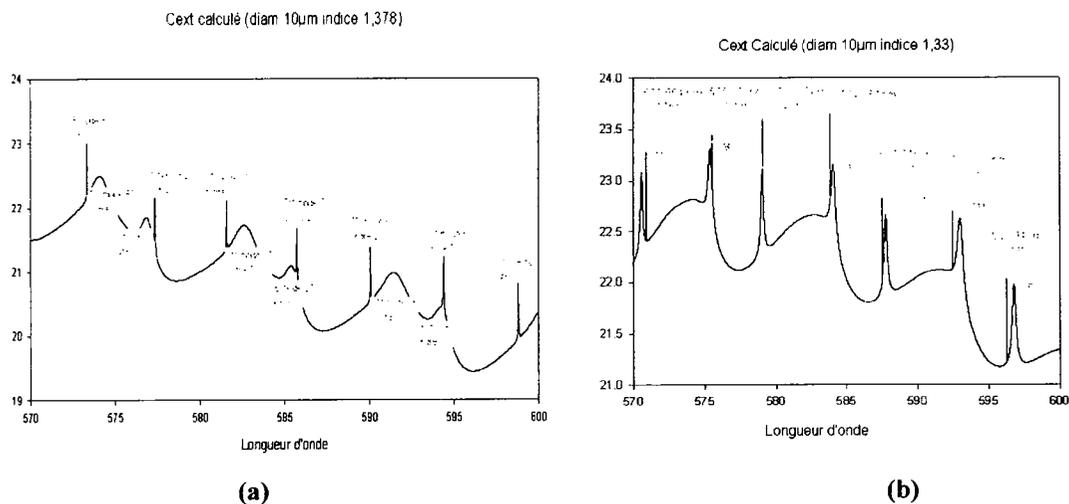
Sans être exhaustif, nous pouvons mentionner les techniques dites : LIF, Infra-rouge, arc-en-ciel et MDR comme potentiellement aptes à extraire des informations thermo-chimiques du rayonnement émis par des gouttelettes.

La technique LIF, ou plus précisément la technique LIF à deux bandes, est basée sur le rapport de l'émission de fluorescence de deux bandes spectrales avec une sensibilité différente à la température. Cette technique est développée par F. Lemoine et al à Nancy [1]. Les simulations numériques montrent que la technique LIF donne une information qui dépend principalement de la température au centre de la goutte. Les techniques infra-rouge donnent accès à la température de surface [2]. La réfractométrie d'arc-en-ciel mesure une température qui dépend du gradient en surface de la goutte mais, appliquée à des gouttes individuelles, les oscillations hautes fréquences du « ripple » limitaient jusqu'alors son application à des gouttes d'une taille supérieure à 100  $\mu\text{m}$  [3]. Un traitement du signal dans le cadre de la théorie de Nussenzveig permet de s'affranchir de cette limitation [4]. Au contraire, les MDRs, comme rapporté par R.K. Chang et A.J. Campillo [5], permettent la mesure de la taille et de l'indice de réfraction de très petites particules (par exemple entre 2 et 4  $\mu\text{m}$  dans les expériences de R. Pastel et A. Struthers [6]).

Cet article est dédié à la mesure du couple taille/indice de réfraction par MDRs. La section 2 est un rappel du comportement théorique des MDR. La section 3 présente et valide un code d'inversion basé sur ces comportements. La section 4 présente un exemple de réalisation expérimentale. La section 5 est une conclusion de ce travail préliminaire.

## Rappels théoriques

Les objets sphériques, cylindriques ou de forme approchante, sont des cavités optiques, caractérisées par des modes résonants. Ces modes se caractérisent par une longueur d'onde et une robustesse aux variations de cette longueur d'onde (largeur spectrale) et un coefficient d'efficacité. Ils dépendent de la forme, de la taille et de l'indice de réfraction de la particule. Elles ont été mises en évidence pour la première fois par Ashkin et Dziedzic en 1976[7] lors d'expériences de pression de radiation. Dans le cas d'une interaction élastique lumière/particule sphérique, les MDRs se traduisent par une augmentation de la section efficace de diffusion pour des valeurs précises de la longueur d'onde. Cette augmentation s'accompagne d'une augmentation de la lumière diffusée, des forces de pression de radiation mais surtout de l'intensité des champs internes à la particule. Les MDRs se manifestent par une augmentation de l'efficacité de diffusion, et pour une émission à l'intérieur de la particule d'émission aux longueurs d'onde de résonance : des pics dans le spectre d'émission ou un effet laser.

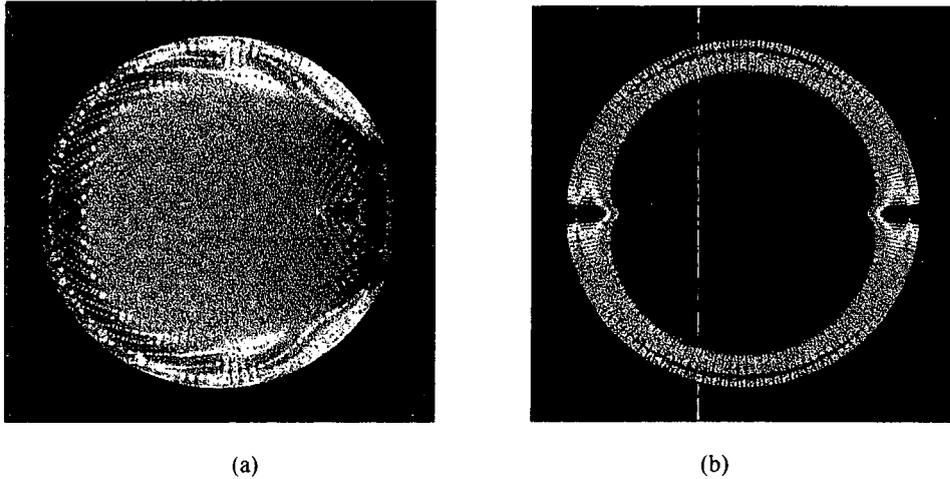


**Figure 1:** Evolution de la section efficace d'extinction en fonction de la longueur d'onde.  
 $D=10 \mu\text{m}$ . (a)  $m=1.378$  (b)  $m=1.33$

La figure 1 a été calculée avec un pas en longueur d'onde permettant de simuler la résolution du spectromètre utilisé. Cette figure met en évidence deux familles de pics : une famille de pics étroits et une famille de pics larges. Mathématiquement, ces pics correspondent à des minima du dénominateur complexe des coefficients de diffusion  $a_n$  ( $c_n$ ) et  $b_n$  ( $d_n$ ), respectivement connus comme Transversal Magnétique (TM) et Transversal Electrique (TE). Pour le champ interne à la goutte ces minima se traduisent par un nombre entier de maxima d'intensité le long de la demi-périphérie de la goutte (le mode noté  $n$ ) et par un nombre entier de maxima d'intensité le long d'un rayon de la goutte (l'ordre noté  $l$ ). Ainsi la résonance  $TE_{63,2}$  crée 63 maxima d'intensité le long d'un demi-périmètre et 2 maxima d'intensité le long d'un rayon. La figure 2 présente le champ interne correspondant au premier pic de la figure 1b. Dans un spectre, la position ainsi que l'amplitude de ces résonances est une fonction du rayon de la particule et de son indice de réfraction. Les règles suivantes organisent les résonances :

1. Pour un même mode, plus l'ordre est bas, plus la résonance est étroite
2. En fonction de la longueur d'onde, les résonances s'organisent par mode décroissant pour un même ordre
3. Pour un même mode et un même ordre la résonance TM est localisée à une longueur d'onde inférieure à la résonance TE.

4. Dans le voisinage d'une longueur d'onde donnée, les résonances les plus étroites sont toujours d'un mode plus élevées que les plus larges
5. La distance entre deux résonances TE ou deux résonances TM de même ordre et de modes consécutifs ( $j$  et  $j+1$ ) ne dépend, en première approximation, que du diamètre de la particule.



**Figure 2 :** Champ interne à une sphère. Cas (b) de la figure 1. (a) Champ interne d'une sphère de diamètre  $10\mu\text{m}$  et d'indice de réfraction 1,33 à la longueur d'onde  $570,554\text{nm}$  en polarisation TE avec domination de la MDR TE mode 1<sup>er</sup> ordre 2. (b) Contribution du terme  $d_{61}$  de la série de Mie correspondante. Nous observons 61 lobes sur une demi-circumférence décomposables en deux lobes le long d'un rayon.

### Codes d'inversion

Un programme d'inversion, basé sur les règles énumérées dans la section précédente a été écrit. Actuellement ce code est limité aux particules homogènes mais il pourra évoluer pour traiter des cas plus complexes, comme les particules avec gradients ou avec une inclusion non-centrée. Il fonctionne sur le principe d'un balayage de toutes les solutions possibles dans une gamme d'indice. De multiples tests (s'appuyant sur les caractéristiques propres aux MDR – voir section précédente - ) sont effectués lors du déroulement de l'algorithme, ceci afin de réduire le temps de calcul. Il est important de souligner qu'un algorithme robuste et suffisamment souple pour être modifié a été préféré à une optimisation du temps de calcul (ce dernier restant très raisonnable – de quelques secondes à quelques dizaines de secondes pour traiter le cas de grosses particules avec un processeur Intel Pentium 4 de 1,5GHz).

**Première étape :** elle consiste à identifier tous les pics de résonances et à les classer en fonction de leur largeur à mi-hauteur. Soulignons que les pics les plus fins, à la limite de résolution du spectromètre, ne sont pas pris en compte. Ainsi pour la figure 1b deux familles de pics sont identifiées, correspondant à : *Première famille :* [position (largeur à mi-hauteur)], Pic 1 :  $570,554\text{nm}$  ( $0,17\text{nm}$ ), Pic 2 :  $579,033\text{nm}$  ( $0,21\text{nm}$ ), Pic 3 :  $587,775\text{nm}$  ( $0,25\text{nm}$ ), Pic 4 :  $596,794\text{nm}$  ( $0,30\text{nm}$ ), *Deuxième famille :* [position (largeur à mi-hauteur)], Pic 1 :  $575,386\text{nm}$  ( $0,28\text{nm}$ ), Pic 2 :  $584,057\text{nm}$  ( $0,33\text{nm}$ ), Pic 3 :  $593,003\text{nm}$  ( $0,38\text{nm}$ ).

**Deuxième étape :** il est impossible a priori de savoir à quelle famille (TE ou TM) correspondent les pics identifiés. Le calcul attribue aux familles le type TE ou TM, et le choix du type correct est effectué en testant la cohérence des résultats.

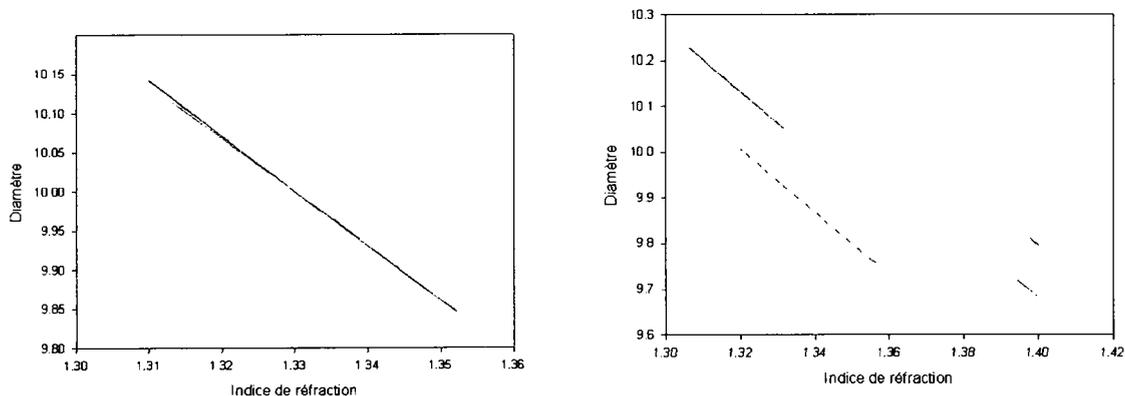
**Troisième étape :** à l'aide des formules asymptotiques introduites par Lam et al [8], une première estimation du couple diamètre/indice est réalisée. Cette première estimation permet de restreindre le domaine d'étude.

**Quatrième étape :** les mêmes calculs de position et de largeur des MDRs que dans l'étape 3 sont effectués mais dans le cadre de la théorie de Lorenz-Mie plus gourmande en temps de calcul.

**Cinquième étape :** retour à l'étape 2, mais maintenant la première famille est supposée TM et la seconde TE.

**Sixième étape :** si plus de deux familles, retour à l'étape 2 pour le prochain couple de famille de largeur à mi hauteur du même ordre de grandeur.

Lorsque tous les couples de familles ont été explorés, le programme propose des couples potentiellement solutions (couple indice et taille de particule). Les figures 3a et 3b correspondent aux couples solutions pour le spectre de la figure 1b.

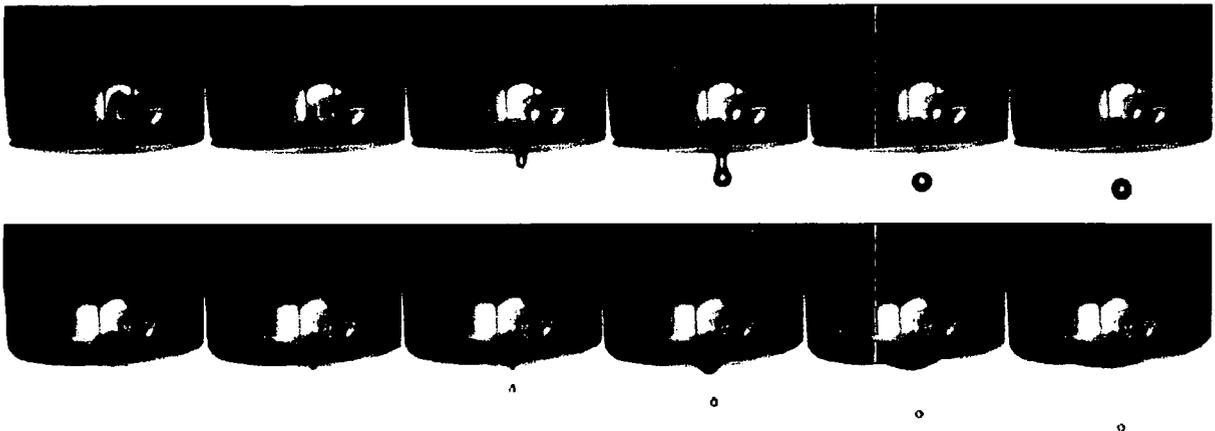


**Figure 3 :** couples de solutions proposées par le programme d'inversion. Figure 3a la 1<sup>ère</sup> famille est supposée TE et la seconde TM. Figure 3b la 1<sup>ère</sup> famille est supposée TM et la seconde TE.

La concordance des couples solutions entre les familles 1 et 2 n'existe que lorsque la 1<sup>ère</sup> famille est supposée TE. L'ensemble des couples solutions possibles correspond à une bande d'une « épaisseur » d'environ 1 nm comprise entre 9.98 et 10.05 µm pour le diamètre et 1.3275 et 1.3335 pour l'indice de réfraction. C'est à dire que la précision de la mesure correspond à environ 2% pour l'indice de réfraction et 1% pour le diamètre. De plus les pics ont tous été correctement nommés par le code.

### Résultats expérimentaux

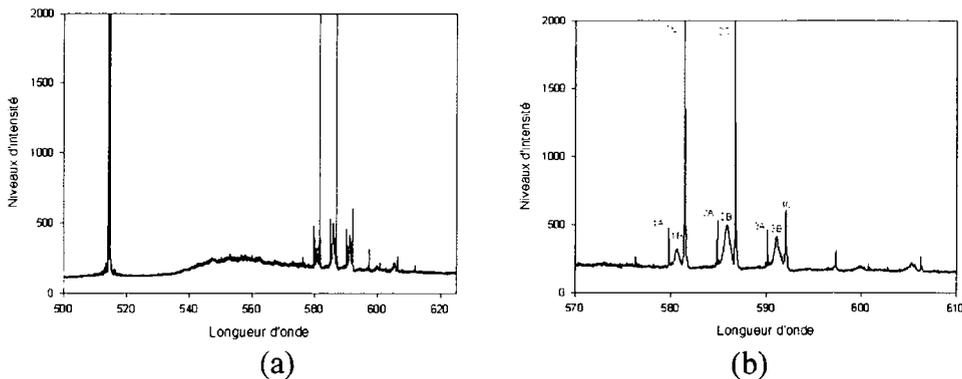
Une chaîne de mesure des MDRs émises par des gouttes dopées en rhodamine 6G a été réalisée. Elle se compose d'un laser d'excitation, d'un générateur de gouttes monodispersées, et d'un spectromètre. Le laser utilisé est un Argon-Ion Spectra Physic 2016, émettant dans le vert sur la longueur d'onde 5145 Angströms afin d'exciter le colorant. Le générateur de gouttes est de MICRODROP, basé sur l'excitation d'une céramique piézoélectrique. La taille nominale des gouttes créées est de 60 µm. Cependant en adaptant les caractéristiques du pulse d'excitation (tension et durée) des jets de gouttes monodispersées d'un diamètre de l'ordre de 10 µm ont été obtenus.



**Figure 4 :** Exemple de gouttes monodispersées réalisées avec le générateur de gouttes. En haut le diamètre de la goutte est de 54  $\mu\text{m}$ . En bas le diamètre de la goutte est de 17  $\mu\text{m}$ .

Le spectromètre est un spectromètre imageur de la compagnie ACTON RESEARCH CORPORATION. Il s'agit du modèle SpectraPro758, équipé d'une caméra CCD 2D de chez ROPER SCIENTIFIC. La fente d'entrée du spectromètre détecteur est placée à 90 degrés du faisceau laser qui excite les gouttes. Un spectre représentatif des enregistrements effectués est donné figure 5. Sur la figure 5a, trois régions peuvent être distinguées :

- Un pic isolé centré sur 514.5 nm. Ce pic correspond au rayonnement émis par le laser d'excitation
- Une bande d'émission large, typiquement entre 540 et 600 nm. Cette bande correspond à l'émission de la rhodamine 6G.
- Une série de pics de largeur variable entre 580 et 610 nm. Cette série de pics est typique d'une émission fluorescente dans une micro-cavité. L'analyse de ces pics nous permet de mesurer la taille et l'indice de réfraction des gouttelettes.

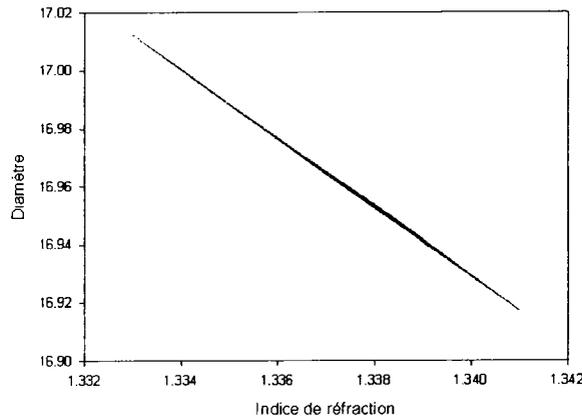


**Figure 5:** Exemple de spectres expérimentaux enregistrés. (a) Le spectre complet. (b) Zoom de la figure 5-a. Les trois familles de pics sélectionnées pour l'exploitation sont identifiées par les lettres A, B et C

Le traitement des ces trois familles de pics est effectué à l'aide de l'algorithme précédemment introduit. La recherche des MDRs a été limitée à une gamme d'indices de réfraction comprise entre 1.3 et 1.5, avec un pas de calcul égal à 0.001. Une erreur de positionnement des pics de 0.3  $\text{\AA}$  est acceptée. Cette étude permet de conclure que:

- Le spectre de la figure 5b correspond uniquement à des pics de mode transversal magnétique.

- Ces pics sont identifiés comme d'ordre 3, 4 et 5 (ordre 3 pour la famille A, 4 pour la famille C et 5 pour la famille B).
- La figure 6 propose l'ensemble des solutions compatibles avec ce spectre expérimental. Le diamètre est compris entre 16.92 et 17.01  $\mu\text{m}$  tandis que l'indice est compris entre 1.333 et 1.341.



**Figure 6 :** L'ensemble des solutions compatibles avec le spectre de la figure 5b.

**Conclusion :** Un algorithme d'exploitation des spectres MDR à été écrit et validé sur des simulations numériques effectuées dans le cadre de la théorie de Lorenz-Mie. Une chaîne d'enregistrement des spectres émis par des gouttes individuelles (au sens hydrodynamique, voir figure 4) a été réalisée. Aujourd'hui, le traitement des signaux obtenus permet la mesure de l'indice de réfraction avec une précision de 0.01, précision à laquelle est associée une incertitude sur la taille de 0.01  $\mu\text{m}$  pour des gouttes d'une dizaine de microns de diamètre. La prochaine étape de ce travail consistera à utiliser un laser pulsé afin de travailler sur un spray polydispersé, non linéaire.

**Remerciements :** Les auteurs tiennent à remercier la communauté Européenne pour son soutien dans le cadre du programme **MUSCLES G4RD-CT-2002-00644**.

### Références

- [1] Lavieille P. ; Lemoine, F. ; Lebouché M. (2002) Experimental investigation on interacting low evaporating droplets temperature in linear stream using two colors laser induced fluorescence, *Combustion Science and Technology* 174 (4) : 117-142
- [2] C. Amiel, Application de techniques optiques à l'étude du comportement dynamique et thermique de gouttes en interaction avec une paroi chauffée, Thèse de PhD, Toulouse : Ecole Nationale Supérieure de l'Aéronautique et de l'Espace, 2003
- [3] N. Damaschke, Light scattering theories and their use for single particle characterization, PhD, Technische Universität Darmstadt, 3 December 2003.
- [4] S. Saengkaew, Y. Biscos, N. Garcia, T. Charinpanitkul, H. Vanisri, G. Lavergne, G. Gouesbet, L. Méès, G. Gréhan, Processing of rainbow signals from individual droplets., *ILASS 2005*, 5-7 Septembre 2005, Orléans, pp 87-92.

- [5] R.K. Chang and A.J. Campillo, in "Optical processes in microcavities", World Scientific, 1996
- [6] R. Pastel, A. Struthers, Measuring evaporation rates of laser-trapped droplets by use of fluorescent morphology-dependent resonances, *Applied Optics*, vol 40, n 15, pp 2510-2514 (2001).
- [7] A. Ashkin, J.M. Dziedzic, Observation of a new nonlinear photoelectric effect using optical levitation, *Applied Physics Letters*, 36, 1976, 267—270
- [8] C.C. Lam, P.T. Leung, K. Young. Explicit asymptotic formulas for the positions, widths, and strengths of resonances in Mie scattering. *J. Opt Soc. Am. B* Vol. 9, No.9 / 1992.

# Interaction entre une impulsion ultra-brève et un milieu fortement diffusif : comparaisons simulations-expériences

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

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. Un code de diffusion multiple basé sur la méthode de Monte Carlo permettant la description de l'interaction d'un nuage dense de particules avec une impulsion de durée arbitraire a été construit. Le code a atteint sa phase de maturité et permet de dégager des configurations expérimentales optimales. Les impulsions femtosecondes sont générées par un système constitué d'un oscillateur Ti :Sa et d'un amplificateur régénératif (100 fs, 1kHz, 1 mJ @800 nm). Les mesures, à travers des milieux étalons de latex, de l'évolution temporelle de la lumière transmise (diffusion avant) par le milieu sont effectuées par autocorrélation optique. Les résultats mettent en évidence un pic principal lié aux photons balistiques et un second pic lié aux photons diffusés. L'écart temporel entre les deux est clairement relié à la taille des particules, ce qui nous permet d'élaborer une stratégie d'inversion de la granulométrie et de la concentration en particules de milieux denses. Des comparaisons simulations-expériences sont menées.

## 1 Introduction

Les techniques optiques sont largement employées pour la caractérisation des milieux diphasiques, sprays ou particules solides en écoulement. Cependant, dès lors que le milieu sondé est dense, ces techniques échouent. La limitation principale réside dans le fait que les phénomènes de diffusion multiple deviennent dominants et brouillent l'information véhiculée par les processus de diffusion simple, utilisée par la méthode de mesure.

Il existe aujourd'hui des sources laser 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 (optiquement épais). En effet, l'utilisation d'un éclairage pulsé et d'une détection résolue en temps permet d'observer séparément les phénomènes de diffusion. Il est ainsi possible d'isoler temporellement les photons directs (balistiques) des photons diffusés. Mais au delà de ces premiers photons détectés qui contiennent une information facilement inversible sur le milieu traversé, les photons diffusés se répartissent différemment dans le temps en fonction des caractéristiques du milieu diffusant (concentration et granulométrie).

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 [1]) ou un nuage de particules (diffusion multiple, méthodes de Monte-Carlo [2,3]). Ces études, théoriques et expérimentales, jusqu'alors basées sur l'hypothèse d'un éclairage continu, ont alors été étendues aux impulsions brèves, 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.

Un code de Monte Carlo généraliste, permettant de simuler la propagation d'une telle impulsion et d'étudier les répartitions d'intensité temporelles détectées dans un milieu optiquement épais, a été construit. Il utilise les caractéristiques optiques de diffusion simple décrivant l'interaction entre une particule et un pulse de durée arbitraire obtenues par la théorie de Lorenz-Mie [4-6] ou par les séries de Debye [7] qui pour une particule unique permettent d'isoler les différents modes de propagation de la lumière quand celle-ci la traverse. Ce code 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 [8-13]. Si une inversion classique de type Beer-Lambert semble suffisante pour les petites particules (autour de 1  $\mu\text{m}$ ), le code montre tout son intérêt pour les grosses particules

(50-150  $\mu\text{m}$ ) car il permet une étude fine sur l'influence des différents modes diffusion et de mettre en évidence un pic principal lié aux photons balistiques et un second pic lié aux photons diffusés. L'écart temporel entre les deux est clairement relié à la taille des particules, ce qui nous permet d'élaborer une stratégie d'inversion. La section 2 décrit sommairement la méthode.

Le code a atteint sa phase de maturité et permet de dégager des configurations expérimentales optimales de la chaîne femtoseconde acquise récemment par le CORIA. Les impulsions femtosecondes sont générées par un système constitué d'un oscillateur Ti:Sa et d'un amplificateur régénératif (1kHz, 1 mJ @800 nm). Les milieux étalons sondés (latex) sont constitués d'une solution aqueuse de microbilles de polystyrène en forte concentration. Les mesures de l'évolution temporelle de la lumière transmise (diffusion avant) par le milieu sont effectuées par auto-corrélation optique. La section 3 décrit l'expérience. Résultats expérimentaux et numérique sont confrontés dans la section 4. La section 5 conclut cet article.

## 2 Le code de simulation

La méthode de Monte-Carlo est une des méthodes permettant la résolution de l'équation de transfert radiatif. Le programme de Monte-Carlo développé au laboratoire procède à partir de calculs rigoureux sur la diffusion simple (théorie de Lorenz-Mie). 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. 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, en moyenne dans les calculs de ce travail 50 millions de photons par cas sont tirés).

Le principe est le suivant : on considère un milieu d'épaisseur physique  $L$ . Un très grand nombre de photons sont lancés à travers ce milieu avec un retard initial nul. Pour chaque photon, une distance de collision est établi par rapport un probabilité de collision (tirage aléatoire). Le devenir de ce photon est alors soumis à une probabilité d'absorption ou de diffusion. Une nouvelle direction est attribuée au photon, une nouvelle distance de collision est alors déterminée (nouveau tirage aléatoire) et ainsi de suite. Chaque photon est ainsi suivi dans son déplacement à travers le milieu jusqu'à ce qu'il soit absorbé ou qu'il sorte du milieu. Chaque photon sortant est alors soumis à une condition de détection : angle de diffusion dans un certain intervalle ou calcul de collision avec un détecteur de position et de taille fixés. Chaque photon détecté se voit alors attribué un temps, qui correspond au retard qu'il a accumulé le long de son parcours au grés des collisions qu'il a subi. Le temps zéro correspond au temps de vol minimum des photons, celui des photons dits balistiques qui ne subissent aucune collision. Les autres photons sont détectés avec des temps positifs. Le retard temporel des photons est ici évalué simplement, à partir des distances parcourue entre chaque collision. On néglige par conséquent les retards éventuellement subit par les photons lors de l'interaction avec une particule. Cette hypothèse est valable quand les dimensions des particules diffusantes sont petites. Une taille critique peut-être déterminée en fonction de la durée de l'impulsion incidente (résolution temporelle). Dans le cas de particules plus grosse (au delà de  $10\mu\text{m}$  pour une impulsion de 100 fs) une technique de monté Carlo plus sophistiquée a été développée. Les retards dus aux interactions avec les particules sont alors pris en compte en utilisant des fonction de phase spatio-temporelle pour décrire les phénomènes de diffusion simple. Ces fonctions de phase sont calculées par théorie de Mie ou préférablement à l'aide de séries de Debye [13]. La taille des particules considérées ici sont de l'ordre du micron se qui ne justifie pas l'utilisation de cette version élaborée du code.

La configuration des simulations est décrite sur la figure 2. Le milieu est constitué de particules sphérique (polystyrène) dans de l'eau. La longueur du milieu est  $L=5\text{mm}$ , l'épaisseur optique constante et égale à 8, le détecteur est situé à une distance  $L_1=20\text{ cm}$  du milieu et la dimension du détecteur est  $a=5\text{mm}$ .

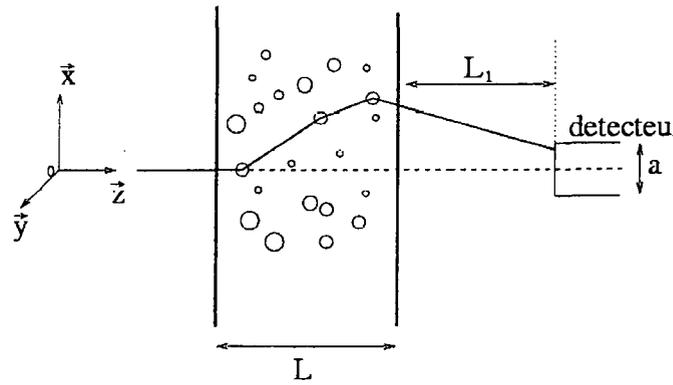


Figure 2 : Schéma de la configuration de simulation.

Sur la figure 3, les intensités détectées sont calculées pour différentes concentration d'un solution de latex. Le diamètre des particules est de  $1.53\mu\text{m}$ , leur indice de réfraction  $1.58 \cdot 10^{-3}$  i (l'indice de l'eau étant 1.33). Les courbes de la figure 3 montre clairement 3 régimes différents, selon la concentration du milieu en particule. le détecteur est défini de tel sorte que l'angle de collection des photons diffusé est de  $5^\circ$ .

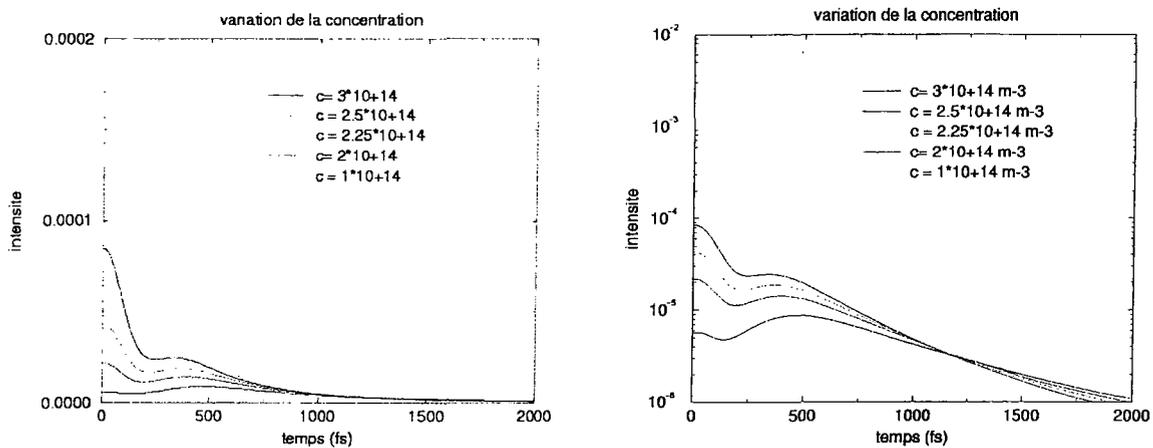


Figure 3.a : Signal lumineux transmis en fonction de temps à travers un milieu test d'épaisseur 5mm et de concentration variable. Les particules de polystyrène ont un diamètre de  $1.53\mu\text{m}$  et leur indice de réfraction est  $1.58 \cdot 10^{-3}$  i. les échelles sont linéaires à gauche, logarithmique pour l'intensité à droite.

Pour les milieux les moins concentrés, le signal diffusé est composé principalement d'un pic, centré sur le temps zéro, correspondant aux photons balistiques. Les photons diffusés apparaissent à des temps plus important, sous la forme d'un pic d'intensité très inférieur à celle du premier. Pour des concentration plus importante, l'intensité du premier pic diminue avec le nombre décroissant de photons balistiques pour devenir progressivement du même ordre que l'intensité du second pic qui elle aussi décroît mais beaucoup moins rapidement. Pour les concentrations les plus importantes considérées ici, l'intensité des photons balistiques devient négligeable devant celle des photons diffusés. Notons que les concentrations considérées figure 3.a correspondent à des épaisseurs optiques très importante comme indiqué dans le tableau suivant :

Concentration en $\text{m}^{-3}$	épaisseur optique correspondante (s.u)
$1.10^{+14}$	2.827962
$2.10^{+14}$	5.655924
$2.25.10^{+14}$	6.362914
$2.5.10^{+14}$	7.069904
$3.10^{+14}$	8.483886

L'épaisseur optique  $K$  d'un milieu est définie par le rapport entre intensité transmise sans collision (photons balistiques) et l'intensité incidente :

$$\frac{I}{I_0} = e^{-K}$$

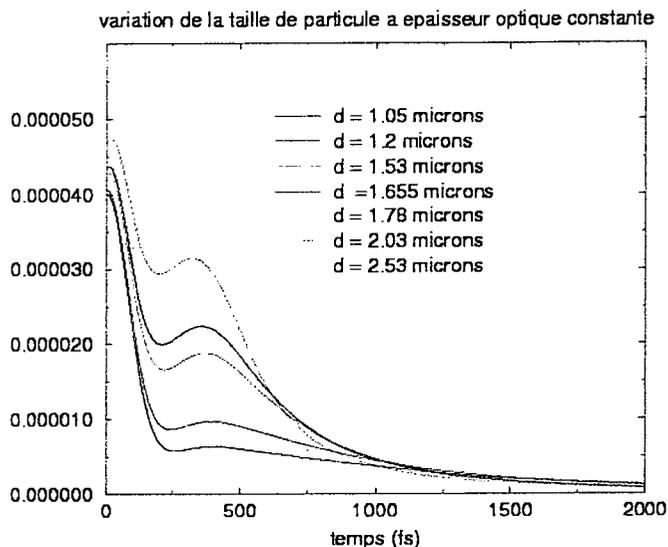


figure 3.b : intensité transmise en fonction du temps pour différentes taille de particules.

La figure 3.b montre, qu'à épaisseur optique constante, l'intensité du second pic (photons diffusés) varie fortement avec la taille des particules constituant le milieu. La position de ce pic dépend également, dans une moindre mesure de cette taille.

### 3 Le dispositif expérimental

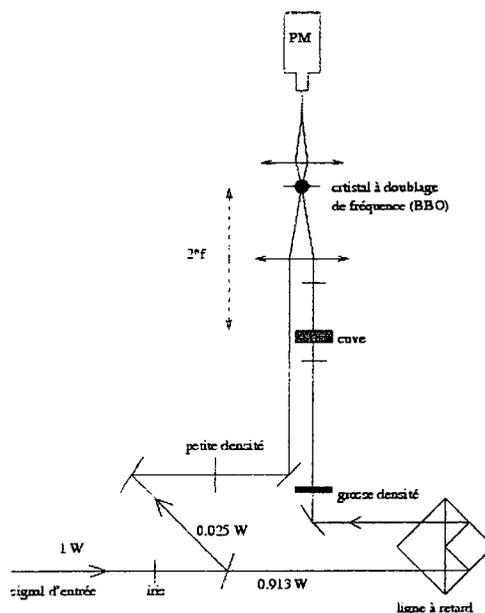


Figure 4 : Montage expérimental.

Les impulsions femtosecondes sont produite par un amplificateur régénératif (100 fs, 1mJ par impulsion, @800nm, 1kHz), injecté par un oscillateur Ti:Sa. Les mesures de lumière diffusée vers l'avant sont effectuées par corrélation optique entre une impulsion de référence qui est balayée temps (par une ligne à retard, figure 4) avec l'impulsion diffusée par des milieux étalons dont l'épaisseur

optique peut atteindre 20, soit un rapport entre intensité directement transmise et intensité incidente de  $e^{-20} \approx 2 \cdot 10^{-9}$ . Les milieux étalons sont constitués de particules de latex calibrées de  $1.0 \mu\text{m}$  de diamètre en solution dans de l'eau, le tout contenu dans une cuve en verre de  $5 \text{ mm}$  d'épaisseur. Les particules de latex ont pour indice de réfraction complexe  $1.58 - 0.001i$  et la concentration volumique en particules varie entre  $0.132\%$  et  $0.29\%$  (soit des épaisseurs optiques variant de  $17.0$  à  $37.3$ ). la cuve est placée à la distance focale  $f$  de la lentille convergente ( $f=15 \text{ cm}$ ). Les deux impulsions (référence et sonde) sont focalisé dans un cristal BBO, distant de  $f$  de la lentille. Le doublage de fréquence issu de la superposition des deux impulsion est ensuite séparée spatialement des contributions issu d'un seul des deux faisceau (montage non colinéaire). Enfin, Un Photo Multiplicateur (PM) permet de mesurer l'intensité du signal doublé en fonction du décalage temporelle entre les impulsions référence et sonde. La tension délivré par le PM En fonction de l'intensité du faisceau sonde à fait l'objet d'une calibration qui n'est pas détaillée ici.

## 4 Résultats

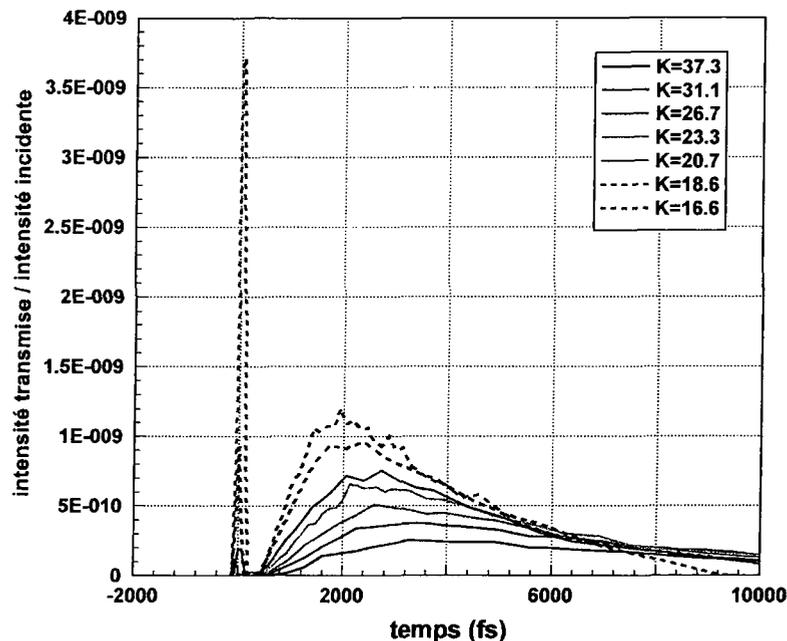


figure 5 : Intensité transmise mesurée à travers le milieu optiquement dense en fonction du temps ; pour différentes épaisseurs optiques.

Les trois régimes mis en évidence par les calculs dans la section 2 sont retrouvé expérimentalement. Pour les 3 concentration les plus faible, le pic d'intensité correspondant aux photons balistique est mesuré. La valeur du maximum d'intensité de ce pic doit théoriquement permettre d'évaluer la concentration du milieu. En terme d'épaisseur optique, on constate alors une erreur de 6 à 16% entre les concentrations supposées du milieu (déduites de dilution successive d'une solution calibrée) et les valeur obtenue à partir des 3 courbes de la figure 5 présentant un pic ballistique. Ces résultats peuvent probablement être améliorés mais il reste cependant encourageant, étant donné qu'aucune autre technique optique ne permet aujourd'hui d'obtenir une information dans des milieux aussi concentrés. Pour le second pic, correspondant à la lumière diffusé les vérification passe nécessairement par l'utilisation d'un code de simulation. Il faut toute fois noté que les conditions expérimentales différent des conditions adoptées dans les calculs la section 2. Outre la taille des particules qui modifie peu les comportements, la principale différence est l'angle de collection qui pour l'expérience a été estimé à  $0.2^\circ$ , contre  $5^\circ$  pour les simulations de la section 2. En conséquence les photons diffusés sont beaucoup moins nombreux et le basculement entre les différents régimes se trouve translaté vers des valeurs de concentration (épaisseur optique) plus importante (autour de 20 pour l'expérience, 3 fois moins dans les calculs de la section 2). Les comparaisons avec les simulations numériques s'avèrent alors plus compliquées, car le nombre de photons qu'il faut envoyer pour obtenir un résultat statistiquement correct par la méthode de Monté Carlo, croit fortement avec l'augmentation de l'épaisseur optique, ainsi qu'avec la diminution de l'angle de collection. Ceci se traduit par une

augmentation considérable des temps de calculs. Les comparaisons précises entre résultats numériques et résultats expérimentaux devront donc être menées dans un futur proche.

## 5 Conclusions

Ces premiers résultats expérimentaux confirment notre capacité à isoler les photons balistiques des photons diffusés par le milieu par une résolution temporelle de la mesure. Ils confirment également que l'évolution temporelle du signal mesuré dans une direction donnée contient une information sur la concentration et la granulométrie des particules dont la forte densité optique du milieu n'interdit pas l'observation. Les résultats expérimentaux sont qualitativement conformes aux résultats numériques. Cette première étude devra être complétée par une étude plus quantitative. Certains points restent en effet à vérifier, comme l'origine des écarts entre les concentrations mesurées par le pic balistique et celle obtenue, d'après les conditions de dilution, qui pose question, tout comme la concentration de la solution initiale. Dans l'avenir, le code de calcul devrait permettre d'affiner des paramètres expérimentaux difficile à mesurer précisément, comme l'angle de collection. Pour résoudre les difficultés liées aux temps de calcul, la mise au point d'une méthode semi-monté carlo devra probablement être envisagée.

## Références bibliographiques

- [1] G. Gouesbet et G. Gréhan. *Generalized Lorenz-Mie, from past to future*. *Atomization and Spray*, 10 (3-5):277-333, (2000).
- [2] 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).
- [3] 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).
- [4] K.S. Shifrin and I.G. Zolotov. *Quasi-stationary scattering of electromagnetic pulses by spherical particles*. *Appl. Optics*, 33, 7798-7804, (1994).
- [5] L. Méès, G. Gouesbet and G. Gréhan. *Scattering of laser pulses plane wave or focused Gaussian beam by spheres*. *Appl. Optics*, 40, 2546-2550, (2001).
- [6] L. Méès, G. Gouesbet and G. Gréhan. *Time-resolved scattering diagrams for a sphere illuminated by plane wave and focused short pulses*. *Optics Comm.*, 194:59-65, (2001).
- [7] G. Gouesbet. *Debye series formulation for generalized Lorenz-Mie theory, with the Bromwich method*. *Particle&Particle Systems Characterization*, 20, 382-386, (2004).
- [8] 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 Comm.*, 220, 237-245, (2003).
- [9] G. Gouesbet, L. Méès, C. Rozé, T. Girasole and G. Gréhan. *Diagnostic par laser pulsé femtoseconde en diffusion simple et multiple : application aux diagnostics particuliers*. Conférence plénière invitée, Congrès SFT, Presqu'île de Giens, France, 25-28 mai 2004.
- [10] C. Rozé, T. Girasole, G. Gréhan, L. Méès, L. Hespel and A. Delfour. *Time-resolved propagation of femtosecond pulses in a dense scattering media : Monte Carlo direct method*. *Proceedings of the 7th international congress on Optical Particle Characterization*, Kyoto, Japan, 1-5 august 2004.
- [11] L. Hespel, A. Delfour, C. Rozé, T. Girasole, G. Gréhan and L. Méès. *Time-resolved propagation of femtosecond pulses in a dense scattering media : particle sizing by inversion of spatio-temporal diagrams*. *Proceedings of the 7th international congress on Optical Particle Characterization*, Kyoto, Japan, 1-5 august 2004.
- [12] C. Calba, T. Girasole, C. Rozé and L. Méès. *Diffusion d'une impulsion ultra-brève par un milieu fortement diffusif*. 20<sup>ème</sup> congrès français sur les aérosols CFA 2004, Paris, 7-8 décembre 2004.
- [13] C. Calba, C. Rozé, T. Girasole and L. Méès. *Monte Carlo simulation of the interaction between an ultra short pulse and a dense scattering medium: case of large size particles*. *Soumis à Optics Comm.*

# Détermination de modèles de dépôt d'aérosols dans un réseau de fissures

T. Gelain\*, T. Lequette, J. Vendel.

Institut de Radioprotection et de Sûreté 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

Determination of aerosol deposition models in a crack network

## ABSTRACT

The objective of this study is to determine an aerosol deposition model in cracks. Many experiments of retention in cracked concrete wall were performed for different aerosol sizes (1  $\mu\text{m}$  and 4  $\mu\text{m}$ ).

However, the studied deposition domain doesn't allow determining a deposition model in according to the experimental results and, the use of an aeraulic crack width is not really coherent with aerosol correlations.

So, experiments with 60 nm aerosols were performed to reach the diffusional domain. In this domain, we can use only the diffusional deposition correlation and we can determine "geometric" crack characteristics.

After, in using these crack parameters, we can determine an experimental correlation describing aerosol deposition in cracks for different deposition domains.

## RESUME

Cette étude a pour but d'élaborer un modèle de dépôt d'aérosols dans une fissure. Plusieurs essais de rétention d'aérosols ont été réalisés sur une paroi en béton fissurée pour des tailles d'aérosols de 1  $\mu\text{m}$  et 4  $\mu\text{m}$  ; cependant le domaine de dépôt ciblé ne permet pas de déterminer un modèle de dépôt concordant avec les résultats expérimentaux et, par ailleurs, l'utilisation d'une ouverture équivalente aéraulique ne s'avère pas forcément cohérente avec ce type de corrélation.

Ainsi des essais avec des aérosols de 60 nm ont été réalisés dans le but de cibler le domaine diffusif auquel s'applique une loi de dépôt bien spécifique à partir de laquelle il est possible de déterminer des caractéristiques "géométriques" de la fissure.

Dès lors, à partir de ces nouveaux paramètres, nous pouvons déterminer une corrélation expérimentale permettant de décrire le dépôt des aérosols dans une fissure dans différents domaines de dépôt.

## INTRODUCTION

Dans le cadre de l'évaluation de la sûreté d'une installation nucléaire, une étude est menée à l'IRSN concernant les transferts de polluants au travers des barrières de confinement statique fissurées.

Cette étude, qui a trait autant au contexte des réacteurs qu'à celui des laboratoires et usines, doit permettre, à terme, de modéliser le transfert d'un mélange air-vapeur-aérosols au travers d'une paroi fissurée, dans le cas d'un hypothétique accident mettant en jeu ces trois composants.

De ce fait, une approche en 4 phases a été mise au point pour aboutir à cet objectif :

1. modélisation des écoulements aérauliques au travers d'une paroi fissurée,
2. modélisation du transfert des aérosols, en air sec, au travers d'une paroi fissurée,
3. modélisation du transfert d'un mélange diphasique air-eau (liquide-vapeur) au travers d'une paroi fissurée,
4. modélisation du transfert d'un mélange air-vapeur (liquide-vapeur)-aérosols au travers d'une paroi fissurée.

La première phase a permis de déterminer les caractéristiques de la fissure de manière aéraulique, ce qui, moyennant l'hypothèse d'une longueur de fissure égale à l'épaisseur de la paroi et la détermination mécanique (curvimètre) de l'étendue de cette fissure, nous a conduit à une ouverture équivalente aéraulique de  $49,2 \mu\text{m}$  (Gelain 2004).

## RAPPELS SUR LES ESSAIS DE PENETRATION DES AEROSOLS

La deuxième phase consiste à étudier le transfert des aérosols, en air sec, au travers de cette paroi en béton fissurée, et à déterminer une corrélation relative au dépôt des aérosols dans des domaines de dépôt évoluant entre le dépôt diffusionnel ( $0,05 \mu\text{m}$ ) et le dépôt inertiel ( $4 \mu\text{m}$ ).

Les premiers essais ont été réalisés avec des aérosols de diamètre aérodynamique médian massique ( $d_{amm}$ )  $1 \mu\text{m}$  et  $4 \mu\text{m}$ . Les figures 1 et 2 tracent les évolutions des fractions retenues dans la fissure en fonction de la vitesse d'écoulement dans la fissure.

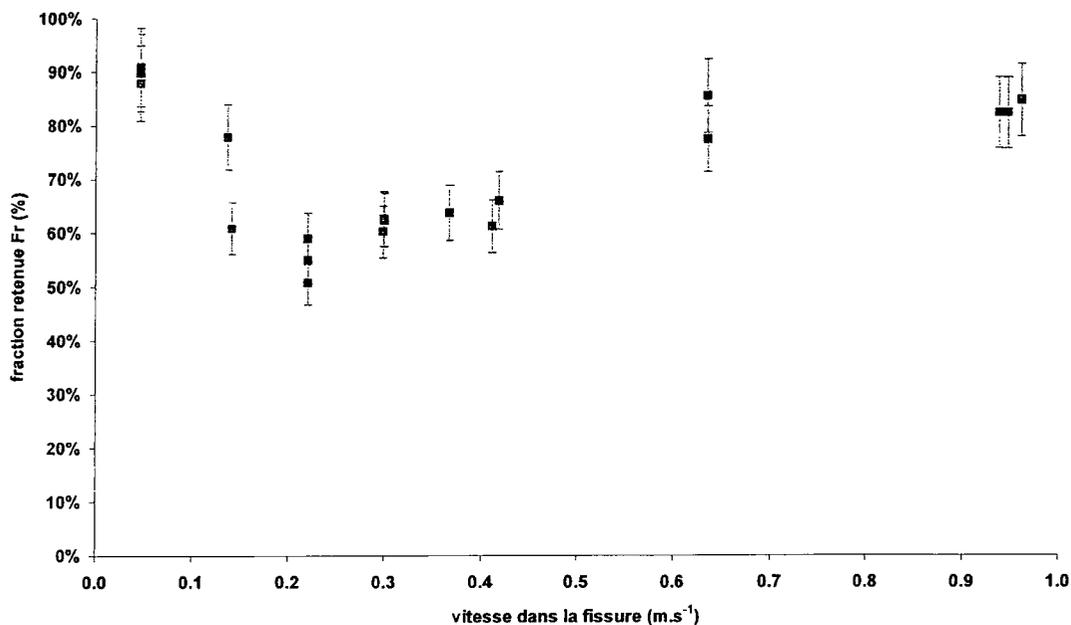


Figure 1 : rétention des aérosols de  $d_{amm}$  de  $1 \mu\text{m}$

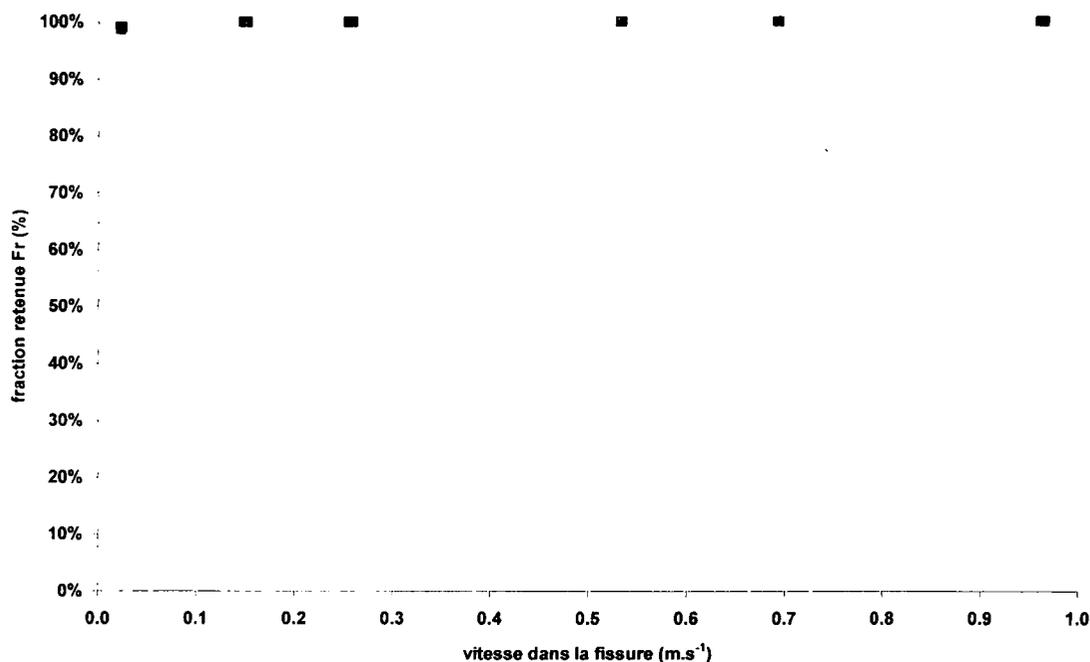


Figure 2 : rétention des aérosols de  $d_{amm}$  de  $4 \mu m$

Les résultats présentés sur les figures 1 et 2 ont ensuite été confrontés à des corrélations de la littérature. Pour cela 3 types de dépôt associés à un modèle ont été considérés :

- le dépôt diffusif, associé à la corrélation de Bowen et al (Bowen 1976) :

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

$$\text{avec } \mu = \frac{8DL}{3VI^2}$$

où D représente le coefficient de diffusion ( $m^2.s^{-1}$ ), L la longueur de la fissure (m), l l'étendue de la fissure (m) et V la vitesse d'écoulement dans la fissure ( $m.s^{-1}$ ).

- le dépôt gravitationnel, associé à un modèle de dépôt dans une batterie de sédimentation :

$$Fr = \frac{V_s L}{V e}$$

où  $V_s$  représente la vitesse de sédimentation ( $m.s^{-1}$ ) et e l'ouverture de la fissure (m).

- le dépôt inertiel à l'entrée de la fissure, pour lequel plusieurs corrélations existent (Baron 2001), mais ne correspondent pas d'une part au type de géométrie à laquelle nous nous intéressons, d'autre part aux domaines de nombre de Stokes et de gradient de vitesse qui interviennent dans notre étude.

Par ailleurs, l'utilisation d'une ouverture équivalente aéraulique telle que déterminée par la caractérisation aéraulique de la paroi n'apparaît pas forcément adaptée à ces phénomènes de dépôts qui nécessitent plutôt d'utiliser des caractéristiques "géométriques".

#### DETERMINATION DES CARACTERISTIQUES "GEOMETRIQUES"

Nous nous sommes alors intéressés à l'étude de la rétention d'aérosols ultrafins par le réseau de fissures, considérant que le dépôt n'est alors régi que par une loi de dépôt par diffusion.

Par ajustement de cette loi de dépôt sur nos résultats expérimentaux nous pouvons alors extraire des caractéristiques "géométriques" de la fissure que nous pourrions ensuite utiliser dans d'autres lois de dépôt.

Les résultats de cette étude relative aux aérosols ultrafins sont présentés sur la figure 3.

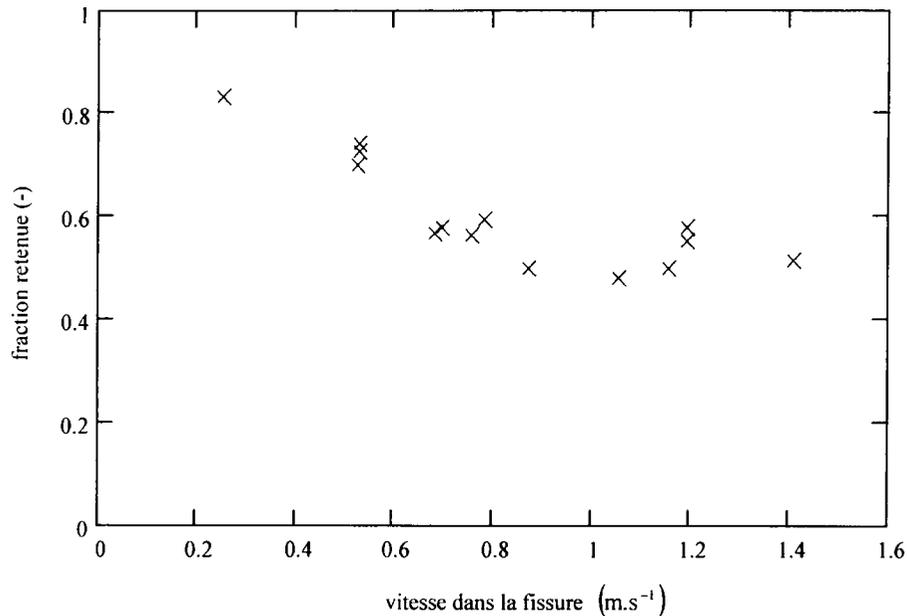


Figure 3 : rétention des aérosols de  $d_{amm}$  de  $0,06 \mu m$

Cette figure montre l'évolution de la fraction massique retenue dans la fissure en fonction de la vitesse dans la fissure.

En utilisant les paramètres de la fissure déterminés par la caractérisation aéraulique, on obtient l'évolution tracée sur la figure 4.

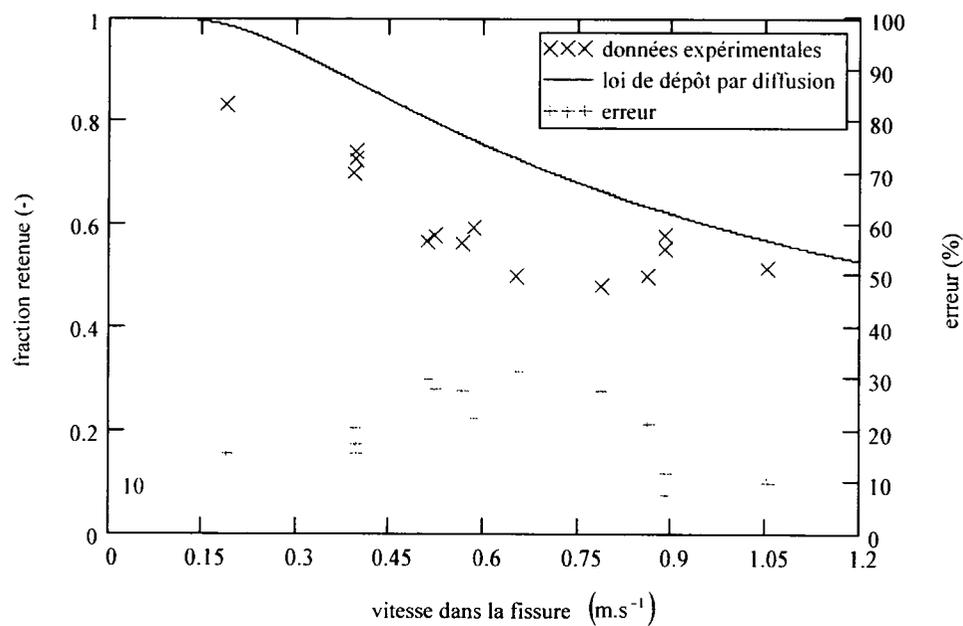


Figure 4 : application de la loi de dépôt par diffusion avec les caractéristiques aérauliques

On constate que la corrélation avec les résultats expérimentaux n'est pas satisfaisante ; en effet, on peut estimer une erreur moyenne de l'ordre de 20% entre les résultats expérimentaux et numériques.

Par conséquent, on peut confirmer l'hypothèse que les paramètres aérauliques ne sont pas les plus adaptés aux lois de dépôt des aérosols.

A partir des résultats aérauliques et de dépôts par diffusion, nous avons donc déterminé le meilleur couple de caractéristiques "géométriques" (ouverture de fissure, étendue de fissure) permettant à la loi de dépôt par diffusion de s'ajuster au mieux à nos résultats expérimentaux (figure 5), sachant que la troisième caractéristique qu'est la longueur de la fissure ou "chemin de fuite" reste imposée à 0,1 m, soit l'épaisseur du mur, puisqu'actuellement nous ne disposons pas encore des données nécessaires et suffisantes pour déterminer le triplet de caractéristiques "géométriques" (ouverture de fissure, étendue de fissure, longueur de fissure).

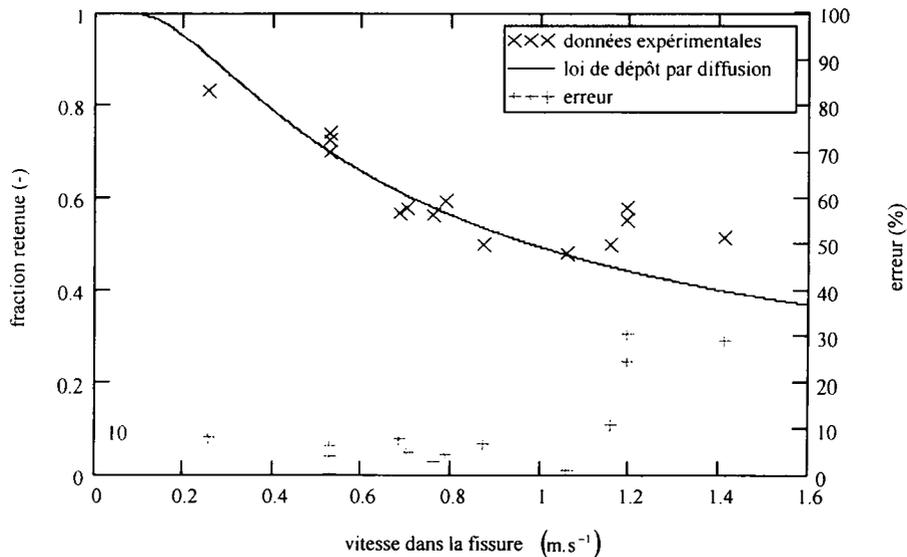


Figure 5 : application de la loi de dépôt par diffusion avec les caractéristiques géométriques

La figure 5 montre donc un bon ajustement des résultats expérimentaux à l'aide de la loi de dépôt par diffusion, avec une erreur inférieure à 10 % ; on constate une erreur plus élevée pour les vitesses supérieures à 1,1 m.s<sup>-1</sup>, ce qui s'explique par un probable changement de régime d'écoulement.

Ceci permet donc de déterminer les paramètres "géométriques" de la fissure suivants : ouverture de fissure 57 µm, étendue de fissure 7,6 m et longueur de fissure 0,1 m.

#### DETERMINATION D'UNE LOI DE DEPOT PAR INERTIE

A partir de ce résultat, nous pouvons donc nous intéresser à la détermination d'une loi de dépôt par inertie (impaction à l'entrée de la fissure).

Pour cela, nous utilisons une loi établie par Regtuit & al (Regtuit 1990) et utilisée par Eleftheriadis & Colbeck (Colbeck 1992), lors d'une étude sur l'efficacité de collecte par impaction d'une fente rectangulaire :

$$Fr = 1 - \frac{1}{1 + a Stk^b}$$

Cette loi, utilisée également dans des applications telles que les prélèvements d'aérosols, intègre deux paramètres a et b qui diffèrent selon les applications et les domaines de nombres de Stokes (Stk) et de gradients de vitesse.

Nous avons donc essayé de déterminer les meilleures valeurs pour ces constantes, permettant de représenter au mieux les résultats obtenus pour des aérosols de 1 µm.

La figure 6 trace la meilleure évolution possible, correspondant à des valeurs pour a de 73,8 et pour b de 1,2.

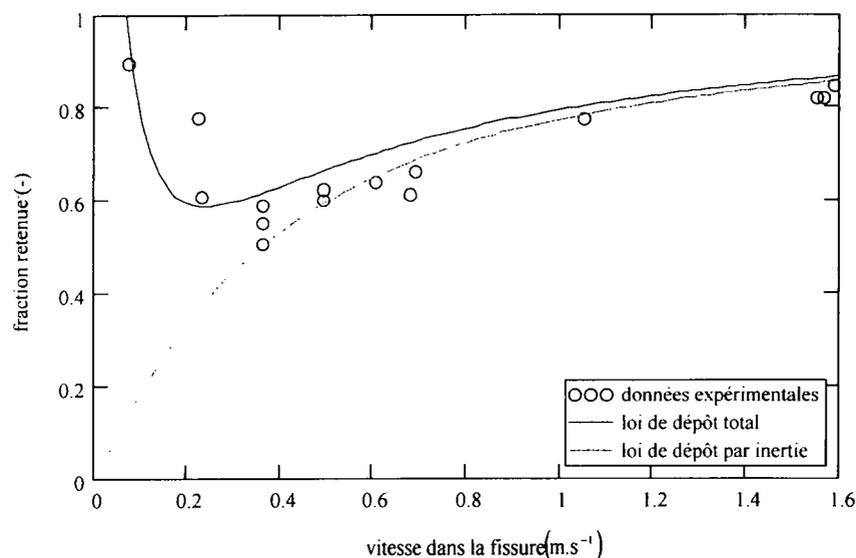


Figure 6 : loi de dépôt par inertie représentant au mieux les résultats obtenus dans une fissure

On constate donc que, pour des vitesses supérieures à  $0,4 \text{ m.s}^{-1}$ , vitesse seuil à partir de laquelle le dépôt par inertie devient le phénomène de dépôt majoritaire (Gelain 2004), la loi de dépôt par inertie permet de représenter correctement les résultats obtenus lors de l'étude du dépôt d'aérosols de  $d_{\text{amm}}$  de  $1 \mu\text{m}$  pour les constantes  $a$  et  $b$  déterminées ci-dessus ; pour les vitesses inférieures à  $0,4 \text{ m.s}^{-1}$ , c'est le phénomène de dépôt par sédimentation qui est majoritaire de par les faibles vitesses (voir courbe de dépôt total sur la figure 6).

Noter que Eleftheriadis & Colbeck semblent plutôt avoir pour  $a$  et  $b$  les valeurs de 18,5 et 2, mais pour des fentes de 1 mm à 25 mm et un nombre de Stokes compris entre 0,04 et 10.

## CONCLUSION

Cette étude nous a permis de déterminer un ensemble de lois de dépôt permettant de décrire le dépôt d'aérosols dans divers domaines de dépôt, du domaine diffusionnel ( $d_{\text{amm}} = 0,06 \mu\text{m}$ ) au domaine inertiel ( $d_{\text{amm}} = 4 \mu\text{m}$ ). Deux de ces lois sont issues de la littérature et semblent s'appliquer correctement au cas d'une fissure de par leur caractère universel. En revanche, pour le dépôt inertiel, les lois de dépôt sont nombreuses et trop spécifiques ; nous avons donc dû ajuster la corrélation qui nous semblait la plus représentative du type de dépôt à modéliser. Cependant, cette corrélation n'est pas figée et pourrait s'agréments d'autres paramètres éventuels (rugosité, gradient de vitesse) si leur influence venait à être démontrée par d'autres essais.

## REFERENCES

- Baron P.A. Willeke K., Aerosol measurement, 2001.
- Bowen B.D., Levine S. Epstein N., Fine Particle deposition in laminar flow through parallel plate and cylindrical channels. Journal of Colloid Interface Science, Vol. 54, pp. 375-390, 1976.
- Eleftheriadis K. and Colbeck I., The particle collection efficiency of rectangular strips by inertial impaction. Journal of Aerosol Science, Vol. 23, Suppl. 1, pp. S35-S38, 1992.
- Gelain T., Motzkus C., Rétention d'aérosols dans un réseau de fissures, Rapport IRSN/DSU/SERAC/LPMA/04-01, 2004.
- Regtuit H.E., De Ruiter C.J., Vriens E.L.M., Hofschreuder P., Oeseburg, The Tunnel Impactor. Journal of Aerosol Science, Vol. 21, No. 7, pp. 919-933, 1990.

# CARACTERISATION PHYSIQUE D'UN AGGLOMERATEUR ELECTROSTATIQUE DE PARTICULES A TEMPERATURE AMBIANTE

A. CHARVET <sup>(1)\*</sup>, A. BERNIS <sup>(1)</sup>, R. BOICHOT <sup>(1)</sup>, E. GONZE <sup>(1)</sup>

(1) Laboratoire d'Optimisation et de Conception en Ingénierie de l'Environnement, ESIGEC, Savoie Technolac, 73370 LE BOURGET DU LAC

[Augustin.Charvet@etu.univ-savoie.fr](mailto:Augustin.Charvet@etu.univ-savoie.fr)

## TITLE

Physical characterisation of an electrostatic agglomerator of particles at an ambient temperature.

## ABSTRACT

At a preceding Annual Conference of the ASFERA, an innovating process had been presented : electrostatic filtration on a porous cathode, in a configuration wire-to-cylinder and at very short residence time. In complement with the tests carried out at high temperature on aerosols of combustion, it was decided to characterize this electrostatic agglomerator at ambient temperature.

First, the numerical abatement was studied and the tests allowed the determination of a correlation, which permitted the calculation of the abatement on the micronic particles of the ambient air. Then, we characterized the numerical abatement of the submicronic particles of this electrostatic agglomerator and we could note a good correlation between the efficiencies determined by various apparatus (P-TRAK and SMPS counters). Other experimental tests show the limited influence of the length of the electrostatic agglomerator.

In a second time, we quantified the re-entrainment of the particles, in order to define a granulometry of the outgoing aerosol of the electrostatic precipitator. This characterization was used for a numerical calibration of a mathematical model. This model is used to forecast the abatement and re-entrainment of this electrostatic agglomerator.

## RESUME

Lors d'une précédente Conférence Annuelle de l'ASFERA, un procédé innovant avait été présenté : la filtration électrostatique sur une cathode poreuse, en configuration fil-cylindre et à très faible temps de séjour (de l'ordre de 10 millisecondes). En complément d'essais réalisés à haute température sur des aérosols de combustion, il a été décidé de caractériser cet agglomérateur électrostatique à température ambiante.

Tout d'abord, c'est l'aspect "abattement numérique" qui a été étudié et les essais ont permis la mise en place d'une corrélation pour les particules microniques de l'air ambiant. Cette corrélation permet de calculer l'abattement numérique pour une taille donnée de particules à partir d'un seul paramètre, la puissance électrique volumique. Parallèlement, nous avons caractérisé l'abattement numérique des particules submicroniques de cet agglomérateur. Nous avons pu constater une bonne corrélation des abattements calculés à partir de différentes méthodes de mesure (compteurs P-TRAK et SMPS et méthode à la fluorescéine). D'autres essais expérimentaux ont permis de montrer l'influence limitée de la longueur de l'agglomérateur électrostatique.

Dans un deuxième temps, nous avons quantifié le relargage des particules, afin de définir une granulométrie de l'aérosol sortant de l'électrofiltre. Cette caractérisation, réalisée à l'aide d'un compteur de particules GRIMM, est ensuite utilisée pour la calibration numérique d'un modèle mathématique de prévision d'abattement numérique et de relargage de cet agglomérateur électrostatique.

## I. MATERIEL & METHODES

Le banc d'essai est schématisé en figure 1. Il est conçu pour engendrer des débits compris entre 10 et 30 m<sup>3</sup>/h d'air chargé en aérosols.

Les particules de fluorescéine sont produites par un générateur Setra GP 92 alimenté par de l'air filtré et asséché. Selon le débit d'air souhaité, un flux gazeux supplémentaire est ajouté grâce à un compresseur Roots.

Les concentrations en amont et aval de l'électrofiltre sont déterminées grâce à un granulomètre GRIMM pour les essais sur air atmosphérique et selon la norme NFX 44-052 pour les essais à la fluorescéine.

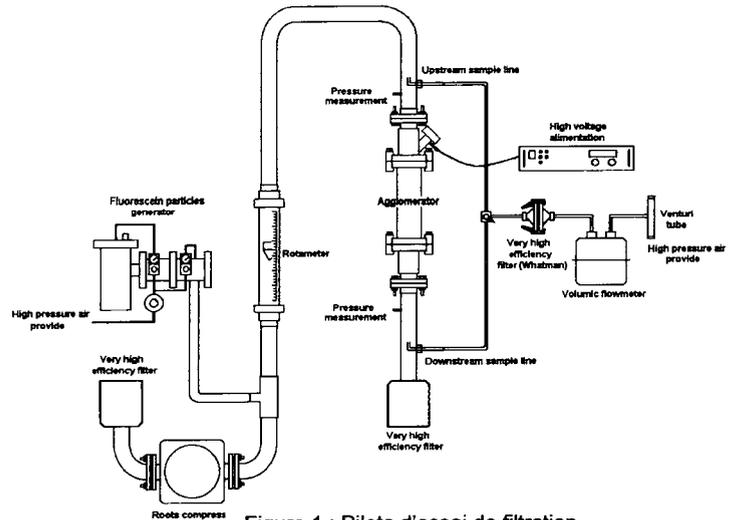


Figure 1 : Pilote d'essai de filtration

Le prototype d'électrofiltre est présenté en figure 2. Il est connecté à une alimentation haute tension négative. Les matrices d'agglomération utilisées, d'une porosité de 85%, sont en fil d'acier inoxydable tricoté de 0,23 mm. Leur surface développée totale est de 0,205 m<sup>2</sup>, et leur surface spécifique de 2600 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>.

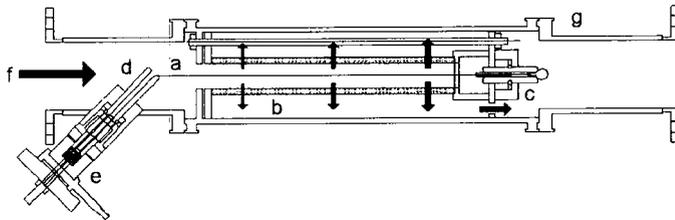


Figure 2 : Agglomérateur de particules submicroniques

Légende :

- a : électrode haute tension négative ;
- b : matrice filtrante ;
- c et d : céramiques isolantes (respectivement aval et amont) ;
- e : insertion de la haute tension et maintien de l'électrode centrale ;
- f : sens du flux de gaz traité ;
- g : brides.

## II. ABATTEMENT NUMERIQUE ET INFLUENCE DE DIFFERENTS PARAMETRES

### II.1. Influence de l'intensité et de la vitesse de filtration

Un certain nombre de tendances ont été mises à jour lors de l'étude précédant ce travail. Il a ainsi été mis en évidence que les espaces inter-électrodes de faible dimension permettent un meilleur abattement à énergie électrique dépensée et débits constants. Ces constatations ont conduit à une estimation de la géométrie finale à peu près optimale ; la matrice obtenue a une longueur de 200 mm et des diamètres intérieur et extérieur, respectivement de 20 et 30 mm.

Une fois ce travail sur la géométrie accompli, de nombreux essais ont été réalisés à chaud sur des aérosols de combustion. Afin de compléter l'étude de fonctionnement de cet agglomérateur électrostatique, il a été décidé de réaliser des expérimentations à froid sur l'air ambiant.

Le premier travail a consisté à faire varier des paramètres simples comme la tension et la vitesse d'entrée du gaz.

Les abattements numériques de l'agglomérateur ont été déduits des valeurs de concentrations amont et aval mesurées grâce à un granulomètre GRIMM.

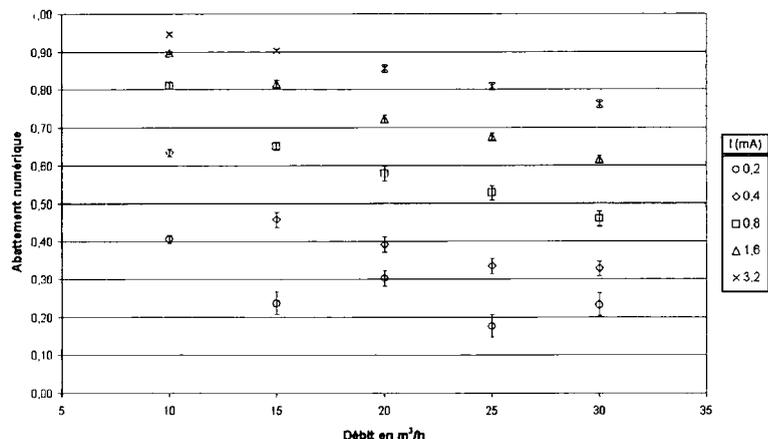


Figure 3 : Représentation des abattements numériques à intensité et débits variables (particules atmosphériques de 0.35 µm)

Nous remarquons que l'influence du courant appliqué est très importante ; en effet, l'injection d'énergie électrique dans le gaz va toujours vers une amélioration des abattements. Il est donc toujours préférable de travailler à intensité maximale (donc potentiel maximal). La vitesse de filtration a par contre une influence très négative sur les abattements puisque ceux-ci deviennent faibles lorsque le débit augmente. Ceci peut s'expliquer par le fait que la vitesse longitudinale devient prépondérante par rapport à la vitesse radiale du gaz ; les particules sont donc entraînées vers le fond de l'électrofiltre où elles sont moins bien filtrées.

Sur la figure 3, le temps de séjour (lié au débit) et l'intensité sont complètement découplés. Nous proposons une représentation permettant de comparer tous les essais entre eux. Nous décidons d'exprimer tous les résultats en terme d'énergie électrique volumique, c'est-à-dire en énergie apportée par unité de volume de gaz. Ceci permet de tenir compte de la puissance électrique, du débit d'air et de l'abattement numérique dans une représentation commune à tous les essais.

L'énergie volumique est calculée ainsi :

$$P_v = \frac{V.I}{Q_v}$$

avec  $V$  : différence de potentiel inter-électrodes en volts (variant de 6 à 11kV);  
 $I$  : intensité en ampères (variant de 0,2 à 3,2 mA);  
 $Q_v$  : débit volumique en m<sup>3</sup>/s (variant de 10 à 30 m<sup>3</sup>/h).

A partir de ce paramètre qu'est l'énergie électrique volumique, nous proposons un modèle d'abattement numérique ; or celui-ci s'améliorant avec l'augmentation de la taille des particules, nous avons également dû inclure ce paramètre dans notre modélisation.

$$\text{Abattement} = 1 - \exp \left[ - \left( \left( P_v^{0.75} \cdot 4500 \cdot d_p \right) + 0,5 \right) \right]$$

avec  $P_v$  variant de 150 à 12000 J/m<sup>3</sup>  
 et  $d_p$  de 0,8 à 5 μm.

Il est évident que les coefficients entrant en jeu dans cette relation sont des fonctions d'autres paramètres comme la longueur de la matrice ou la surface développée de filtration mais pour pouvoir réaliser une modélisation plus fine, il aurait fallu faire de nombreux autres essais et le but était surtout de démontrer que l'énergie volumique était un paramètre très pertinent dans la compréhension et la modélisation de l'abattement de l'électrofiltre.

Le modèle ci-dessus semble relativement bien corrélé aux résultats expérimentaux comme le montre la figure 4 ci-contre. Il est valable pour les particules microniques c'est-à-dire pour les particules pour lesquelles la mobilité électrique est proportionnelle à la taille (relation de Cochet linéaire pour les particules microniques).

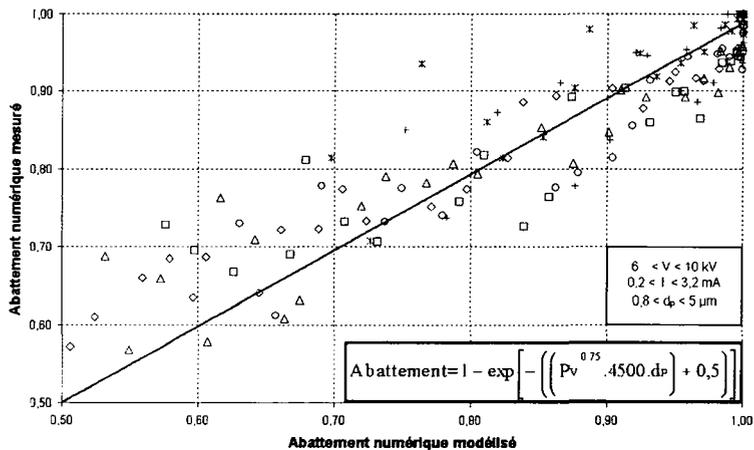


Figure 4 : Diagramme de parité

## II.2. Comparaison des abattements des particules submicroniques par trois méthodes

Le granulomètre GRIMM (gamme de 0,3 à 20 μm) ne mesure que quelques classes de particules submicroniques ; c'est pourquoi nous avons également testé un compteur de particules P-TRAK (gamme de 30 à 1000 nm) pour mesurer les concentrations en petites particules. De façon à valider les résultats obtenus avec cet appareil, nous avons répété les différentes expériences en nous servant d'un compteur de particules SMPS (gamme de 10 à 1000 nm) et également en réalisant des mesures à la fluorescéine (particules de 180 nm).

Sur ce graphique, nous pouvons observer une très bonne corrélation entre les différents appareils de mesure ; les trois méthodes donnant des mesures d'abattements sensiblement égales (différence d'abattement de 5% en moyenne). Ce pourcentage est compris dans la marge d'incertitude de la méthode à la fluorescéine. Ceci peut aussi être expliqué par le fait que l'on ne mesure pas exactement les mêmes gammes de taille avec les différentes méthodes.

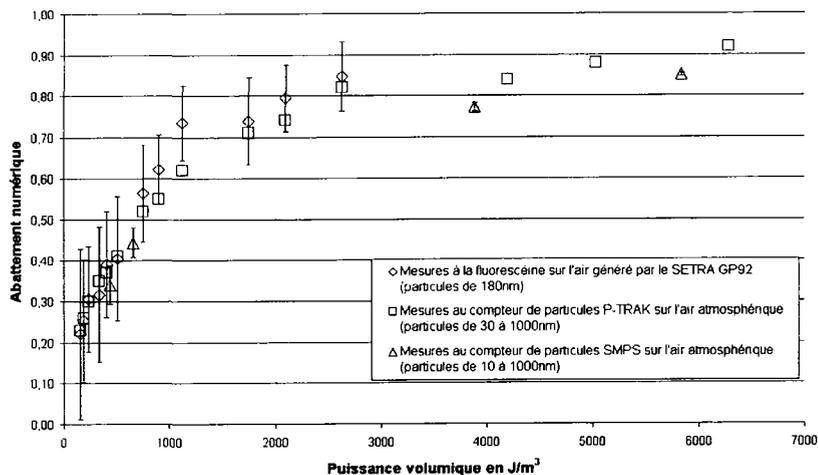


Figure 5 : Comparaison de l'abattement des particules submicroniques par trois différentes méthodes de mesure.

### II.3. Influence de la longueur de la matrice

L'influence de la longueur de matrice n'est pas un paramètre simple à appréhender à cause de la grande variabilité du profil de vitesse. Le but de l'étude suivante est donc simplement de vérifier que la longueur de la matrice n'est pas limitante dans le phénomène de déviation des particules. Pour cela nous avons réalisé des essais à la fluorescéine d'une part avec une matrice de 200 mm puis avec deux matrices en série. Pour chacune de ces deux séries d'essais, nous avons réalisé des mesures en amont et en aval de l'électrofiltre pour 3 débits différents et à 4 intensités différentes. Nous en avons déduit les abattements numériques des particules de fluorescéine pour les deux longueurs de matrice testées (selon la norme NFX 44-052).

Ces essais expérimentaux ont permis de montrer l'influence limitée de la longueur de l'agglomérateur électrostatique. En effet, le doublement de la longueur de la matrice poreuse n'a permis qu'une faible augmentation de l'abattement numérique (de l'ordre de 10%) ce qui tend à montrer que la majorité des particules est déviée rapidement par le champ électrique et les vitesses radiales du gaz.

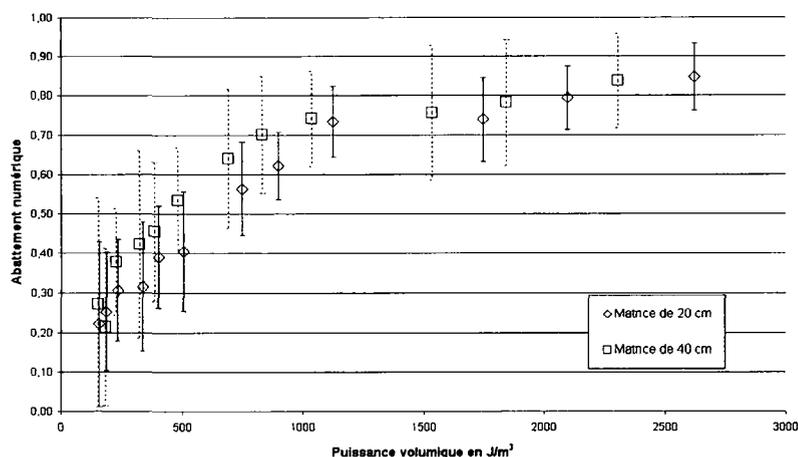


Figure 6 : Influence de la longueur de la matrice sur l'abattement de l'électrofiltre

## III. ETUDE ET MODELISATION DU RELARGAGE EN TENSION NEGATIVE CONTINUE

Lors des essais expérimentaux nous avons pu observer des amas de particules relargués. Nous proposons une approche conjointe expérimentation / modélisation pour donner une approximation de la granulométrie de l'aérosol relargué.

Du point de vue modélisation, une approche par la méthode de l'équilibre des moments permet d'évaluer localement, entre les fibres de la cathode, la taille des agglomérats relargués, en fonction de la vitesse interstitielle du gaz et de la force d'adhésion des amas de particules. Une approche expérimentale permet de confirmer le caractère nettement micronique de l'aérosol relargué. Ceci est montré sans ambiguïté par la mesure en aval de l'agglomérateur de particules microniques plus importantes en nombre qu'en amont. Nous avons réalisé des essais de longue durée sur un air chargé en fluorescéine de façon à saturer la matrice en particules et ainsi pouvoir observer un relargage. Le temps au bout duquel un régime stationnaire s'établit n'est pas connu a priori.

### III.1 Approche expérimentale

Les premiers essais ont été réalisés à un débit de  $30 \text{ m}^3/\text{h}$ , une intensité de  $1 \text{ mA}$  et une tension de  $8 \text{ kV}$ , ce qui correspond à une énergie volumique de  $960 \text{ J/m}^3$ . Les granulométries amont et aval au cours du temps sont représentées sur la figure 7.

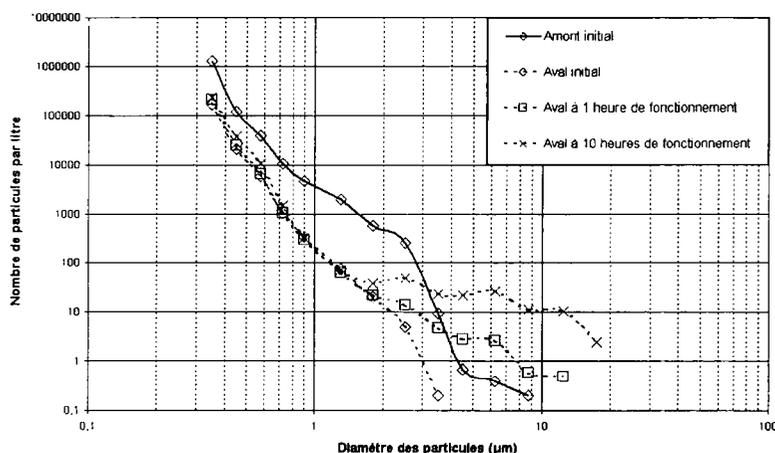
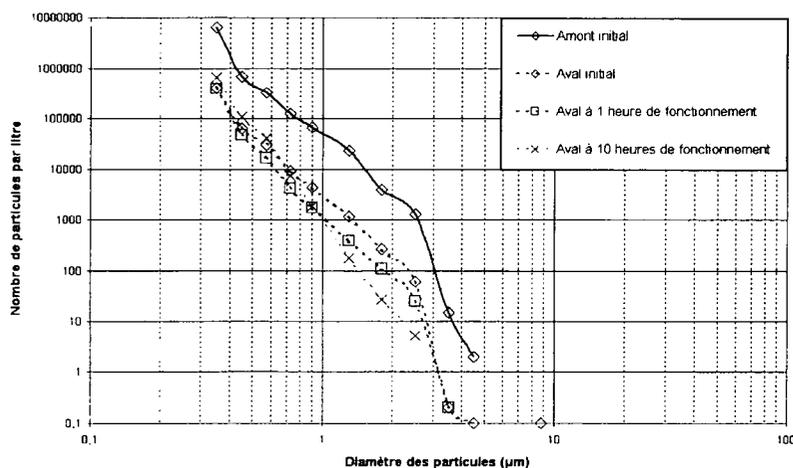


Figure 7 : Evolution de la granulométrie de l'aérosol de fluorescéine en amont et en aval de l'agglomérateur en fonction du temps et à  $30 \text{ m}^3/\text{h}$  de gaz traité

La granulométrie de l'aérosol aval est assez stable, mais l'on peut constater qu'à partir de  $3 \mu\text{m}$  le nombre de particules en sortie de l'agglomérateur devient progressivement plus important qu'en entrée, et se stabilise au bout de quelques heures. Nous pouvons donc mettre en évidence un mode de relargage dont le régime stationnaire est établi au bout de 6 heures de fonctionnement (le nombre de particules comptées en aval n'augmentant plus à partir de cet instant).

L'essai a été reconduit à  $10 \text{ m}^3/\text{h}$  avec les mêmes intensité et tension ( $1 \text{ mA}$  et  $8 \text{ kV}$ ). Ceci correspond donc à une énergie volumique de  $2880 \text{ J/m}^3$ . Les granulométries amont et aval au cours du temps sont représentées sur la figure 8.



et en aval de l'agglomérateur en fonction du temps et à  $10 \text{ m}^3/\text{h}$  de gaz traité.

Lors de cet essai, nous ne mettons plus en évidence le phénomène de relargage bien que nous puissions observer des amas de particules à l'œil nu lors du démontage de l'électrofiltre. Nous pouvons donc penser qu'à cette faible vitesse, le relargage est bel et bien présent mais n'est pas mesurable avec nos appareils de comptage et cela pour plusieurs raisons.

D'une part à ce débit, les particules relarguées sont sans doute plus grosses que celle observées à  $30 \text{ m}^3/\text{h}$  et donc ne sont peut être pas visibles pour le compteur GRIMM. D'autre part, même si les amas relargués sont dans la gamme du compteur, les particules sont sans doute en nombre insuffisant pour être comptées convenablement.

Suite à ces différents essais, nous avons déterminé la granulométrie des particules relarguées par l'agglomérateur électrostatique. Pour cela nous avons suivi l'évolution temporelle de la concentration en aval référencée à celle au temps zéro.

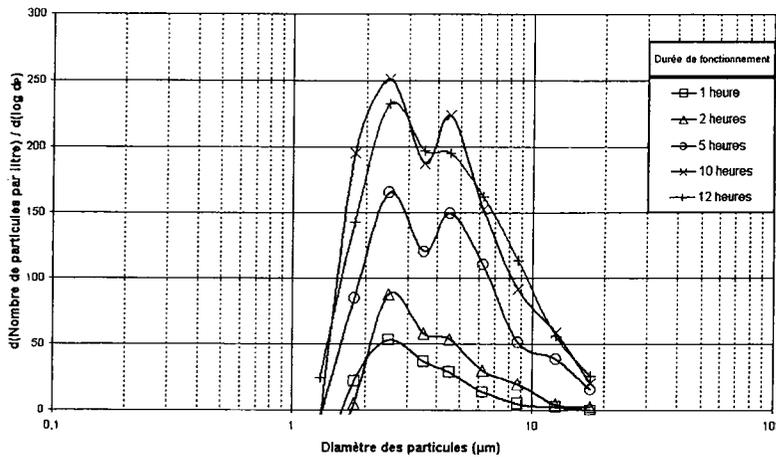


Figure 9 : Granulométrie des particules relarguées à 30 m<sup>3</sup>/h

Cette opération a été effectuée pour le débit de 30 m<sup>3</sup>/h, seul essai pour lequel la majorité du relargage est observable.

Sur la figure 9, nous pouvons voir que les particules relarguées ont une taille comprise entre 2 µm et 20 µm (limite optique de l'appareil). Nous observons deux pics de relargage dont le principal est situé pour des tailles de particules comprises entre 2 et 3 µm. Un second pic de relargage étant présent pour les particules d'environ 4 à 5 micromètres.

### III.2 Modélisation du relargage

Pour estimer la granulométrie des particules relarguées, nous allons nous baser sur la méthode d'évaluation du relargage de Theerachaisupakij (2002). Celui-ci propose de définir une vitesse d'arrachement à partir d'une taille critique d'agglomérats de particules sur une paroi, mais dans le cas idéal d'une conduite cylindrique. Il est possible par une analogie de passer d'un milieu poreux à un milieu constitué de pores droits cylindriques idéaux, en définissant un diamètre de pore équivalent. Comme nous connaissons la porosité et le diamètre de fibre de nos matrices, il est possible de définir une vitesse de gaz à partir de laquelle les particules déposées dans les parois de ce tube fictif sont arrachées.

A l'aide de la connaissance des vitesses interstitielles locales de gaz dans la matrice et de la théorie de Theerachaisupakij, il est possible de déterminer la taille maximale locale des agglomérats formés. Le système numérique est construit de manière à respecter le bilan de masse entre les particules entrantes (fixées) et sortantes (relarguées). Nous estimons la masse volumique des amas relargués à 100 kg/m<sup>3</sup>, en nous basant sur la compacité d'un gâteau de particules submicroniques donnée par Pénicot-Bauge (1998), qui est de 0,1 approximativement.

Nous pouvons à partir d'une population de particules entrantes dans le domaine de calcul estimer la population des particules sortantes, qu'elles soient agglomérées et relarguées avec changement de taille ou tout simplement non filtrées. Nous n'intégrons pas le fait que pour une vitesse interstitielle de gaz donnée, les particules relarguées puissent avoir une dispersion en taille.

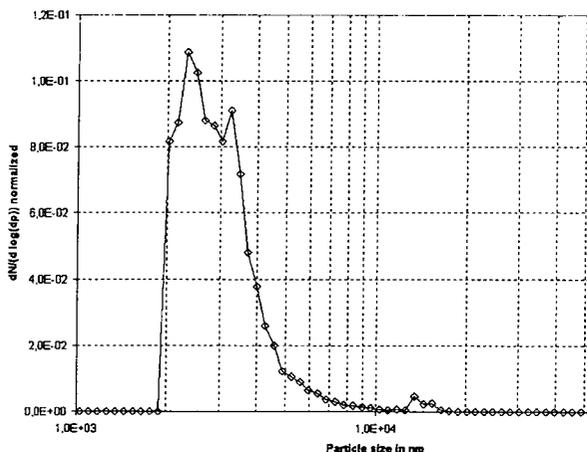


Figure 10 : Granulométrie calculée de l'aérosol relargué à 30 m<sup>3</sup>/h

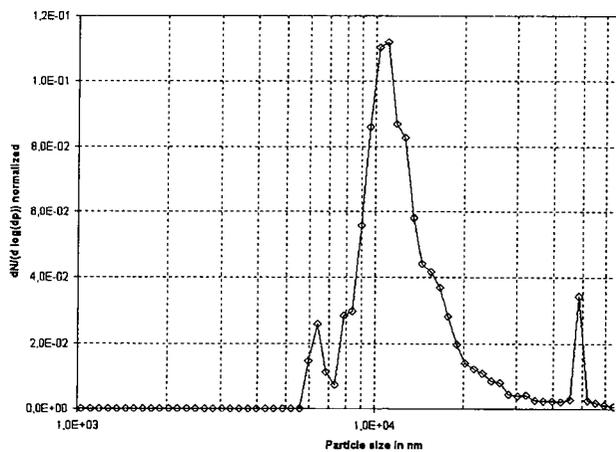


Figure 11 : Granulométrie calculée de l'aérosol relargué à 10 m<sup>3</sup>/h

Les figures 10 et 11 montrent les granulométries calculées à 30 et 10 m<sup>3</sup>/h. Il est important de noter que le pic de relargage calculé à 10 m<sup>3</sup>/h (figure 11) a une surface 280 fois moins importante que le pic de relargage calculé à 30 m<sup>3</sup>/h (figure 10). Les pics ont été normalisés pour faciliter leur lecture. La figure 10 montre deux pics de relargage à 2,5 et 3,5 µm, et un aspect de l'aérosol relargué très similaire à celui de la figure 7, bien que beaucoup moins étalé dans les grandes tailles de particules (supérieures à 5 µm). La figure 11 montre un pic prépondérant centré sur 10 µm ; pic que nous n'avons pas pu observer expérimentalement à 10 m<sup>3</sup>/h.

Dans ces deux cas, nous voyons que la taille de l'aérosol relargué, tant mesurée expérimentalement que calculée, est nettement micronique. Ceci confirme que notre système d'agglomération opère un changement significatif de la taille des particules entre l'entrée et la sortie.

### III.3 Discussion

Nous avons montré que le système d'agglomération électrostatique étudié permettait un glissement de la granulométrie des particules des tailles submicroniques vers les tailles microniques. Cet effet a pu être mis en évidence facilement pour les forts débits testés, étant donné que le nombre des particules relarguées est important et que leur taille correspond au milieu de la gamme de notre granulomètre. Pour l'essai à 10 m<sup>3</sup>/h, nous n'avons pas mis en évidence de relargage bien que le pic soit situé théoriquement à 10 µm, donc dans la gamme de mesure du compteur optique. Nous avons par contre observé lors de la modélisation que le nombre de particules relarguées à 10 m<sup>3</sup>/h est 280 fois moins important qu'à 30 m<sup>3</sup>/h. Comme les mesures à 30 m<sup>3</sup>/h donnent des concentrations particulières de l'ordre de la dizaine de particules par classe et par litre, les concentrations de particules à 10 m<sup>3</sup>/h doivent tomber en dessous du seuil de détection de l'appareil et se noyer dans le bruit de fond de la mesure. Il est donc normal que nous ne mesurons pas de relargage à ce débit.

Nous observons également une bonne correspondance à 30 m<sup>3</sup>/h entre les pics des particules relarguées mesurés et modélisés. Malgré tout, la granulométrie des mesures est plus étalée. Ceci s'explique par l'aspect « idéal » du modèle mathématique, dans lequel nous n'intégrons pas la dispersion de taille des particules relarguées dues à la turbulence du gaz et à d'autres phénomènes stochastiques. De plus il est possible que les aérosols relargués changent de granulométrie en progressant à travers le support filtrant, au gré de la recapture de ceux-ci par les fibres suivantes. Enfin le modèle de Theerachaisupakij fait l'hypothèse d'agrégats plutôt compacts, ce qui n'est peut-être pas le cas pour les particules générées par notre procédé.

Néanmoins cette approche nous permet de modéliser le relargage des aérosols solides dans une configuration aussi complexe que celle de l'agglomérateur électrostatique à contre-électrode poreuse. Le modèle va donc maintenant pouvoir être élargi à la simulation d'autres types d'aérosols dans d'autres conditions de géométrie et de débit, afin d'optimiser de manière numérique le procédé.

## IV. CONCLUSION

La caractérisation physique, à température ambiante, de l'agglomérateur électrostatique a permis de constater que le prototype présente un bon abattement numérique à condition de travailler à des intensités et des débits de gaz appropriés. En complément à la détermination de l'abattement de l'agglomérateur électrostatique, nous avons pu mettre en évidence un mode de relargage et le comparer aux prévisions d'un modèle mathématique. Les résultats expérimentaux et théoriques ont alors tous deux fait apparaître un glissement de la granulométrie de l'aérosol, des tailles submicroniques vers les tailles microniques.

## V. BIBLIOGRAPHIE

W. Theerachaisupakij, S. Matsusaka, Y. Akashi, H. Masuda (2002). Reentrainment of deposited particles by drag and aerosol collision., *Journal of Aerosol Science*, pages 261-274.

P. Pénicot-Bauge (1998). Etude de la performance de filtres à fibre lors de la filtration d'aérosols liquides ou solides submicroniques. Thèse INPL-ENSIC.

# TRAITEMENT D'AEROSOLS DE COMBUSTION PAR UN AGGLOMERATEUR ELECTROSTATIQUE A CATHODE POREUSE

R. BOICHOT<sup>1</sup> – A. BERNIS<sup>1</sup> – E. GONZE<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Laboratoire d'Optimisation de la Conception et d'Ingénierie de l'Environnement (LOCIE)  
Site de Savoie Technolac, 73370 Le Bourget du Lac, France  
Raphael.boichot@univ-savoie.fr

## TITLE

**Treatment of combustion aerosols by an electrostatic agglomerator with a porous cathode**

## Résumé

Nous nous proposons de caractériser une nouvelle géométrie de précipitateur électrostatique sur des particules issues de la combustion d'hydrocarbures. Cette géométrie consiste en un électrofiltre fil-cylindre à tension positive continue et à cathode poreuse. L'extrémité du dispositif est fermée, ce qui permet à tout le gaz traité de passer à travers la cathode filtrante. De par sa très faible surface de stockage, la cathode agit comme un simple agglomérateur. Nous montrons que cet agglomérateur est suffisamment efficace pour que les particules relarguées ne soit pas mesurables à l'aide d'un granulomètre ELPI, ce qui signifie qu'elles sont à la fois très peu nombreuses et largement microniques. Le système permet de travailler avec des temps de séjour extrêmement faibles, comparables aux temps de charge des particules traitées, et des énergies volumique de l'ordre de 1 J/L, pour des abattements en nombre supérieurs à 90% sur la fraction submicronique. La nature de la cathode a très peu d'influence sur l'abattement numérique des particules étudiées. De par sa compacité volumique, ce procédé présente une potentialité intéressante pour le traitement des particules issues de la combustion.

## Abstract

The aim of our study is to characterise the filtration of combustion aerosols by a new geometry of electrostatic precipitator, consisting in a wire-cylinder shape with a porous counter-electrode. The polarity of the central electrode is positive. The end of the apparatus is closed, so all the treated gazes passes through the porous cathode. The filtration surface is extremely small, so all the treated particles are re-entrained and the electrostatic precipitator works as a very efficient agglomerator. We show that the number of re-entrained particles is sufficiently low, and their size sufficiently big, to not be detected with an ELPI granulometer. This agglomerator works with very short residence times (same order of magnitude that the electrical charging time). The volumic energy used to have a 90% reduction of total particle number is about 1 J/L. We show that the shape of cathode has little influence on particle number reduction. The agglomerator is very compact, so the treatment of combustion aerosols could be improved by this process.

## 1. Introduction

Plusieurs auteurs présentent des travaux sur l'agglomération électrostatique des aérosols issus de la combustion, en ciblant principalement les applications automobiles. Kittelson [1] propose d'utiliser un agglomérateur consistant en un simple électrofiltre fil-cylindre sans décharge couronne. Wadenpohl [2] utilise un électrocyclone, dans lequel la taille des particules atteint quelques  $\mu\text{m}$ , et montre la possibilité d'utiliser un agglomérateur électrostatique individualisé couplé en série à un cyclone simple [3]. Enfin Thimsen [4] présente l'efficacité de conversion d'un agglomérateur seul sur des particules diesel.

L'objectif de cette étude est la caractérisation expérimentale d'un dispositif d'agglomération électrostatique des particules avec une géométrie fil-cylindre à cathode poreuse. La totalité du gaz passe à travers la matrice filtrante. La forte efficacité de capture par substrat fibreux plongé dans un champ électrique a été mis en évidence par Kim (2000) [5]. Des essais préalables au laboratoire du LOCIE ont montré que la filtration est presque uniquement due à la capture par les fils plongés dans le champ électrique à l'interface avec l'espace inter-électrode.

## 2. Matériel et méthode

La figure 1 montre le dispositif expérimental utilisé pour la caractérisation de la captation des particules submicroniques. Le pilote est alimenté en tension positive continue, avec une tension maximale de 10 kV et un courant maximal de 2 mA (limite de stabilité de la décharge couronne). L'alimentation est régulée en courant.

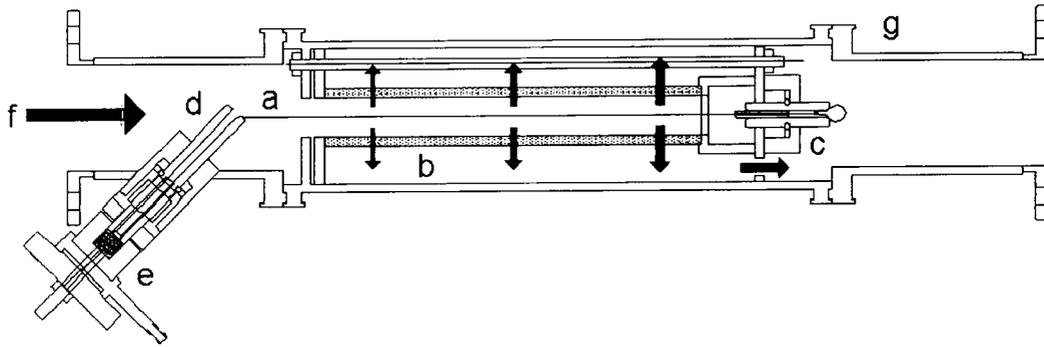


Figure 1 : Vu en coupe du pilote. (a) Anode centrale de faible rayon de courbure (0,25 mm). (b) Cathode fibreuse (fils tricotés) cylindrique de porosité allant de 70 à 90%, avec des diamètre de fil allant de 0,1 à 0,5 mm ; Longueur 200 mm, rayon interne 10 mm, rayon externe 15 mm. (c) Céramique de maintien aval de l'anode. (d) Céramique de maintien amont de l'anode. (e) Système de rattrapage de la dilatation thermique de l'anode et d'alimentation en haute tension. (f) Sens de l'écoulement. La matrice fibreuse est maintenue en compression par deux brides serrées par 3 tiges filetées espacées de 120°. L'ensemble est boulonné au canning (g).

La matrice fibreuse est constituée de fils d'acier inoxydable AISI 309 tricotés. Les matrices présentent naturellement une surface de stockage très faible : de 0,13 à 0,63 m<sup>2</sup> suivant la matrice employée, soit de 1600 à 8000 m<sup>2</sup>.m<sup>-3</sup> de surface spécifique. Nous caractérisons notre aérosol à l'aide d'un compteur de particules ELPI avec plateaux frittés, précédé d'un diluteur PALAS. La figure 2 montre le dispositif expérimental.

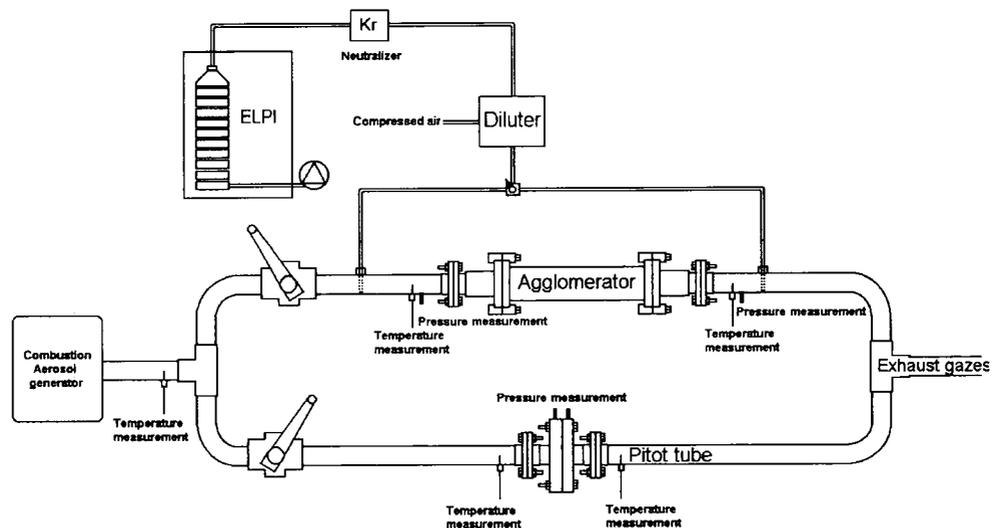


Figure 2 : Dispositif expérimental pour la mesure de l'abatement numérique des particules (vue de dessus). Les mesures de température et de pression sont récupérées dans une centrale d'acquisition dédiée. Le générateur haute tension n'est pas représenté.

### 3. Protocole expérimental

Le but est de mettre en évidence :

- l'influence du type de cathode utilisé (influence de la porosité et du diamètre des fils) ;
- l'influence de l'énergie volumique injectée ;

Les matrices testées ont des diamètre de fil de 0,1 à 0,5 mm et des porosités de 70 à 90%. Le courant de décharge imposé va de 0,2 à 2 mA (5 à 8 kV de tension). Les essais débutent dès que l'équilibre thermique du générateur de particules de combustion et de la ligne sont atteints. Les températures dans la ligne de mesure dépendent du débit de gaz traité (fortes pertes thermiques). Le tableau 1 récapitule les temps de séjours et les températures dans l'espace inter-électrodes de l'agglomérateur pour trois débits de gaz testés. Ces valeurs sont valables pour l'ensemble des essais, puisque les différentes matrices ne perturbent pas l'équilibre thermique de l'agglomérateur.

Flow rate kg/h	T aggl. °C	t (ms)
5	100	43,4
15	200	11,4
25	250	6,2

Tableau 1 : temps de séjour dans l'espace inter-électrodes calculés sur les points du tableau 1.

Le tableau 1 met en valeur les très faibles temps de séjours du gaz dans la partie active du procédé. Ceci est une caractéristique particulièrement intéressante de l'agglomérateur électrostatique à cathode poreuse. La concentration massique en particules est choisie assez faible pour limiter les dépôts de suies sur les isolants (entre 15 et 30 mg/m<sup>3</sup>). La perte de charge maximale de l'agglomérateur est très faible. La valeur maximale que nous avons relevée sur un point à 35 kg/h était de 700 Pa. Elle n'évolue pas avec le temps puisque la matrice filtrante s'encrasse peu.

## 4. Résultats

Nous parlons d'abattement par classe et non d'efficacité car le système fonctionne comme un agglomérateur pur, c'est à dire qu'il ne stocke pas de masse en régime stationnaire et qu'il provoque simplement un glissement de la granulométrie de l'aérosol traité. Il peut donc y avoir recouvrement des granulométries des aérosols entrants et sortant de celui-ci. Le terme efficacité n'a donc aucun sens ici.

L'aérosol traité a une granulométrie stable suivant une loi log-normale avec un seul mode à 70 nm, un écart-type de 1,6, et un nombre total de particules de  $1,5 \cdot 10^7$  particules/cm<sup>3</sup>.

Nous allons maintenant comparer les abattements par classe entre les différentes matrices testées, en ne faisant varier qu'un paramètre à la fois (porosité ou diamètre de fils). Les figures 3, 4 et 5 présentent les abattements par classe comparés des matrices pour un courant de décharge fixe de 1 mA.

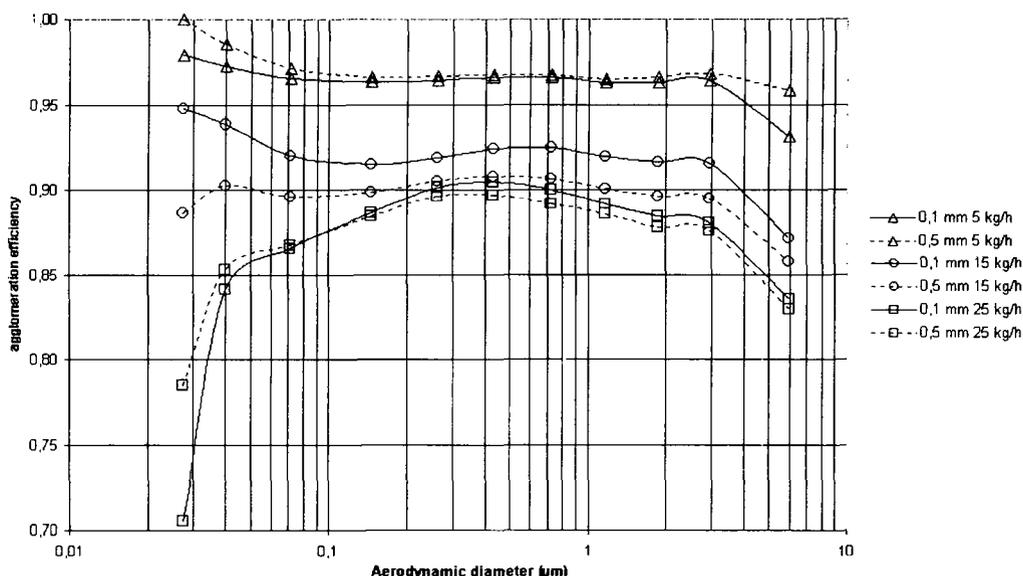


Figure 3 : comparaison des abattements numériques pour deux matrices de 80% de porosité à diamètre de fil différent, pour différents débits massiques traités. Les diamètres de fils sont de 0,1 et 0,5 mm (surfaces développées de 1600 et 8000 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup> respectivement). Le courant de décharge est de 1 mA.

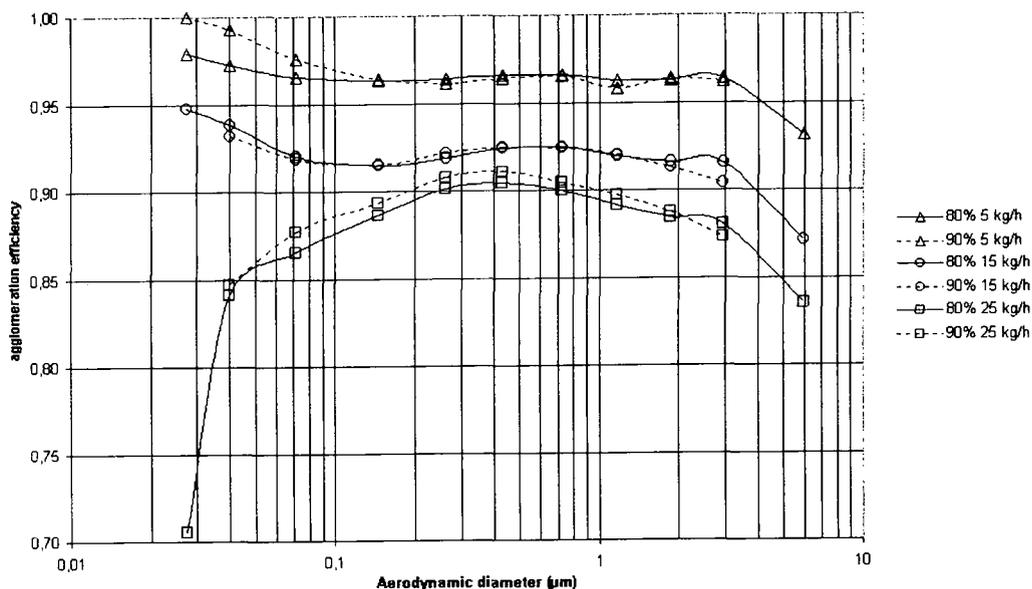


Figure 4 : abattement par classe en fonction du diamètre des particules à diamètre de fil constant et porosité variable. Cas des matrices à diamètre de fil = 0,1 mm et porosité = 80% et 90% (les surfaces développées sont de 8000 et 4000 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup> respectivement). Le courant de décharge est de 1 mA.

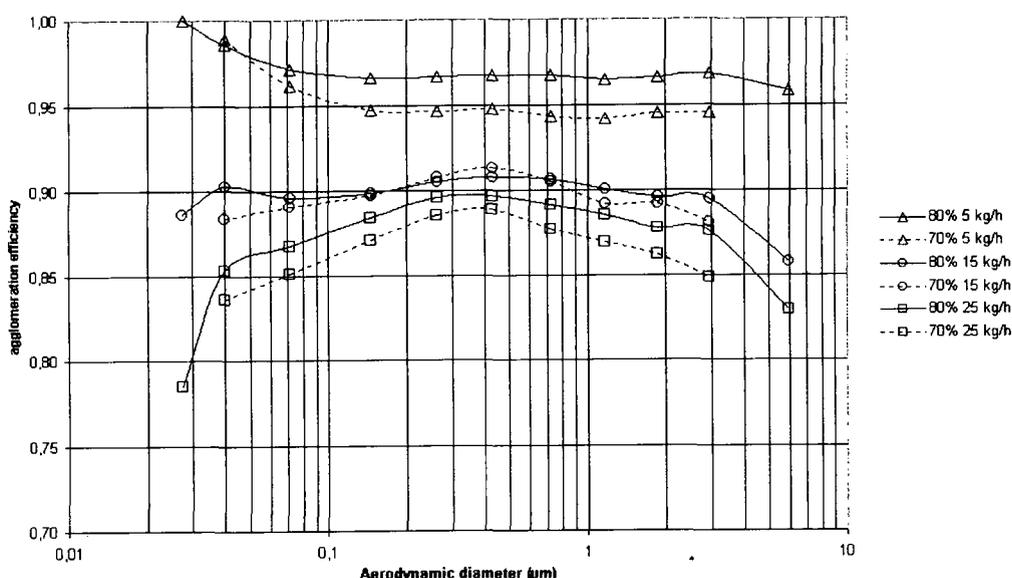


Figure 5 : abattement par classe en fonction du diamètre des particules à diamètre de fil constant et porosité variable. Cas des matrices à diamètre de fil = 0,5 mm et porosité = 70% et 80% (les surfaces développées sont de 2400 et 1600 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup> respectivement). Le courant de décharge est de 1 mA.

Les figures 3, 4 et 5 présentent globalement les mêmes aspects, que nous allons commenter.

A 5 kg/h, l'aspect des courbes d'abattement est relativement conforme à la mobilité des particules ayant atteint leur charge de saturation dans le champ électrique de l'espace inter-électrodes : la mobilité est stable jusqu'à 100-200 nm (en partant des grosses particules), puis augmente brusquement vers les très faibles tailles de particules. Comme le temps de séjour dans l'espace inter-électrodes est important (43 ms), la charge de saturation est largement atteinte. L'abattement est donc globalement une image de la mobilité électrique des particules à saturation de charge. Nous pouvons observer cependant une baisse inexplicée de l'abattement sur le diamètre de particule correspondant au premier plateau de l'ELPI donnant une mesure fiable (6 µm) : ceci peut-être la signature d'une concentration légèrement plus importante de grosses particules en aval de l'agglomérateur, caractéristique du début d'un mode de relargage.

A 15 kg/h, le temps de séjour des particules est de 11 ms, ce qui est du même ordre de grandeur que le temps de charge des particules. Si la charge par effet de champ, majoritaire pour les grosses particules, est relativement rapide (quelques ms dans nos conditions électrostatiques), le temps de charge par diffusion, majoritaire pour les petites particules, est plus long, et une partie de la fraction des très fines particules atteint le support fibreux avec une charge peu importante. La mobilité globale de l'aérosol est alors à peu près constante, tout comme l'abattement numérique. L'abattement sur les particules de 6  $\mu\text{m}$  se dégrade par contre encore, signant là encore peut-être le relargage.

Enfin à 25 kg/h, le temps de séjour est de 6 ms, la charge de saturation par diffusion n'est pas du tout atteinte et l'abattement se dégrade fortement sur les faibles tailles de particules, ainsi que sur les très grosses, pour les mêmes raisons évoquées au paragraphe précédent.

Mais les trois figures précédentes présentent globalement les mêmes abattement par classe entre matrices, et ne montrent aucune grande influence de la surface développées des matrices, que ce soit par le biais du diamètre des fils ou de la porosité. Ceci est confirmé par la figure 6, qui présente l'ensemble des essais à 1 mA de courant de décharge pour 4 des matrices testées, avec l'abattement numérique total mesuré à l'ELPI.

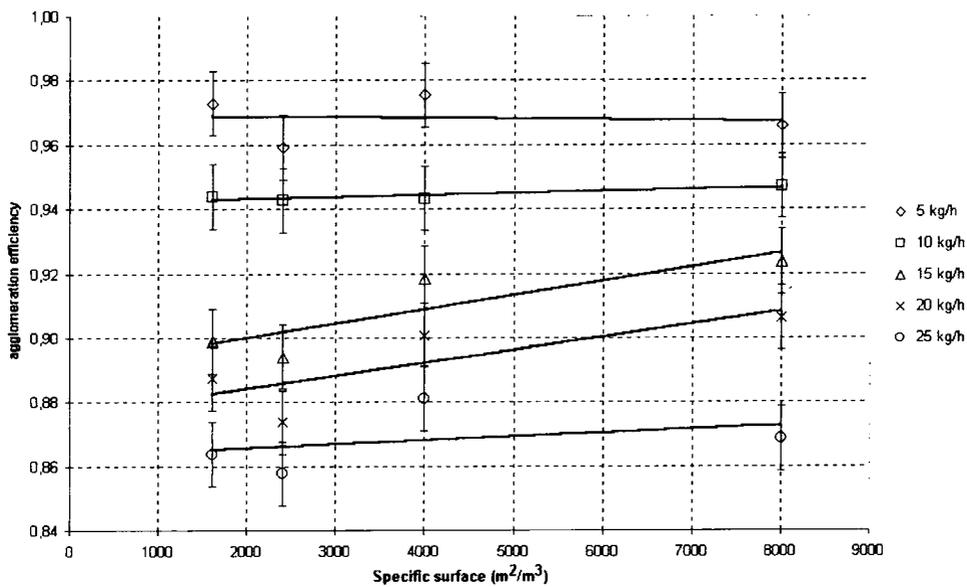


Figure 6 : abattement numérique total comparé des matrices à 1 mA de courant de décharge.

La figure 6 montre nettement la quasi-absence d'influence de la surface développée de la matrice sur l'abattement numérique. Tout au plus peut-on noter une très légère tendance positive. Nous ne pouvons pas conclure que l'aspect de la matrice filtrante a une influence notable sur l'abattement par classe, pour des surfaces développées entre 1600 et 8000  $\text{m}^2.\text{m}^{-3}$ .

## 5. Discussion

Il est possible, indépendamment de la surface développée du support de filtration, de définir une relation donnant l'abattement total en fonction de l'énergie volumique électrique injectée par la décharge couronne dans le gaz traité. La figure 7 montre l'ensemble des abattements numériques mesurés avec 2 matrices différentes en fonction de l'énergie volumique injectée.

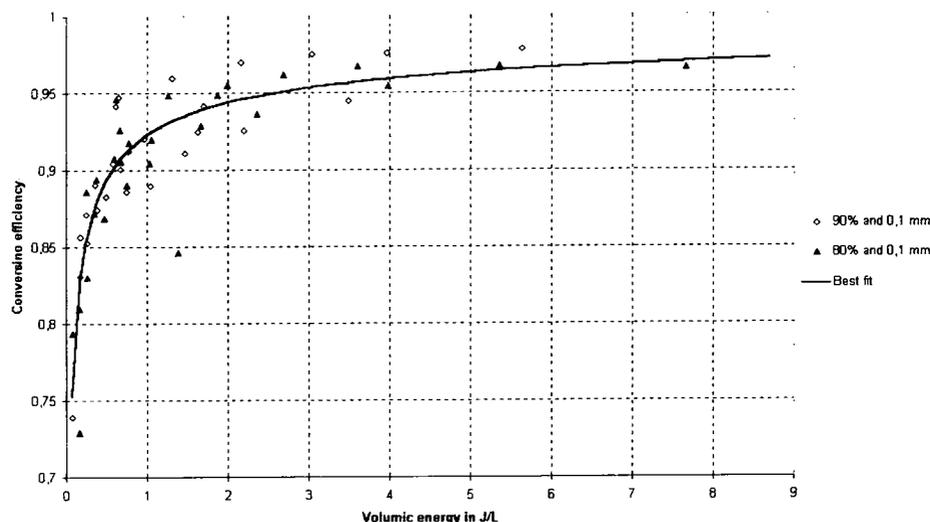


Figure 7 : Relation liant l'abattement numérique total à l'énergie volumique injectée, pour deux matrices différentes, de surface développée 1600 et 8000 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>.

L'énergie volumique  $E_v$  est définie comme suit :

$$E_v = \frac{U.I}{Q_v(P,T)} \quad (1)$$

Avec  $U$  et  $I$  le courant et la tension de décharge électrique, et  $Q_v$  le débit volumique en L/s pris à la température et à la pression de l'agglomérateur.  $E_v$  est donnée en J/L. Le coefficient d'épuration  $CE$  et l'abattement total  $\eta_{exp}$  sont définis comme suit :

$$CE = 12,98.E_v^{0,46} \quad (2)$$

$$\eta_{exp} = \frac{CE - 1}{CE} \quad (3)$$

La relation est valable pour  $0,1 < E_v < 10$  J/L. On remarque sur la figure 15 un tassement rapide de la relation après 1J/L : les particules ont atteint leur charge de saturation, augmenter l'injection d'énergie ne fait qu'augmenter le courant de décharge inutilement et sans gain notable de champ électrique. La capture des particules stagne alors.

Il n'a jamais été observé d'évolution de l'abattement par classe au cours du temps sur un même essai, ni de variations de la perte de charge du support filtrant. Il n'y a donc pas ou peu de phénomènes transitoires dans la filtration et l'agglomération. De plus, des pesées ne montrent pas d'augmentation significative de la masse du support filtrant, ce qui confirme que ce procédé fonctionne comme un agglomérateur pur, sans stockage de suies. Pourtant, malgré une très forte diminution de la fraction submicronique de l'aérosol, en aucun cas dans les essais ne permettent de mettre en évidence une quelconque augmentation du nombre de particules microniques en aval de l'agglomérateur : les particules agglomérées puis relarguées ne semble pas pouvoir être mises en évidence. L'hypothèse d'un stockage dans la matrice étant rejeté, trois phénomènes peuvent être invoqués pour expliquer ce déficit de mesure :

- Soit l'aérosol relargué est situé au delà des 5  $\mu$ m de diamètre aérodynamique, il est donc partiellement invisible à l'ELPI (bien que collectées sur le premier étage, ces particules contribuent peu au courant mesuré et sont majoritairement retenues par le chargeur).
- Soit le système de prélèvement, par l'absence totale de conditions d'isocinétisme et par les nombreux obstacles sur le parcours de cheminement du gaz prélevé (diluteur, neutraliseur, vannes et coudes) n'est pas adapté à l'échantillonnage des particules microniques.
- Soit de par leur nombre très faible, ces particules se noient dans le bruit de l'appareil dû à la diffusion des fines particules sur les premiers plateaux.

Ces trois phénomènes peuvent bien sûr se cumuler et confirment que les particules relarguées sont très peu nombreuses et par conséquent de taille importante. La baisse d'abattement inexplicée sur le plateau de l'ELPI correspondant à un diamètre aérodynamique de 6  $\mu$ m peut alors correspondre à

la signature de quelques gros et peu nombreux aérosols, début d'un mode de relargage. L'analyse des résultats en terme de granulométrie massique ne permet pas d'éclaircir ce point.

Néanmoins, nous avons pu mettre en évidence le très bon abattement sur les particules submicroniques d'un tel dispositif. Les temps de séjours obtenus sont très faibles (quelques ms). Le très faible encombrement volumique du dispositif et la faible consommation énergétique (de l'ordre de 1 J/L pour plus de 90% d'abattement des particules en nombre) laisse imaginer la possibilité d'utiliser ce dispositif comme moyen de traitement des aérosols de combustion dans un cadre industriel. Nous avons également proposé une modélisation empirique de l'abattement total en fonction de l'énergie volumique appliquée.

Le support de filtration fibreux n'a pas d'influence notable sur l'abattement des particules submicroniques dans la gamme de surfaces développées que nous avons couvert (1600 à 8000 m<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>). Il est important de noter que ces considérations ne s'appliquent également que pour des matrices tricotées à fils cylindriques. En effet, il est tout à fait possible que pour des matrices ayant des fils ou des pores présentant des effets de pointe l'abattement en particules varie avec la porosité globale.

Ce procédé ne peut pas être utilisé pour retenir les particules et les stocker en masse, mais a l'avantage de présenter des pertes de charge de quelques mBar à 35 kg/h. Ce procédé fonctionne donc comme un agglomérateur pur, avec la possibilité d'augmenter la taille des particules au moins d'un facteur 50 à 25 kg/h, étant donné l'absence de détection de particules relarguées jusqu'à 6 µm. La seule certitude que nous ayons est que la granulométrie des particules relarguées est fortement distincte de celle des particules entrantes.

De par le mode de fonctionnement de l'ELPI en électromètre, il est tout à fait possible que le très faible courant généré par l'apport de charge des agglomérats relargués passe inaperçu au milieu du courant généré par l'apport de charge de plus petites particules beaucoup plus nombreuses. Des effets de diffusion des petites particules sur les plateaux viennent en plus se rajouter à cet effet de masquage (même si une correction est appliquée lors du post – traitement des données).

## 6. Conclusion

L'agglomérateur électrostatique testé montre de forts abattements sur la gamme submicronique de l'aérosol de combustion traité et ce malgré des temps de séjour très faibles. Bien que la consommation énergétique spécifique soit tout à fait dans les ordres de grandeur des électrofiltres classiques, la compacité du système en fait un procédé très intensif, permettant des applications industrielles novatrices.

Du point de vue expérimental, notre appareillage n'a pas permis de mesurer avec certitude la granulométrie des particules relarguées. Des essais complémentaires et des modélisations sont donc nécessaires.

## 7. Bibliographie

- [1] D. B. Kittelson (1991). Further studies of electrostatic collection and agglomeration of diesel particles. SAE Transactions 100, 454-471.
- [2] W. Peukert, C. Wadenpohl (2001). Industrial separation of fine particles with difficult dust properties. Powder Technology 188, 136-148.
- [3] C. Wadenpohl, F. Löffler (1994). Electrostatic agglomeration and centrifugal separation of diesel soot particles. Chemical Engineering and Processing 33, 371-377.
- [4]. D. P.Thimsen, K. J. Baumgard, T. J. Kotz (1990). The performance of an electrostatic agglomerator as a diesel soot emission control device. SAE Transactions 99, 728-737.
- [5]. S. Kim, C. Sioutas, M. Chang (2000). Electrostatic enhancement of the collection efficiency of stainless steel fiber filters. Aerosol Science and Technology 32, 197-213.

# EVOLUTION DE L'EFFICACITE DE COLLECTION DE FIBRES ISOLEES EN FONCTION DU DEPOT

S. Schollmeier, J. Meyer, H. Umhauer, G. Kasper  
Institut de Génie des Procédés Mécaniques et de Mécanique, Université Karlsruhe

## TITLE

Evolution of the single fibre efficiency with increasing particle loading

## RESUME

Les filtres fibreux ont des porosités supérieures à 90 pour cent. C'est pourquoi il est possible de considérer la collection des particules dans l'air sur des fibres isolées. Avec les résultats pour une fibre isolée, il est possible de comprendre les processus de déposition des particules dans un filtre et de mieux expliquer l'évolution de la perte de charge et de l'efficacité d'un filtre.

L'efficacité de collection d'une fibre isolée était déterminée à partir de la mesure de l'efficacité de collection du filtre entier [1]. De plus, l'écoulement d'une fibre isolée a été plusieurs fois modélisé et il est très important d'avoir des résultats expérimentaux pour comparer. Avec la méthode présentée ici il est possible, pour la première fois, de mesurer l'efficacité de collection de fibre isolée in-situ et on-line avec un compteur optique de particule et de mesurer d'efficacité de collection avec l'augmentation du dépôt des particules sur des fibres. Il y a quelques années la technique de mesure l'efficacité de collection d'une fibre pleine était développée [2]. Cette méthode était adapté pour mesurer l'efficacité de collection des fibres isolées avec des particules déposées. La vitesse d'écoulement est mesurée directement entre les volumes de mesure du compteur optique de particules. Pendant la déposition des particules, la fibre est située entre les volumes optiques et le nombre de particules est déterminé dans une période de temps donnée. Avec les valeurs des géométries des volumes et du fibre l'efficacité de collection est calculée.

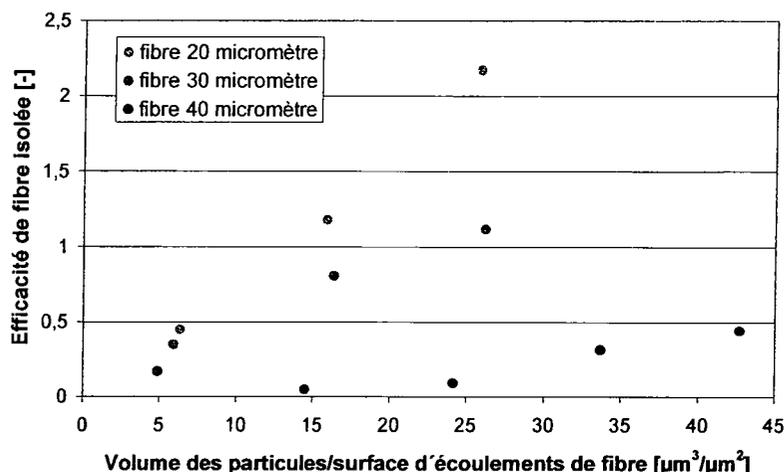


Fig. Développement d'efficacité de fibre isolée avec le grandissement du dépôt des particules sur le fibre ( $St=1,2$ ;  $d_{\text{particule}}=2,6$  micromètre)

Les expériences sont réalisées pour différentes valeurs de diamètre de fibre, de taille de particule et de vitesse mais à nombre de Stokes constant. Les évolutions d'efficacité de collection sont très différentes par exemple pour un nombre de Stokes de 1,2 et des diamètres de fibre de 20, 30 et 40 micromètre. C'est à dire que les évolutions d'efficacité de collection ne dépendent pas seulement de la valeur de nombre de Stokes mais aussi de nombre de Re. A nombre de Stokes constant, l'efficacité de filtration évolue avec la taille des particules en raison de la modification de la structure du dépôt des particules. Des travaux anciens montrent la corrélation entre la structure des dépôts et le nombre de Stokes [1]. Il faut développer ce modèle en considérant le nombre de Re. Avec la prise en compte de la structure du dépôt des particules sur les fibres, il est possible d'estimer encore mieux l'évolution de la perte de charge.

[1] Kanaoka, C. (1998). Performance of an air filter at dust loaded condition, Chapter 16 in Kvetoslav Spurny, Advances in Aerosol gas filtration.

[2] Schweers E. et al. (1994). Experimental Investigation of Particle Collection on Single Fibers of Different Configurations, Part. Part. Charact. 11, pp. 275-283

# ETUDE DES PERTES PAR EVAPORATION SUITE A LA FILTRATION D'UN AEROSOL VOLATIL PAR UN MEDIA FIBREUX

J.-C. Appert-Collin\* (1), R. Bigaut (1)(2), D. Berner (2), S. Callé-Chazelet (1) et D. Thomas (1)

Laboratoire de Filtration des Aérosols

(1) Laboratoire des Sciences du Génie Chimique / Université Henri Poincaré  
1, rue Grandville, BP 20451, 54001 Nancy Cedex.  
[Jean-christophe.appert-collin@ensic.inpl-nancy.fr](mailto:Jean-christophe.appert-collin@ensic.inpl-nancy.fr)

(2) INRS, avenue de Bourgoigne, BP 27, 54501 Vandoeuvre les Nancy cedex

## TITLE

Study of the evaporation losses of volatile liquid aerosol collected by fibrous media

## ABSTRACT

Liquid aerosol filtration by fibrous filter is more and more studied and identified. Those studies concern non volatile liquid. In majority of industrial cases, aerosol filtration is not a continuous process: one step filtration and one step of clean air permeation. During this second step, the question of the evaporation of volatile aerosol is very important for pollution and occupational health hazards. This paper investigates the evaporation of model liquid aerosol (alcohols) collected on fibrous media by clean air. Experiments and modelling have been carried out. Several parameters have been studied: clean air velocity, air temperature, mass of deposit aerosol, vapour pressure of the aerosol, filter characteristic (HEPA or coarse filter). The experiments show a constant evaporation velocity until 80 percent of the initial mass followed by a first order system evolution. The predicted influence of the different parameters on the evaporation is verified.

## RESUME

L'organisation du dépôt de particules d'un aérosol liquide lors de la filtration par un filtre à fibres commence à être largement étudiés et correctement identifiés. Ces études ont porté essentiellement sur les liquides non volatils. Cependant, la plupart des installations industrielles fonctionnent de façon discontinue : i.e filtration suivie d'un balayage par de l'air propre. Il est légitime de se poser la question d'un ré-entraînement sous forme vapeur dans le cas des aérosols semi volatils. L'étude menée ici, en association étroite avec l'INRS, couvre à la fois l'aspect expérimental et la modélisation. Il s'agit dans un premier temps d'étudier le ré-entraînement par évaporation d'aérosols liquides modèles (alcools) initialement collectés sur un media fibreux lors d'une filtration puis balayés uniquement par de l'air propre. Divers paramètres ont été étudiés : vitesse de balayage de l'air propre, température de l'air, charge initiale du filtre, pression de vapeur saturante du liquide, type de filtre (moyenne ou très haute efficacité). Les expérimentations ont ainsi montré une vitesse d'évaporation constante jusqu'à environ 80 pour cent de la charge puis une évolution du type système du premier ordre (exponentiel). Les différents paramètres opératoires font varier l'évaporation dans le sens attendu (augmentation avec la température, la vitesse). Seul le type de filtre montre des allures différentes liées sans doute à la géométrie du dépôt (film, coalescence...).

## INTRODUCTION

Le besoin de connaissances dans le domaine de l'évaporation liés à la filtration des aérosols liquides tels que les brouillards d'huile ou de produits phytosanitaires, nous a conduit à mener cette pré-étude. En effet, la plupart des installations industrielles fonctionnent de façon discontinue avec en alternance une étape de filtration suivie d'une étape de balayage par de l'air propre. Il est légitime de s'interroger sur le possible ré-entraînement sous forme vapeur dans le cas des aérosols semi volatils conduisant à une contamination en aval du filtre. Ce travail est primordial pour l'amélioration des systèmes de filtration utilisés dans les domaines de la protection collective (filtres industriels [1]) et individuelle (appareils de protection respiratoire) et de l'échantillonnage des aérosols liquides via une meilleure connaissance des pertes de matières occasionnées par évaporation [2,3,4].

La présente étude porte sur l'évaluation de la cinétique d'évaporation d'aérosols liquides collectés sur un filtre à fibre balayé par un flux d'air. Ces expérimentations ont été menées sur 2 filtres à fibres d'efficacité différente : un filtre Whatman à très haute efficacité (THE) et un filtre à moyenne

efficacité (ME) avec deux liquides « modèles » de tensions de vapeur différentes (alcools), à différentes vitesses de perméation de l'air et pour différentes températures (principalement ambiante et 35°C).

## MATERIEL ET METHODES

Les média filtrants utilisés lors de ces manipulations sont deux filtres à moyenne et très haute efficacité. Leurs principales caractéristiques sont résumées dans le tableau 1.

Tableau 1 : Caractéristiques des 2 filtres utilisés

	Whatman	Polyester
Masse surfacique ( $\text{g.m}^{-2}$ )	74,7	400
Epaisseur (mm)	0,41	1,22
Compacité	0,073	0,237
Diamètre moyen fibre (arithmétique) ( $\mu\text{m}$ )	0,36	20
Nature des fibres	quartz	polyester

Pour ces premières expériences, les liquides utilisés sont 2 liquides de la famille des alcools : le 1-hexanol et le 1-octanol. Quelques caractéristiques sont données dans le tableau 2

Tableau 2 : Caractéristiques des 2 alcools

	Hexanol	Octanol
Formule brute	$\text{C}_6\text{H}_{14}\text{O}$	$\text{C}_8\text{H}_{18}\text{O}$
Masse molaire (g/mol)	102,17	130,23
densité	0,82	0,84
Pression de vapeur saturante Pvs à 30°C (Pa)	163,2	16,9

Les 2 aérosols ont été caractérisés d'un point de vue granulométrique en sortie de nébuliseur à l'aide d'un impacteur en cascade de type QCM (Quartz Crystal Microbalance). Ce sont 2 aérosols submicroniques de diamètre médian en masse 0,41 $\mu\text{m}$  et 0,58  $\mu\text{m}$  respectivement pour l'hexanol et l'octanol.

### Bancs expérimentaux

Les manipulations se sont déroulées en deux étapes:

Une étape de filtration : l'aérosol généré à l'aide d'un nébuliseur en verre (type DeVilbiss 40) est filtré au travers du média fibreux choisi pendant un temps de filtration donné correspondant à une masse d'aérosol collectée sur le filtre (figure 1). Cette étape de filtration n'a pas fait l'objet d'une caractérisation en terme de perte de charge et efficacité de filtration (la caractérisation de la filtration d'aérosols liquides a été faite au travers d'autres études [5])

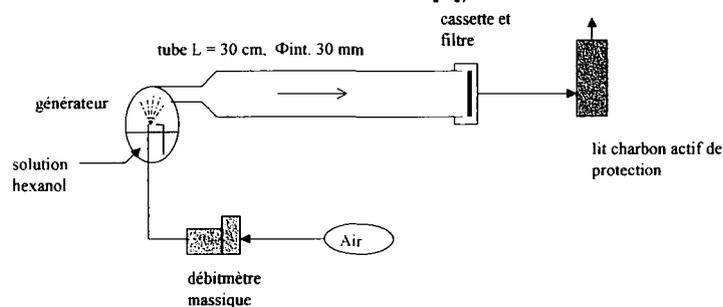


Figure 1 : Montage expérimental de génération et de collecte

Une étape de balayage à l'air : le filtre colmaté est ensuite balayé par un flux d'air propre avec un débit donné et contrôlé (figure 2). Périodiquement, le média filtrant est pesé à l'aide d'une balance Sartorius (précision : 0,1mg) afin de déterminer la perte de masse de l'aérosol. La masse initiale collectée sur le filtre sera dénommée « charge » du filtre.

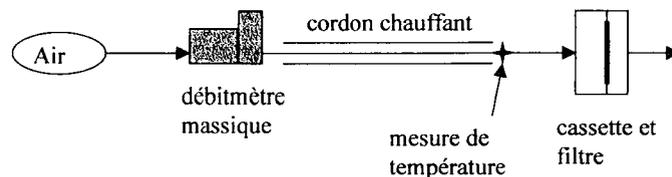


Figure 2 : Montage expérimental du balayage à l'air propre

### Description des manipulations

Au cours de cette étude, 3 « charges » (35, 70 et 140 mg) d'aérosols et 3 vitesses de balayage de l'air (1,25 – 2,5 et 5 cm.s<sup>-1</sup>) ont été testées à différentes températures (20, 35 et 45°C) pour l'hexanol sur filtre Whatman. Afin de comparer la structure des médias filtrants sur la perte de masse, une étude similaire a été réalisée sur le filtre à moyenne efficacité à température ambiante.

## RESULTATS

### Etude sur l'hexanol

L'ensemble des expérimentations a été réalisé 2 fois pour chaque condition opératoire et a montré une très bonne reproductibilité.

La figure 3 montre l'évolution de la masse d'hexanol évaporée en fonction du temps pour une vitesse de balayage de l'air constante à température ambiante. On observe que la totalité de l'aérosol collecté est ré-entraîné (ou évaporé). On observe une partie linéaire jusqu'environ 80% de la charge initiale puis une courbe type 1<sup>er</sup> ordre. Cette rupture aux environs de 80% a également été observée dans certaines publications. Quelle que soit la charge, la vitesse d'évaporation dans la partie linéaire est la même ce qui semble tout à fait logique.

La figure 4 met en évidence l'influence de la vitesse de balayage sur l'évaporation pour une charge donnée.

La vitesse d'évaporation est d'autant plus importante que le débit de balayage de l'air est élevé. Elle est proportionnelle au débit de balayage de l'air.

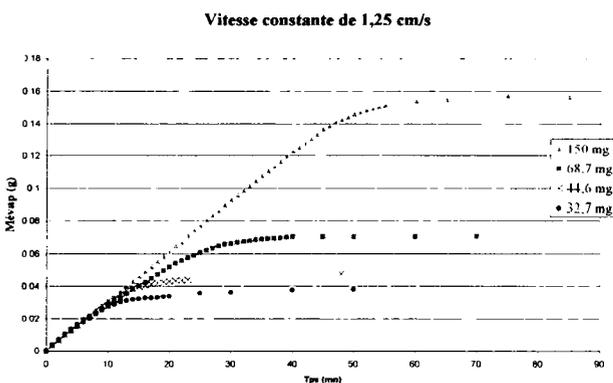


Figure 3 : Evaporation de l'hexanol pour différentes charges collectées à température ambiante et vitesse constante sur le filtre Whatman

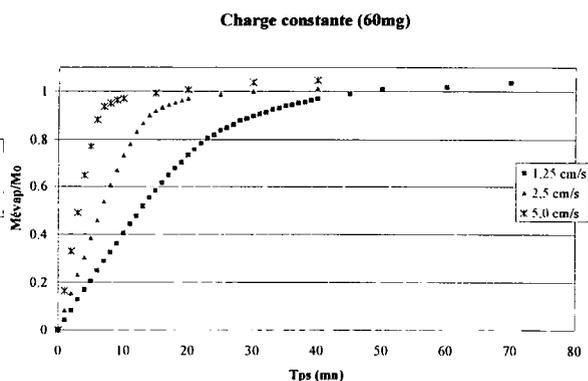


Figure 4 : Evaporation de l'hexanol pour différentes vitesses à température ambiante et charge constante sur le filtre Whatman

L'augmentation de la température conduit à un accroissement de la vitesse d'évaporation, dans la partie linéaire des courbes (tableau 3). Ce résultat est cohérent puisque la pression de vapeur saturante s'accroît avec la température. Néanmoins, cette augmentation ne correspond pas à celle attendue compte tenu de l'augmentation de la pression de vapeur saturante. Il est possible que la température de l'air mesurée à une dizaine de cm en amont du porte-filtre (cf. montage Figure 2) ne corresponde pas à celle de l'air arrivant sur le filtre.

Tableau 3 : Vitesse d'évaporation à 20°C et 35°C en fonction de la vitesse de perméation

Vitesse air (cm.s <sup>-1</sup> )	Vitesse évaporation (mg.min <sup>-1</sup> )	
	θ=20°C	θ=35°C
1,25	3,1	3,8
2,5	5,7	6,4
5	11,2	14,9
Pvs (Pa) 1-hexanol	71,4	240,5

#### Influence du media

La figure 5 compare les résultats obtenus à partir du filtre THE à ceux du filtre ME. Le comportement observé pour le filtre ME est différent dans la deuxième partie. Il semblerait que la partie exponentielle soit quasiment inexistante. L'évaporation est constante et totale et se fait à la même vitesse que sur le filtre THE (figure 5).

La nature et la structure du filtre ne semble donc pas influencer sur la vitesse d'évaporation de l'aérosol mais semble agir sur la disponibilité du liquide en fin d'évaporation.

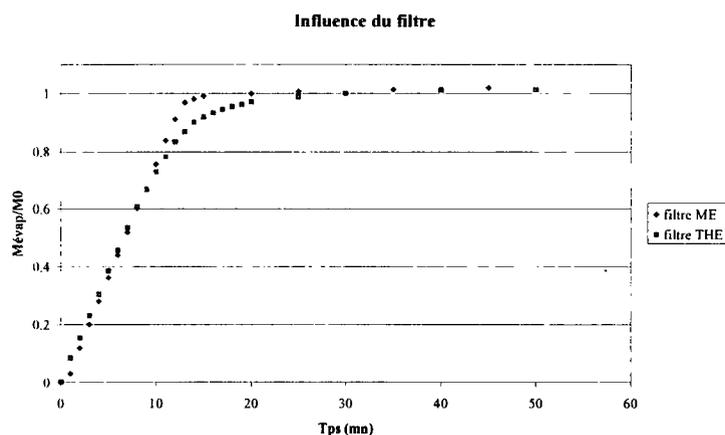


Figure 5 : Influence du type de media filtrant (THE et ME) sur l'évaporation de l'hexanol à température ambiante - vitesse 2,5 cm.s<sup>-1</sup>

#### Influence de la pression de vapeur : cas de l'octanol

En raison de sa tension de vapeur plus faible, l'octanol s'évapore plus lentement que l'hexanol, dans les mêmes conditions opératoires (figure 6). L'allure des courbes est sensiblement la même : phase d'évaporation constante puis phase type 1<sup>er</sup> ordre.

En ce qui concerne la phase linéaire, le facteur de proportionnalité des vitesses d'évaporation entre l'octanol et l'hexanol correspond assez bien au facteur correspondant aux pressions de vapeur saturante (facteur 7 environ).

### MODELISATION DES RESULTATS

Les modèles développés dans la littérature sont pour la plupart assez complexes [6,7,8]. Un modèle simple a été développé faisant appel à deux paramètres définis a priori : les 80% de charge initiale correspondant à la rupture de courbe pour l'un (paramètre également utilisé dans certains modèles de la littérature) et la surface du filtre offerte à la collecte des aérosols (à savoir ¼ de la surface totale) pour l'autre.

Dans le premier mode d'évaporation (taux constant), on considère que la surface d'évaporation reste constante et que le liquide se présente sous la forme d'un film dont l'épaisseur diminue au cours du temps. Dans le second mode (taux décroissant), le film atteint son épaisseur limite et se rompt conduisant à une surface assujettie à l'évaporation qui diminue au cours du temps.

#### Modèle 1 :

➤ Pour le 1<sup>er</sup> mode, on aboutit à une évolution linéaire de la masse évaporée du type :

$$\frac{dm(t)}{dt} = \Phi_m \cdot S_{fa} \quad (1)$$

La surface évaporante susceptible d'être recouverte par le film liquide a été estimée à partir de l'épaisseur de média où les particules sont déposées. Un calcul de l'efficacité d'un média THE montre que plus de 90 % de l'aérosol est arrêté sur le premier quart de l'épaisseur ( $h' = h/4$ ). La surface évaporante est donc estimée au quart de la surface totale développée par les fibres, soit :

$$S_{fa} = \frac{\pi \cdot \alpha \cdot D_f \cdot h}{4 \cdot d_f} \quad (2)$$

Avec :  $D_f$  le diamètre du filtre,  $h$  son épaisseur,  $\alpha$  sa compacité et  $d_f$  le diamètre des fibres.

$$\text{Le flux de matière (kg.s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}) \text{ est donné par : } \Phi_m = k \cdot \Delta C \quad (3)$$

Avec  $k$  le coefficient de transport, homogène à une vitesse ( $\text{m.s}^{-1}$ ) et  $\Delta C = C_s - C_i$ ,  $C_s$  et  $C_i$  désignant respectivement la concentration de vapeur saturante et la concentration partielle de la vapeur dans l'air ( $C_i = 0$  dans nos expériences).

$$\text{L'expression du flux est donnée par : } \Phi_m = j_m \cdot \frac{U \cdot \Delta C}{Sc^{2/3}} \quad (4)$$

où  $U$  désigne la vitesse de perméation,  $Sc$  le nombre de Schmidt et  $j_m$  le facteur de transport adimensionnel. Il existe de nombreuses corrélations du facteur de transport, généralement exprimées sous la forme :  $j_m = a \cdot Re^b$ . (5)

Comme aucune des corrélations recensées dans la littérature ne correspond à un média constitué de fibres de diamètre micronique, les paramètres  $a$  et  $b$  ont été ajustés à partir des données expérimentales liées à l'hexanol. Les valeurs des paramètres  $a$  et  $b$ , ainsi déterminées, sont :  $a = 0,063$  et  $b = -0,062$ .

➤ Pour le 2<sup>nd</sup> mode, la surface d'évaporation diminue de façon exponentielle conduisant à une masse évaporée de la forme :

$$\frac{dm(t)}{dt} = \Phi_m \cdot S_{fa} \cdot \exp\left[-\frac{\Phi_m \cdot S_{fa}}{m_t} \cdot (t-t')\right] \quad t \geq t' \quad (6)$$

où  $t'$  est le temps correspondant à la rupture de courbe à 80% de la masse initiale et  $m_t$  la masse restante à cette même transition  $t'$  ( $m_t = 0,2 \cdot m_0$ , avec  $m_0$  la masse initiale).

La comparaison des courbes d'évaporation obtenues avec ce modèle est donnée sur la figure 6. Ce modèle simplifié donne déjà des résultats très corrects, que ce soit pour l'hexanol ou l'octanol.

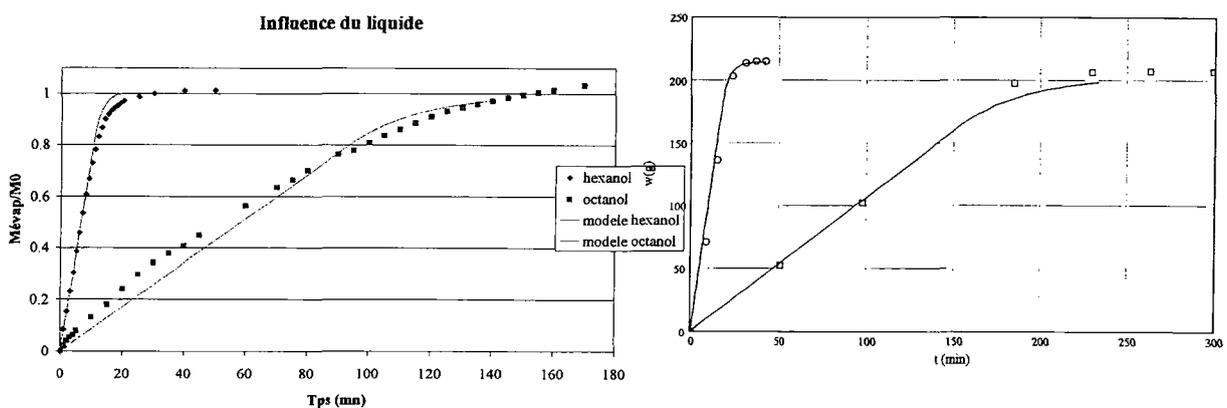


Figure 6 : Comparaison modèle 1/expériences pour l'hexanol et l'octanol à température ambiante sur le filtre THE – vitesse  $2,5 \text{ cm.s}^{-1}$ .

Figure 7 : Comparaison modèle 2 /expérience à partir des données tirées de Raynor et Leith.  $\circ$  : tétradécane -  $\square$  : hétéradécane.

Modèle 2 - Approche simplifiée

Plusieurs auteurs (notamment Raynor et Leith [6], Zhang et Mc Murry [7]) ont montré théoriquement que l'air se saturait très rapidement en traversant le filtre imprégné du liquide. Le flux évaporé correspond donc au flux maximum donné par l'expression:

$$\Phi_m = U \cdot C_s \quad (k = U) \quad (7)$$

Cette expression remplace celle décrite par la relation 4 ; les deux modes d'évaporation sont ensuite les mêmes que ceux décrits précédemment.

Ce modèle a été ensuite confronté à des données expérimentales de la littérature. La figure 7 présente une comparaison modèle/expérience établie à partir des données tirées de Raynor et Leith [7]. Les caractéristiques produit/filtre sont données dans le tableau 4. Deux produits étaient testés : le tétradécane et l'hexadécane.

Tableau 4 : Caractéristiques produit/filtre (exp. Raynor et Leith), Pvs : pression de vapeur saturante, D : coefficient de diffusion de la vapeur dans l'air.

Produit	Formule	M (g/mol)	$\rho$ (kg.m <sup>-3</sup> )	Pvs (Pa) à 20 °C	Teb (K)	D (cm <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )
hexadécane	C16H34	226	774	0,14	287,5	0,04
tétradécane.	C14H30	198,4	761	1,51	526,7	0,045
filtre	h (mm)	$\alpha$ (%)	df ( $\mu$ m) (Davies)	Df (mm)		
	8,8	1,9	2,9	81		

## CONCLUSION

Ces premières expériences ont démontré la faisabilité de l'étude et son intérêt quant à l'évaporation d'aérosols initialement collectés sur un filtre à fibre. Cette étude sera poursuivie à la fois d'un point de vue expérimental et modélisation. En ce qui concerne la partie expérimentale, le banc sera amélioré afin d'avoir un meilleur contrôle de la température. Il sera également modifié afin de pouvoir récupérer les données en continu en adaptant en aval du filtre un système de mesure de la concentration. Cette solution a déjà été testée et a donné de bons résultats en utilisant un photoioniseur (l'utilisation de capteurs à semi conducteur sera également étudiée). En plus de la température, les paramètres étudiés seront :

- l'évaporation pour de faibles masses de particules déposées
- les produits à faible tension de vapeur (< 100 mPa)
- les mélanges de produits : cas des « huiles » de coupe de l'industrie mécanique par ex.
- influence du média, température et humidité de l'air,

En ce qui concerne la modélisation, il s'agira d'affiner le modèle et de se doter des modèles plus sophistiqués décrits dans la littérature. La modélisation de l'évaporation de dépôts de particules sous forme de gouttelettes sera également étudiée.

## REFERENCES

- 1 - S.J. Cooper, P.C. Raynor, D. Leith (1996). Evaporation of mineral oil in a mist collector. *Appl. Occup. Environ. Hyg.* 11(10), p.1204-1211
- 2 - J. Volckens, M. Boundy, D. Leith (200). Mist concentration measurements II : Laboratory and field evaluations. *Appl. Occup. Environ. Hyg.*, 15(4)
- 3 - J.J. McAneny, D. Leith, M.G. Boundy (1995). Volatilization of mineral oil mist collected on sampling filters. *Appl. Occup. Environ. Hyg.* 10(9), p.783-787.
- 4 - Y. Cheng, C. Tsai (1997). Evaporation loss of ammonium nitrate particles during filter sampling. *J. Aerosol Sci.* 28(8), p.1553-1567.
- 5 - T. Frising (2004). Etude de la filtration des aérosols liquides et de mélanges d'aérosols liquides et solides. Thèse INPL
- 6 - M. Furuuchi, H. Fissan, J. Horodecki (2001). Evaporation behavior of volatile particles on fibrous filter flushed with particle-free dry air. *Powder Technology* 118, p.171-179.
- 7 - P.C. Raynor, D. Leith (1999). Evaporation of accumulated multicomponent liquids from fibrous filters. *Ann. Occup. Hyg.* 43(3).
- 8 - X.Q. Zhang, P.H. McMurry (1987). Theoretical analysis of evaporative losses from impactor and filter deposits. *Atmospheric Environment*, 21(8).

# TRAITEMENT COMBINE DE COMPOSES ORGANIQUES VOLATILS ET DE PARTICULES SUR DES FEUTRE ET TISSU DE CARBONE ACTIVE

C. Lorimier\*(1), A. Subrenat(1), L. Le Coq(1) et P. Le Cloirec(1)

(1) Ecole des Mines de Nantes, GEPEA, UMR CNRS 6144, 4 rue A. Kastler, BP 20 722,  
44 307 Nantes cedex 3.  
celine\_lorimier@yahoo.fr

## TITLE

Combined treatment of Volatile Organic Compounds and particles on activated carbon felt and cloth.

## ABSTRACT

Particles and Volatile Organic Compounds (VOCs) are two important pollutants of indoor air. Generally, these kind of pollutants are not simultaneously treated by a unique treatment system. The objective of this study is to determine the ability of two medias made of activated carbon fibres to be used in combined treatment of VOCs and particles. In this aim, the influence of coupling adsorption and filtration onto treatment performances is evaluated by comparison with each treatment process studied separately. Adsorption, filtration and combined treatment efficiency measurements are thus performed on plane medias perpendicular to the flow. The two different medias exhibit high adsorption capacities at saturation ( $> 200 \text{ mg.g}^{-1}$ ) and low critical thickness ( $< 1 \text{ mm}$ ). They also reveal reasonably high efficiencies ( $E_{0.25\text{-ini}} \geq 25 \%$  et  $E_{\text{ini}} \geq 30 \%$ ) for initial pressure drops in the range 176 - 408 Pa, at  $0,50 \text{ m.s}^{-1}$ . In the studied experimental conditions, the influence of coupling adsorption and filtration appears to be negligible on the pollutant capture mechanisms of each process.

## RESUME

Les particules et les Composés Organiques Volatils (COV) sont deux polluants de nos espaces de vie quotidiens. Mais les systèmes de filtration actuellement employés en air intérieur ne sont pas pleinement satisfaisants pour les collecter de façon simultanée. L'objectif de cette étude est de déterminer la capacité de deux médias à base de fibres de carbone activé à traiter conjointement les COV et les particules. Ainsi, les interactions possibles entre les mécanismes de capture des deux familles de polluants sont étudiées. Des mesures d'efficacité d'adsorption d'une part, de filtration d'autre part et de traitement combiné COV / particules sont donc effectuées sur des médias plans perpendiculaire à l'écoulement. Les médias considérés révèlent des capacités d'adsorption à saturation élevées ( $> 200 \text{ mg.g}^{-1}$ ) pour de faibles épaisseurs critiques ( $< 1 \text{ mm}$ ). Par ailleurs, ils présentent des efficacités de filtration de l'ordre de celles des filtres fins ( $E_{0.25\text{-ini}} \geq 25 \%$  et  $E_{\text{ini}} \geq 30 \%$ ), pour des pertes de charges initiales comprises entre 176 et 408 Pa, à  $0,50 \text{ m.s}^{-1}$ . Dans les conditions expérimentales et pour les polluants considérés, l'impact du couplage adsorption / filtration se révèle négligeable tant sur les performances en filtration de ces médias que celles en adsorption. Ceci indique donc que la capacité d'un média à traiter conjointement les particules d'alumine et le toluène peut être déduite de résultats de mesures d'adsorption et de filtration effectuées séparément.

## 1. Introduction

Dans les pays développés, un citoyen passe plus de 80% de son temps en espace confiné (Squinazi, 2002) : bâtiments, moyens de transports. Mais l'air intérieur contient des polluants, et en particulier des Composés Organiques Volatils (COV) et des particules (Rault, 1991 et Le Cloirec, 1998). Ces deux familles de polluants peuvent entraîner des troubles de santé : allergies, irritations, maladies respiratoires et même cancers (Jones, 1999).

L'adsorption des COV sur charbon actif et la filtration des particules sur médias fibreux sont deux procédés classiques d'épuration de l'air, mais il n'existe pas à ce jour de filtres combinés capables de collecter simultanément ces deux types de polluants de façon pleinement satisfaisante. Les systèmes constitués de deux procédés distincts associés en série sont généralement encombrants et génèrent une perte de charge importante, tandis que les filtres multicouches (formés de grains de charbon actif insérés entre deux médias filtrants) sont souvent difficile à mettre en œuvre et présentent des passages préférentiels limitant leur efficacité (Reinhardt, 1996 et Bräunling, 2004). Par ailleurs, l'impact du couplage adsorption / filtration sur chacun de ces procédés n'est pas considéré dans la littérature.

Cette étude vise à déterminer les propriétés adsorbantes et filtrantes de deux médias fibreux à base de fibres de carbone activé. Ainsi, l'influence du traitement combiné COV / particules sur les mécanismes d'adsorption de COV d'une part, et de filtration de particules d'autre part est évalué .

## 2. Méthodologie expérimentale

### 2.1. Médias et conditions expérimentales

Deux médias commerciaux Actitex (Saint-Maurice, France) formés de fibres de carbone activé (FCA) sont considérés : un feutre et un tissu natté de 1. Leur structure est caractérisée par analyse d'images de Microscope Electronique à Balayage (MEB), porosimétrie mercure et adsorption / désorption d'azote à 77 K, aux échelles inter-fibres et intra-fibre (Tableau 1).

	Epaisseur, $e$ (mm)	Grammage, $W$ (g.m <sup>-2</sup> )	Surface spécifique intra-fibre, $S_{BET}$ (m <sup>2</sup> .g <sup>-1</sup> )	Porosité totale inter-fibres, $\varepsilon$ (-)	Diamètre de fibre, $d_f$ ( $\mu$ m)
Feutre	2,55	146	1259	0,87	12,2
Tissu	0,49	131	1026	0,63	16,7

Tableau 1 : Propriétés de structure des médias étudiés

En accord avec la norme DIN 71460-2 (1994), le COV étudié est du toluène, à une concentration de 80 ppm<sub>v</sub> (307 mg.m<sup>-3</sup>). Les particules sont des particules d'alumine de diamètre modal 0,28  $\mu$ m (pour un diamètre maximal de 4,7  $\mu$ m) générées à 70 000 particules.cm<sup>-3</sup>. Les mesures sont réalisées à température ambiante (20 °C). L'échantillon de matériau testé est maintenu en configuration plane perpendiculaire à l'écoulement et la vitesse frontale de l'air,  $v$ , est de 0,50 m.s<sup>-1</sup>.

### 2.2. Mesures d'adsorption

En amont de l'échantillon testé, un système de barbotage en réacteur diphasique couplé à un générateur d'air humide, assure le passage d'un flux constant d'air chargé en toluène au travers du média, à un taux d'humidité relative fixé (14 %). Un détecteur à ionisation de flamme (FID), placé en amont et en aval du média, permet de mesurer en continu la concentration correspondante en COV, respectivement  $C_0$  et  $C$ .

Le rapport entre la concentration aval et la concentration amont en COV en fonction du temps est représenté par la courbe de percée. Le temps de percée,  $t_p$ , correspond au moment à partir duquel le taux de toluène non traité commence à être significatif ( $C/C_0 = 0,1$ ). La capacité d'adsorption à saturation,  $q_{sat}$  (1), représente la quantité de toluène adsorbée par masse de média à  $t = t_{sat}$  (temps de saturation), avec  $N$  le nombre de couches de médias.

$$q_{sat} = \frac{V}{WN} \int_0^{t_{sat}} (C_0 - C) dt \quad (1)$$

L'épaisseur critique,  $e_c$ , c'est-à-dire l'épaisseur minimale de média à mettre en œuvre pour que la percée ne soit pas immédiate peut être obtenue à l'aide du modèle d'Adams-Bohart (2) par régression linéaire sur la courbe expérimentale  $t_p = f(e)$  (Le Cloirec, 1998).

$$t_p = \frac{q_{AB} \rho}{C_0 v} (e - e_c) \quad (2)$$

Où :  $q_{AB}$  est la capacité d'adsorption déduite du modèle d'Adams-Bohart ( $\text{mg.g}^{-1}$ ) et  $\rho$  la masse volumique du média ( $\text{g.m}^{-3}$ ).

### 2.3. Mesures de filtration particulaire

Le débit d'air et la concentration en particules sont contrôlés respectivement, par un ventilateur centrifuge situé en aval du média et par un système de génération de particules situé en amont. Ce dernier est composé d'un générateur de particules à brosse rotative, associé à un neutraliseur de charge. Les mesures sont effectuées à humidité relative ambiante (45 %). Un compteur de particules / granulomètre et un capteur de pression différentielle permettent de mesurer en continu la concentration en nombre de particules en amont et en aval du média (respectivement  $C_{N0}$  et  $C_N$ ) et la perte de charge,  $\Delta P$ . L'efficacité globale du média,  $E$ , ainsi que l'efficacité fractionnelle,  $E_\phi$  (pour chaque particule de diamètre  $d_p = \phi$ ) peuvent ainsi être calculées (3).

$$E = \frac{C_{N0} - C_N}{C_{N0}} = \frac{\sum_{\phi} (C_{N0-\phi} - C_{N-\phi})}{\sum_{\phi} C_{N0-\phi}} \quad \& \quad E_{\phi} = \frac{C_{N0-\phi} - C_{N-\phi}}{C_{N0-\phi}} \quad (3)$$

### 2.4. Mesures en traitement combiné

Les mesures en traitement sont effectuées à humidité relative ambiante (45 %) sur un montage adapté des deux montages précédents, de sorte à générer et analyser conjointement des particules et des COV. Deux types de mesures sont réalisées sur ce montage. Les premières consistent à générer la concentration souhaitée en toluène dès stabilisation de la concentration en particules, afin d'étudier l'influence du traitement combiné en début de filtration, sur média vierge de particules. Les secondes consistent à attendre que le média soit chargé de particules, avant de générer la concentration souhaitée en toluène. Le test d'adsorption en dynamique est alors réalisé sur des médias chargés en particules d'environ  $760 \text{ g.m}^{-2}$ . L'objectif de ce second groupe de mesures est d'évaluer l'influence de la présence de particules préalablement captées par le média sur ses performances en adsorption.

Ces deux types de mesures sont différenciés dans la suite de ce chapitre, sur les courbes obtenues, par les notations « Combi. » dans le premier cas et « Chargé part. » dans le second, en opposition avec les mesures effectuées en adsorption seule, notées « Ads. » et en filtration particulaire seule, notées « Part. ».

## 3. Résultats et discussion

### 3.1. Adsorption – Traitement combiné

Compte tenu des coefficients de détermination obtenus et de la faible dispersion des points expérimentaux ( $R^2 > 0,980$ ), les points expérimentaux  $t_p = f(e)$  du feutre et du tissu apparaissent être représentés de façon satisfaisante par une droite, en accord avec le modèle d'Adams-Bohart (Figure 1). L'épaisseur critique correspondante s'avère faible et comparable pour les deux médias : 0,8 mm pour le tissu et 1,0 mm pour le feutre.

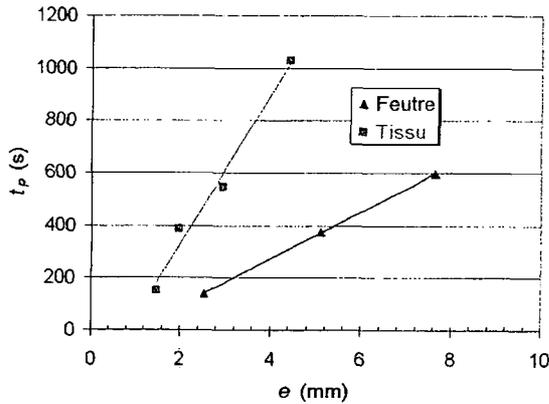


Figure 1 : Courbe expérimentale  $t_p = f(e)$

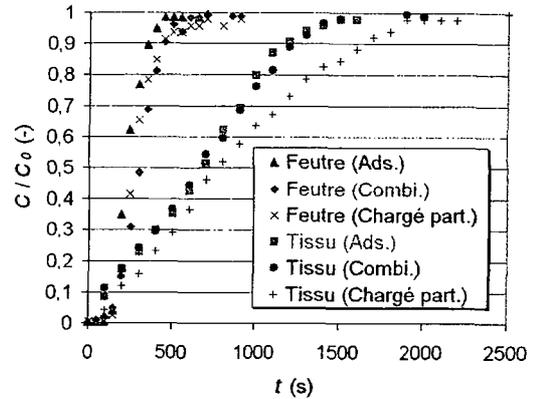


Figure 2 : Courbes de percée

De sorte à toujours avoir  $e > e_c$  (Tableau 1) et pour que le temps de percée des deux matériaux soit similaires, les mesures de traitement combiné présentées par la suite sont réalisées avec une couche du feutre ( $e = 2,55$  mm) et quatre couches du tissu ( $e = 1,96$  mm).

Le Tableau 2 reporte les valeurs de capacités d'adsorption à saturation issues des mesures en adsorption seule, en traitement combiné et en adsorption sur média chargé de particules, ainsi que l'incertitude associée déduite des deux essais de reproductibilité effectués.

	Capacité d'adsorption à saturation, $q_{sat}$ ( $\text{mg.g}^{-1}$ )		
	Ads.	Combi.	Chargé part.
Feutre	$255 \pm 27$	$283 \pm 45$	$286 \pm 35$
Tissu	$201 \pm 37$	$238 \pm 3$	$241 \pm 38$

Tableau 2 : Capacités d'adsorption des médias dans différentes conditions de mesure

Le tissu et le feutre présentent des capacités d'adsorption à saturation supérieures à  $200 \text{ mg.g}^{-1}$ , ce qui correspond à des valeurs élevées, et ce particulièrement pour la faible concentration en toluène et la vitesse élevée testées.

Les courbes de percée du tissu et du feutre apparaissent similaires en adsorption seule, en traitement combiné et en adsorption sur média chargé de particules (Figure 2). Ceci est d'ailleurs confirmé par les valeurs de capacités d'adsorption à saturation comparables obtenues pour ces trois types de mesures, en tenant compte de l'incertitude (Tableau 2).

Dans les conditions expérimentales et pour les polluants considérés, il apparaît donc que l'impact du couplage adsorption / filtration se révèle négligeable sur les performances en adsorption des médias fibreux, et ce que le média soit vierge ou chargé de particules. Il n'y a donc pas diminution de la capacité d'adsorption des médias étudiés du fait de la présence de particules d'alumine dans l'écoulement et de leur dépôt à la surface des fibres.

### 3.2. Filtration – Traitement combiné

La Figure 3 représente l'efficacité initiale de filtration en fonction du diamètre de particules, tandis que la Figure 4 rend compte de l'évolution de l'efficacité globale de filtration au cours du colmatage (en fonction du nombre de particules captées par surface de média :  $N_{p-capt}/S$ ). Ces deux figures permettent de comparer les résultats obtenus en filtration seule et en traitement combiné, pour le feutre et le tissu.

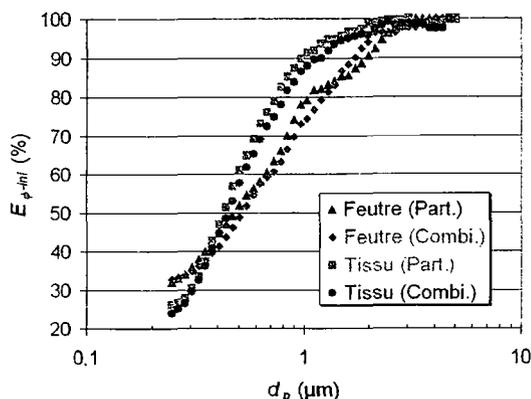


Figure 3 : Efficacité fractionnelle initiale

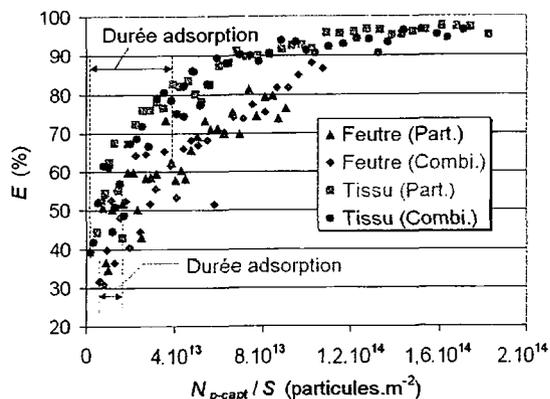


Figure 4 : Evolution de E au cours du colmatage

En accord avec les considérations théoriques sur l'évolution de l'efficacité de filtration (Brown, 1993),  $E_p$  croît avec le diamètre de particules dans la gamme de taille de particules étudiées (0,24 - 9,31  $\mu\text{m}$ ), et  $E$  augmente au cours du colmatage du média (Figure 3 et Figure 4).

L'efficacité de filtration d'une couche du feutre et de quatre couches du tissu se révèlent du même ordre de grandeur :  $E_{0,25-ini} = 29\%$ ,  $E_{1-ini} = 85\%$  et  $E_{4,1-ini} = 99,5\%$  en moyenne, et  $E_{ini} \geq 35\%$ . Etant donné qu'il s'agit des valeurs minimales d'efficacité et sachant que ces deux médias ne sont habituellement pas dédiés à la filtration de particules, ces résultats apparaissent encourageants en vue de l'utilisation de ces médias comme filtres de moyenne et haute efficacité. Leurs performances en filtration sont en effet supérieures à celles des préfiltres, de l'ordre de celles des filtres fins.

Dans les conditions expérimentales et pour les polluants considérés, il semble que l'impact du couplage adsorption / filtration sur l'efficacité fractionnelle de filtration soit négligeable, que ce soit pour le feutre ou le tissu (Figure 3). De même, l'évolution de l'efficacité globale de filtration au cours du colmatage n'apparaît pas être influée par la présence de molécules de toluène adsorbées par le média ou contenues dans l'air en écoulement (Figure 4). Dans la gamme de tailles de particules étudiée, il n'y a donc pas d'influence de la présence de molécules sur la capture des particules.

La Figure 5 et la Figure 6 présentent l'évolution de la perte de charge au cours du colmatage, respectivement pour le feutre et le tissu. Ces deux figures permettent de comparer les résultats obtenus en filtration seule et en traitement combiné.

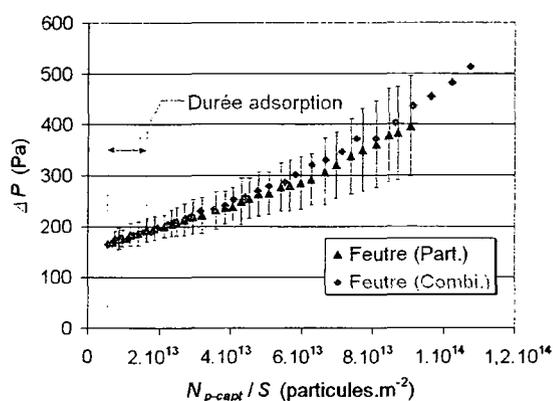


Figure 5 :  $\Delta P = f(N_{p-capt} / S)$  - Feutre

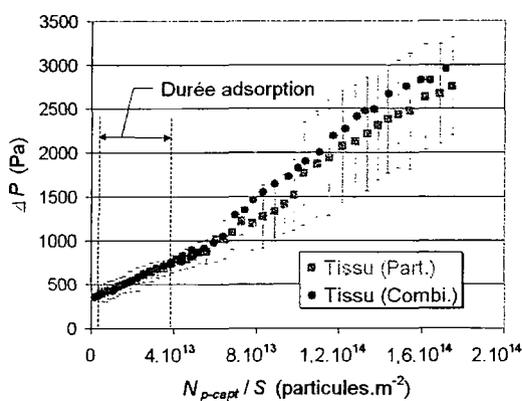


Figure 6 :  $\Delta P = f(N_{p-capt} / S)$  - Tissu

La perte de charge initiale générée par quatre couches du tissu (408 Pa) se révèle plus élevée que celle générée par une couche du feutre (176 Pa). Dans l'objectif de développer des matériaux présentant de faibles pertes de charge, le feutre semble donc plus adapté que le tissu. Ceci est d'ailleurs confirmé par les pertes de charge relevées à  $N_{p-capt} / S = 9.10^{13}$  particules. $\text{m}^{-2}$  (soit environ une masse surfacique de particules de 108  $\text{g}.\text{m}^{-2}$ ) environ 4 fois plus élevées pour le tissu ( $N = 4$ ) que le feutre ( $N = 1$ ).

Compte tenu de l'enveloppe des résultats minimum et maximum reportés, l'évolution de la perte de charge au cours du colmatage du feutre et du tissu apparaît similaire pour les mesures effectuées en filtration seule et en traitement combiné.

Dans les conditions expérimentales et pour les polluants considérés, il apparaît donc que le couplage adsorption / filtration n'a pas d'influence sur l'évolution de la perte de charge des médias fibreux au cours du colmatage en particules et molécules.

#### 4. Conclusion

Cette étude a permis d'analyser l'influence du traitement combiné sur les mécanismes d'adsorption de COV d'une part, et de filtration de particules d'autre part. De plus, la capacité de deux médias fibreux à base de FCA à être employé en traitement combiné COV / particules a été évaluée.

Dans les conditions expérimentales considérées, le feutre ( $N = 1$ ) et le tissu ( $N = 4$ ) présentent de bonnes capacités d'adsorption à saturation ( $> 200 \text{ mg.g}^{-1}$ ) pour de faibles épaisseurs critiques ( $< 1 \text{ mm}$ ). Par ailleurs, ils révèlent des efficacités de filtration supérieures à celles des préfiltres, de l'ordre de celles des filtres fins ( $E_{\phi\text{-ini}} \geq 25 \%$  et  $E_{\text{ini}} \geq 30 \%$ ). Ceci est d'autant plus satisfaisant que ces médias ne sont habituellement pas dédiés à la filtration. La perte de charge initiale de quatre couches du tissu apparaît toutefois assez élevée (408 Pa), tandis que celle du feutre s'avère raisonnablement faible (176 Pa).

Dans les conditions expérimentales et pour les polluants considérés, l'impact du couplage adsorption / filtration apparaît négligeable tant sur le mécanisme d'adsorption des COV que celui de filtration des particules. Il n'y a pas diminution de la capacité d'adsorption des médias du fait de la présence de particules d'alumine dans l'écoulement et de leur déposition à la surface des fibres. Il n'y a pas non plus d'influence de la présence de molécules sur la capture des particules ou la perte de charge.

Il semble donc possible de caractériser la capacité d'un média à traiter conjointement les particules d'alumine et le toluène à partir uniquement des résultats de mesures d'adsorption et de filtration effectuées séparément pour ces deux types de polluants.

Ainsi, les deux médias étudiés semblent globalement adaptés au traitement combiné de COV et de particules. Le feutre se révèle légèrement plus performant que le tissu du fait de sa plus faible perte de charge.

#### Références

- Bräunling, V. (2004) New filtration concepts for cabin air filters, *Proc. 4<sup>th</sup> International Conf. on Filtration in Transportation*, Stuttgart.
- Brown, R.C. (1993) *Air filtration – An integrated Approach to the Theory and Applications of Fibrous Filters*, Pergamon Press, Oxford.
- DIN 71460-2 norm (1994) Air filters for motor vehicle passenger compartments – Part 2: Test procedure for adsorptive filtration.
- Jones, A.P. (1999) Indoor air quality and health, *Atmos. Environ.* **33**, 4535.
- Le Cloirec, P. (1998) Le transfert gaz-solide : L'adsorption. In *Les composés organiques volatils dans l'environnement* (Edited by Le Cloirec P.), pp 435-489. Tec&Doc, Lavoisier, Paris.
- Rault, J.Y. (1991) *La filtration de l'air*, Les Editions Parisiennes – Chaud-Froid-Plomberie, Paris.
- Reinhardt, H. (1996) Experience – Driven cabin air filter development, *Proc. Filtration '96*, Baltimore.
- Squinazi, F. (2002) La pollution de l'air à l'intérieur des bâtiments (allergènes exclus), *Rev. Fr. Allergol. Immunol. Clin.* **42**, 248.

# CATFISH UNE INSTALLATION DEDIEE AU COLMATAGE DES FILTRES THE A PETITS PLIS SOUS HUMIDITE

S. ARTOUS\*(1), L. BOUILLOUX(1), O. NORVEZ(1)

(1) IRSN/DSU, Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex.  
sebastien.artous@irsn.fr

## TITLE

CATFISH a new facility to study mass loading of mini pleats HEPA filter under humidity

## ABSTRACT

This paper presents the dimensioning, the realization and the qualification of CATFISH test bench. The main objective of the CATFISH facility (analytical characterization of filtration under humidity) is to obtain experimental data about filtration behaviour in terms of mass loading and efficiency under several conditions of humidity.

The test bench produces airflow between 30 and 200 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup> for temperature between 8 °C and 100 °C. The humidity is including between 9 % at 8 °C to 76 % at 90 °C.

CATFISH has producing results since June 2005. The current data acquisition concerns HEPA filters for gloves box and experimental HEPA filters to study the influence of filtering medium pleats.

## RESUME

La communication proposée présente le dimensionnement, la réalisation et la qualification du banc d'essais CATFISH (Caractérisation AnalyTique de la Filtration Sous Humidité) dont l'objectif est d'acquérir des données expérimentales sur la filtration, en termes de colmatage et d'efficacité de filtration sous humidité.

Cette installation fournit un effluent contrôlé et constant au cours des essais en termes de débit, température et humidité. L'installation CATFSIH permet ainsi de véhiculer sur le filtre expérimental un débit d'air de 30 à 200 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup> pour des températures comprises entre 8 °C et 100 °C. La plage d'humidité s'étend quant à elle de 9 % à 8 °C jusqu'à 76 % à 90 °C, ce qui correspond à un rapport de mélange de 0,6 à 688 g d'eau.(kg d'air sec)<sup>-1</sup>.

Cette communication présente également les moyens mis en œuvre pour conserver les propriétés de l'effluent dans la boucle et ainsi aborder le colmatage de filtres plissés à petits plis de façon analytique.

La boucle CATFISH est opérationnelle depuis juin 2005. Elle a été utilisée pour le colmatage de filtres expérimentaux plissés à petits plis. Le programme d'étude engagé porte actuellement sur des filtres de boîtes à gants et des filtres à petits plis de faible surface de filtration.

## INTRODUCTION

La caractérisation du comportement des dispositifs de filtration des particules générées par une installation nucléaire en fonctionnement normal ou lors d'un accident grave représente un enjeu majeur de la sûreté des installations. Les deux grandeurs les plus importantes pour caractériser le comportement d'un filtre sont sa perte de charge et son efficacité de collecte des particules. Ces grandeurs sont fonction des caractéristiques du filtre, de l'aérosol et des conditions aérauliques.

A l'heure actuelle, en dehors des études appliquées à un scénario particulier, l'élaboration d'un modèle de colmatage global se heurte au manque de données analytiques concernant des phénomènes spécifiques comme l'humidité ou l'hygroscopie des aérosols, Artous (2003). En effet, bien que des études aient été entreprises pour caractériser l'effet de l'humidité sur le colmatage de médias filtrants plans ou de filtres plissés, les conclusions de ces recherches ne permettent pas d'établir un modèle applicable aux filtres THE à petits plis.

L'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire a, dans ce contexte, engagé la réalisation d'un banc d'essais destiné à caractériser de façon analytique la filtration sous humidité (Figure 1).

## PRESENTATION DE L'INSTALLATION

Le banc offre la possibilité, à l'échelle du laboratoire, de contrôler et de réguler l'effluent arrivant sur le filtre THE. Les paramètres maîtrisés sont le débit, la température et l'humidité :

- la plage de débit s'étend de 30 à 200 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup>,
- la plage de température est comprise entre 8 °C et 100 °C,
- la plage d'humidité varie de 9 % à 8 °C jusqu'à 76 % à 90 °C.

La conception du réseau de ventilation permet :

- le maintien des caractéristiques de l'effluent jusqu'à l'équipement,
- l'injection, le transport et la mesure d'aérosols.

Le système d'acquisition pilote le banc en assurant :

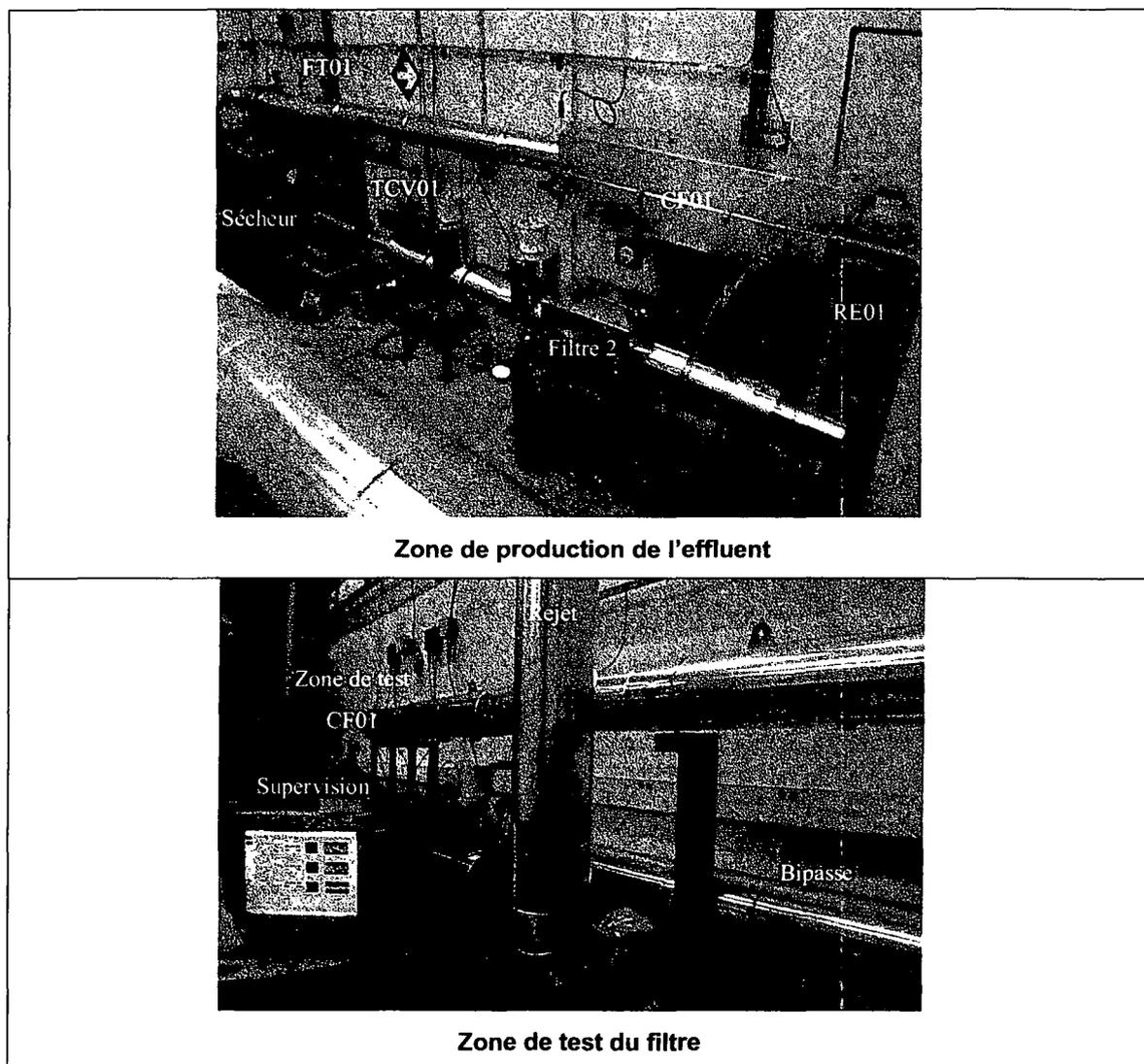
- la supervision,
- l'acquisition des variables,
- la commande des actionneurs,
- la régulation de la température et du débit de l'effluent,
- la gestion des alarmes,
- l'archivage des données.

L'utilisation de systèmes de production de particules permet :

- la mesure d'efficacité des filtres selon la norme NFX44011 ou NFEN 1822,
- le colmatage des filtres en utilisant différents types de générateurs d'aérosols.

A l'heure actuelle, les filtres testés sont :

- des filtres industriels de boîtes à gants,
- des filtres expérimentaux dimensionnés spécifiquement pour l'étude du colmatage (surfaces de filtration comprises entre 0,5 et 2 m<sup>2</sup>).



**Figure 1 : Photos de l'installation CATFISH**

La Figure 2 présente le schéma de principe et les différentes fonctions assurées par l'installation.

Tout d'abord, de l'air comprimé, préalablement filtré, arrive au niveau du sécheur frigorifique. Un régulateur abaisse alors la pression de 7 bar à 1,5 bar. L'air sortant, ramené à pression atmosphérique, a une température de 6 °C et une humidité relative de 12 %. En sortie de détendeur, l'air circule à travers une première vanne de régulation, TCV01, qui impose une pression relative nulle à l'entrée du réseau de ventilation.

Pour les points de fonctionnement au-delà de 60 °C, la turbine TU01 est placée entre TCV01 et le réchauffeur RE01 (position 1). Le fluide est alors aspiré et refoulé par TU01. Un té, placé en amont de TU01, autorise le fonctionnement sur une plage de débit supérieure à la zone de fonctionnement du sécheur d'air en actionnant la vanne de mise à l'atmosphère VM01. Un té placé en aval surmonté de la vanne de mise à l'atmosphère VM02 permet d'obtenir des débits inférieurs à 80 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup> correspondant au débit minimum de la turbine.

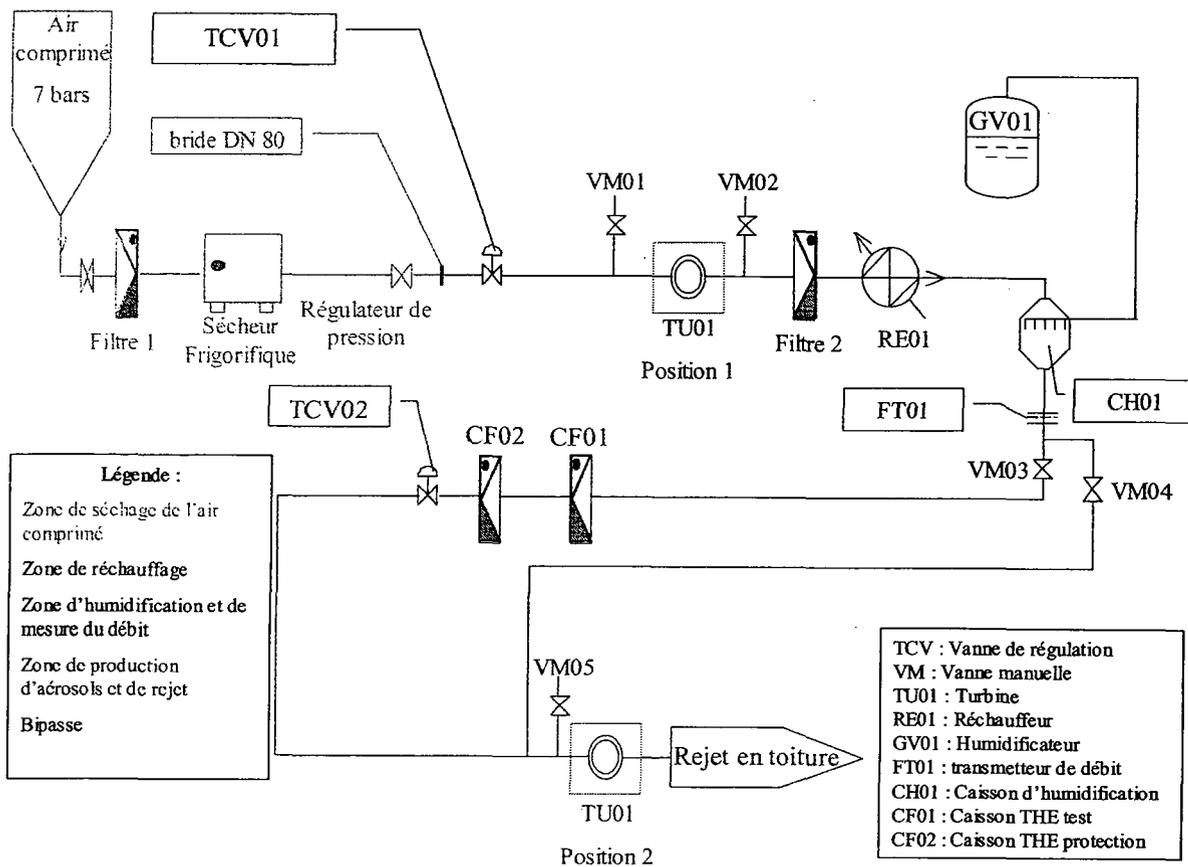
L'air est ensuite filtré (filtre 2) pour assurer un critère de propreté en nombre de particules compatible avec les exigences de la norme NF EN 1822.

L'air passe alors à travers le réchauffeur à résistance, RE01 d'une puissance de 6,5 kW, qui élève la température de l'air en sortie à un maximum de 150 °C pour un débit de 129 kg.h<sup>-1</sup>.

L'air est ensuite humidifié par la vapeur de l'humidificateur électrique GV01 à l'intérieur du caisson d'humidification CH01. Le réglage de la puissance de chauffe permet d'obtenir un rapport de mélange de 0,6 à 688 g d'eau.(kg d'air sec)<sup>-1</sup> à 100 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup>. Une première longueur droite stabilise l'écoulement pour la mesure du débit par l'intermédiaire du diaphragme FT01. L'air circule alors, soit par le bypass vers le rejet en toiture, soit sur l'équipement à tester.

Une seconde longueur droite permet la production d'aérosols dans des conditions de concentrations homogènes. L'air passe à travers le filtre de test, puis à travers un filtre de protection et une deuxième vanne de régulation, TCV02. Celle-ci compense, en s'ouvrant progressivement, l'augmentation de la perte de charge due au colmatage du filtre. Cette vanne de régulation garantit un débit de filtration constant sur le filtre testé.

Enfin, lorsque le banc fonctionne à des températures inférieures à 60 °C, l'air passe à travers TU01 (position 2) et est expulsé en toiture. En amont de TU01, un té avec la vanne manuelle VM05 permet d'obtenir des débits inférieurs à la plage de fonctionnement de la turbine.



**Figure 2 : Schéma de principe du banc**

Les solutions techniques retenues permettent de maîtriser les conditions aérodynamiques et thermodynamiques de l'installation afin de conserver les propriétés de l'effluent au niveau du filtre.

Le réseau du banc permet ainsi :

- de conserver un régime turbulent sur toute la plage de débit, entre 30 et 200 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup>, en utilisant un diamètre de tuyauterie de 80 mm,
- de garantir une longueur suffisante pour l'établissement de l'écoulement entre la production des aérosols et l'équipement à tester. En se basant sur la norme ISO 5167-2, la longueur d'établissement calculée correspond à 44 fois le diamètre de la tuyauterie, soit une longueur de 3,5 m.

La présence d'un calorifuge permet de maintenir la température de l'air entre 8 °C et 100 °C au niveau du filtre à 100 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup>.

La mise en place de 5 cordons chauffant régulés de 10 à 100 °C permet d'éviter tout phénomène de condensation au niveau des parois. La possibilité est offerte à l'opérateur de réguler indépendamment chaque cordon correspondant aux zones de mesure du débit, de production de l'aérosol, de la partie amont et aval du caisson de filtration, et de la zone de prélèvement en aval du caisson.

Le contrôle de l'hygrométrie s'obtient en maintenant constante la perte de charge globale de l'installation et en maîtrisant la température à l'intérieur de la boucle pour éviter la condensation de l'eau. La plage d'humidité relative s'étend alors de 9 % à 8 °C jusqu'à 76 % à 90 °C pour une variation maximale au cours du colmatage de 5 %.

## **INSTRUMENTATION**

L'instrumentation mise en place pour l'étude du comportement des filtres est constituée de capteurs ou transmetteurs de pression, température, humidité et de mesure du débit.

La perte de charge et la pression statique au niveau du filtre sont ainsi enregistrées respectivement jusqu'à 630 mm CE et 1000 mm CE.

Les sondes de température placées au niveau du filtre sont des PT100 de classe A dont la plage de variation est inférieure à 0,5 °C. La mesure de température précise et juste est essentielle pour obtenir une mesure d'humidité dans de bonnes conditions. En effet, l'humidité relative varie de façon exponentielle avec l'augmentation de la température, toute erreur de mesure entraîne alors une variation importante de la valeur d'humidité relative.

La mesure d'humidité s'effectue en fonction du paramètre recherché (température de rosée, humidité relative) et de la plage de fonctionnement du capteur. L'installation est ainsi équipée de capteurs capacitifs peu onéreux dont la plage de validité des mesures est comprise entre 20 à 80 % d'humidité relative pour des températures comprises entre 15 et 60 °C. Au-delà de cette plage, l'utilisation d'un hygromètre à condensation, qui détermine la température de rosée de l'effluent, est indispensable pour remonter à la valeur d'hygrométrie.

## **PILOTAGE DE L'INSTALLATION**

L'étude des solutions de contrôle-commande existantes a permis de sélectionner une chaîne de mesure indépendante des fournisseurs de transmetteurs et offrant la possibilité d'évoluer au cours de l'avancement des travaux de recherche.

Celle-ci est constituée de modules d'acquisitions et d'envoi de signaux analogiques de marque NATIONAL INSTRUMENTS associés au langage de programmation LABVIEW. Cette couche logicielle a permis de réaliser l'ensemble des fonctions de contrôle commande. Ainsi, trois applications ont été développées permettant la supervision de l'installation, l'enregistrement continu des fichiers et le post traitement des données.

## **ILLUSTRATION DES ESSAIS**

Une série de colmatages réalisée sur des filtres à petits plis de 2,1 m<sup>2</sup> de surface a permis d'évaluer la maîtrise des paramètres de l'installation au cours d'essais types.

Ainsi, pour le colmatage d'un filtre d'une durée de 5 heures au débit de 102 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup>, l'écart-type sur le débit reste inférieur à 1 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup>. La température de l'effluent maintenue à 27 °C présente un écart-type maximum de 0,4 °C. Quant à l'écart-type sur l'humidité relative à 59 %, il reste inférieur à 5 %.

Le colmatage des filtres a été réalisé par des particules solides de diamètre géométrique de 1 µm correspondant à un diamètre aérodynamique médian massique de 2,2 µm avec un écart-type géométrique de 2, particules produites par un générateur PALAS BEG1000 Del Fabbro (2002). Le générateur est associé à un système d'alimentation de poudre en continu afin de garantir la stabilité de la production d'aérosols au cours du processus.

Les courbes de colmatage réalisées sur l'installation CATFISH montrent une évolution comparable aux courbes de colmatage de filtres THE à petits plis, avec des particules solides microniques. Ainsi, compte tenu des masses déposées importantes, la phase de filtration en profondeur est peu marquée. Celle-ci est suivie d'une phase de filtration en surface où la perte de charge augmente linéairement avec la masse déposée. Enfin, un accroissement plus important de la perte de charge est observé. Ces premiers essais montrent que l'influence de l'hygrométrie sur le colmatage du filtre n'est significative que lorsque celle-ci est associée à une augmentation de la température de l'effluent. Cette augmentation de l'hygrométrie et de la température correspond alors à une augmentation du rapport de mélange.

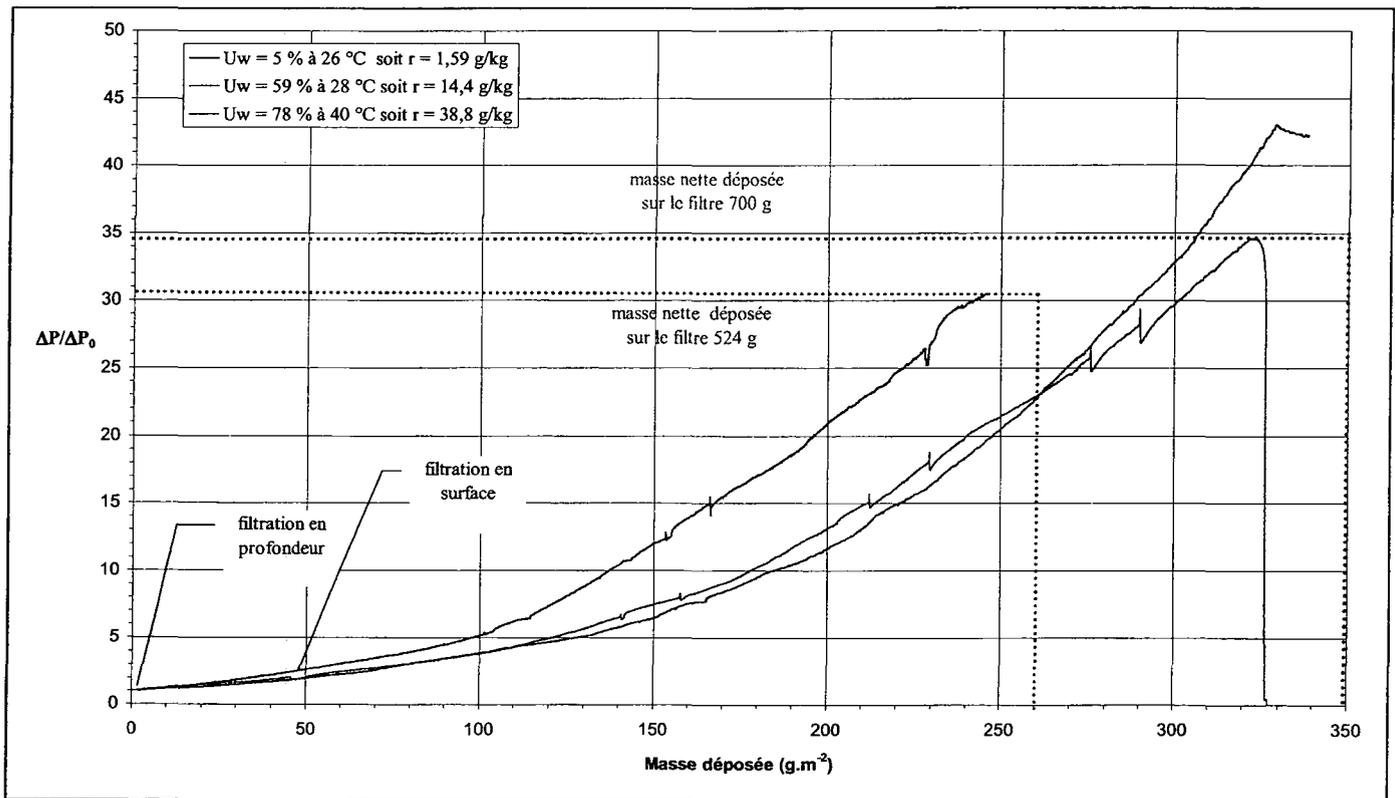


Figure 3 : Courbes de colmatage d'un filtre THE à petits plis

## PERSPECTIVES

Un programme d'études du colmatage de filtre de boîtes à gants et de filtres à petits plis de faible surface de filtration ( $0,6 \text{ m}^2$ ), à différents taux d'humidité, pour des aérosols microniques d'emeril est en cours de réalisation, avec pour objectif de déterminer si la quantité absolue d'eau présente dans l'effluent est un paramètre plus significatif sur le colmatage que l'humidité relative.

## REFERENCES

ARTOUS, S., (2003) Influence de l'humidité sur la filtration très haute efficacité dans le milieu nucléaire, Probatoire de chimie industrielle - génie des procédés, CNAM PARIS

DEL FABBRO, L., (2001) Modélisation des écoulements d'air et du colmatage des filtres plissés par des aérosols solides, Thèse de la faculté des sciences de Créteil UFR de sciences et de technologie université Paris XII – Val de Marne

# PARTICULES ULTRA-FINES (NANOPARTICULES) ET SANTE AU TRAVAIL.

Olivier Witschger

Laboratoire de Métrologie des Aérosols  
Département Métrologie des Polluants  
Institut National de Recherche et de Sécurité  
BP 27, 54501 Vandoeuvre, France  
courriel : olivier.witschger@inrs.fr

## TITLE

Ultrafine particles (nanoparticles) and occupational health

## ABSTRACT

Ultrafine particles (nanoparticles) are considered as potential occupational health risk factors and correspond to major prevention issues. Toxicological research has demonstrated that, for certain insoluble materials, the toxicity increases with decreasing size, on a mass to mass basis. It has also been indicated the potential for nanoparticles to penetrate from the lungs to other organs, and from the nasal region to the brain. There is a strong toxicity-based evidence that aerosol surface-area better predicts biological effects than traditional measures such as mass concentration. Although the precise mechanisms have yet to be elucidated, these findings already challenge conventional approach to estimate potential health risks. But with only limited toxicity data and negligible exposure data, it is currently unclear how exposure to ultrafine particles should be most appropriately monitored and regulated. Close enough to the beginnings of nanotechnology, it is the task of industry, researchers, decision makers, occupational health professionals and others to face the risks of nanotechnology proactively and with transparency to insure that some of the mistakes of the past are not repeated.

## RESUME

Les particules ultra-fines (nanoparticules) sont considérées comme des facteurs de risque potentiel pour la santé au travail et correspondent à de forts enjeux de prévention. La recherche en toxicologie a montré que pour certaines substances insolubles la toxicité augmente à mesure que la taille des particules diminue, pour une même dose en masse. Il a été également indiqué que les nanoparticules peuvent passer des poumons à d'autres organes, en particulier de la région nasale vers le cerveau. Il existe une évidence scientifique pour que la métrique « surface » soit un bien meilleur indicateur d'effet biologique que la métrique traditionnelle « masse ». Bien que les mécanismes demandent encore à être élucidés, ces résultats remettent déjà en cause l'approche conventionnelle utilisée en santé-travail pour l'évaluation des risques. Toutefois, du fait du nombre encore limité de données toxicologiques et quasi-nul de données d'exposition, rien ne peut être encore défini en termes d'évaluation et de réglementation concernant l'exposition aux particules ultra-fines. Témoin de l'avènement des nanotechnologies, il est du devoir des industriels, des chercheurs, des décideurs, des professionnels de la santé au travail et autres spécialistes d'affronter de façon proactive et dans la transparence les risques des nanotechnologies.

## INTRODUCTION

Jusqu' alors, la gamme de taille des particules présentes dans l'air des lieux de travail pris en considération dans la problématique santé au travail pour la voie d'exposition inhalatoire concernait principalement le domaine micronique (entre  $\approx 1 \mu\text{m}$  et  $\approx 100 \mu\text{m}$ ). De plus, l'exposition aux aérosols était caractérisée suivant la concentration en masse de matière particulaire en suspension dans l'air (métrique dite « masse »), associée à des fractions de tailles des particules qui correspondent à différentes régions de dépôt dans l'arbre respiratoire. Il en résulte un ensemble de dispositions de surveillance et de prévention professionnelle relatives au risque dit « chimique » basé sur une approche en masse de l'exposition des personnes, excepté pour les fibres (INRS, 2005a). Par ailleurs, les dispositifs et les méthodes de prélèvement d'aérosols traditionnellement employés en hygiène du travail sont également fondés sur cette même approche de la mesure de la concentration et de la distribution granulométrique (Vincent, 1995). Enfin, le constat est identique pour la santé publique, que ce soit au niveau des dispositions relatives à l'exposition aux particules présentes dans l'air ambiant ou bien de la métrologie (Watson et Chow, 2001).

Une problématique récente est apparue concernant les effets sur la santé consécutifs à une exposition aux *particules ultra-fines*, dont la taille limite supérieure couramment admise est de l'ordre de 100 nm. Bien que cette définition ne repose encore sur aucune justification d'ordre physiologique ou toxicologique, ce terme est maintenant largement employé pour nommer les aérosols « indésirables » dont les effets sur la santé semblent être liés à, entre autre, la taille nettement submicronique des particules. Les fumées de soudage ou les fumées métallurgiques et les émissions des moteurs en sont des exemples.

Avec l'essor considérable ces dernières années et celui prévu des nanotechnologies lié aux formidable potentiel scientifique et industriel, notamment des nanomatériaux, se pose également la question de l'impact potentiel sur la santé des *nouvelles particules ultra-fines* (ou *nanoparticules*) ou autres particules nanostructurées (The Royal Society & The Royal Academy of Engineering, 2004).

Si le développement de la connaissance par le biais d'études et recherches coordonnées est actuellement la priorité sur la question des risques potentiels pour la santé, il est aussi important d'en diffuser l'état actuel (Hervé-Bazin, 2004). C'est dans ce contexte que se positionne le présent article. Compte tenu de la complexité du sujet et de son caractère multidisciplinaire et afin de rapporter ici l'essentiel, le lecteur est invité à ce reporter aux références pour les précisions comme pour les textes plus complets (Witschger et Fabriès, 2005a et 2005b).

## DEPOT DANS LES VOIES RESPIRATOIRES

Les voies respiratoires constituant la principale voie d'entrée des particules dans l'organisme humain, il est intéressant de connaître le site de dépôt pour les particules ultra-fines. La Figure 1 montre le dépôt total et les dépôts régionaux en fonction du diamètre des particules - entre 1 nm et 100  $\mu\text{m}$  - calculé suivant le modèle de la CIPR (1994). Ces courbes correspondent à un sujet de « référence » respirant majoritairement par la bouche ou le nez et passant 1/3 de son temps assis et 2/3 de son temps dans une activité « légère » (travail « standard » suivant la CIPR).

En deçà du minimum de déposition connu qui se situe autour de 300 nm, le dépôt croît de manière significative car la diffusion devient prédominante. Les particules ultra-fines supérieures à 10 nm se déposent majoritairement dans la région alvéolaire, tandis que celles qui sont inférieures à 10 nm se déposent principalement dans la région extra-thoracique et, dans une moindre mesure, dans la région trachéo-bronchique du fait de leur très forte diffusivité. Il est intéressant de noter que, sur la gamme granulométrique comprise entre environ 10 nm et 200 nm, le mode de respiration a peu d'effet sur le dépôt total ainsi que sur les dépôts régionaux.

La Figure 1 indique également que la distribution du dépôt des particules ultra-fines est plus uniforme dans l'ensemble des voies respiratoires que pour les particules microniques. Ce dépôt plus diffus contribue directement à créer plus de sites d'interaction et donc une plus grande capacité pour les particules ultra-fines à être absorbées et à transporter des substances éventuellement toxiques (Zhang et coll., 2005). Une attention particulière a été portée à la région nasale pour les particules autour de 20 nm car c'est dans celle-ci que la concentration déposée surfacique est souvent la plus importante (Oberdörster et coll., 2005).

Un autre élément important que l'on peut déduire de cette Figure 1 est qu'il est nécessaire, dans le cadre de l'évaluation de l'exposition aux aérosols ultra-fins, d'intégrer un critère de dépôt et non de pénétration dans un compartiment respiratoire, comme c'est le cas pour les trois fractions conventionnelles (inhalable, thoracique et alvéolaire).

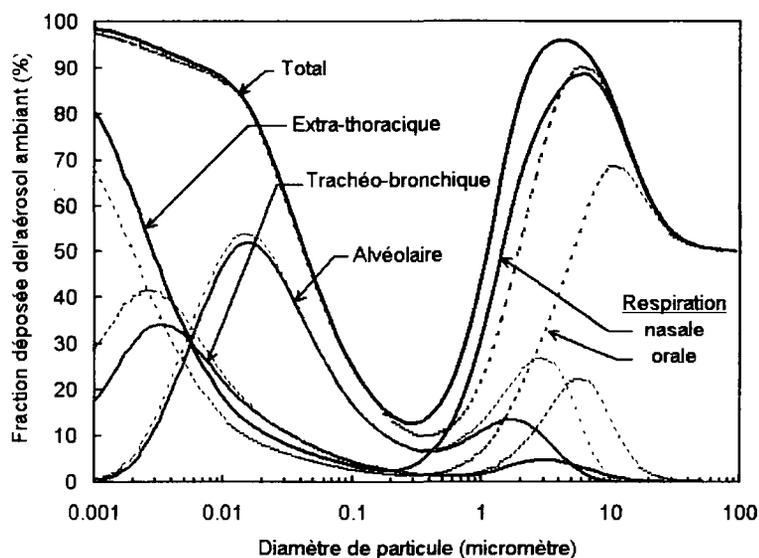


Figure 1 : Prédiction du dépôt total et régional des particules dans les voies respiratoires chez l'Homme. Le dépôt inclut la probabilité d'inhalation. Le sujet est considéré comme respirant majoritairement par la bouche (pointillés) ou le nez (ligne continue) et effectuant un travail « standard » (CIPR, 1994). Les calculs ont été effectués à l'aide du logiciel LUDEP (2000).

## EPURATION ET TRANSPORT DANS L'ORGANISME

Une fois déposées dans les poumons les particules ultra-fines peuvent y séjourner plus longtemps que les particules plus grosses du fait de la diminution de leur épuración. Des études conduites *in vitro* ont montré que la présence de particules ultra-fines en grand nombre avait un effet délétère sur la phagocytose par les macrophages alvéolaires. Cette diminution de la phagocytose pourrait être liée à l'activité oxydante plus forte des particules ultra-fines du fait de leur très grande surface développée (Donaldson et coll., 2000). Par ailleurs, il a été observé pour certaines nanoparticules (TiO<sub>2</sub>, noir de carbone) qu'elles pouvaient pénétrer plus rapidement les espaces interstitiels, voire même entrer dans la circulation sanguine et finalement exercer des effets systémiques (Nemmar et coll., 2004). Enfin, le dépôt des particules ultra-fines s'effectuant pour une part importante dans le compartiment extra-thoracique et notamment dans la région rhino-pharyngée en respiration nasale (cf. Figure 1), des études ont été menées sur la translocation possible vers l'encéphale. Les résultats préliminaires d'une étude conduite sur le rat en exposition corps entier indiquent qu'environ 20 % des particules ultra-fines solides déposées sur la muqueuse olfactive peuvent migrer dans le bulbe olfactif (Oberdörster et coll., 2004). Ce mode de répartition des particules ultra-fines semble être peu connu jusqu'alors et sa transposition à l'Homme demande maintenant à être établie.

## EFFETS POTENTIELS SUR LA SANTE

De nombreux éléments montrent que les particules ultra-fines conduisent à des effets spécifiques sur la santé. Ces effets ont été étudiés par le biais de recherches épidémiologiques et toxicologiques. Les études épidémiologiques sur le thème des particules sont nombreuses mais elles ne se rapportent encore exclusivement qu'à la pollution particulaire atmosphérique urbaine ou péri-urbaine, pour laquelle le spectre granulométrique des particules en suspension est très large. Le rôle des particules ultra-fines dans les effets observés n'y est abordé que depuis quelques années. Toutes les études épidémiologiques ne sont pas concluantes quant aux effets sur la santé des particules ultra-fines et la recherche est nécessaire. L'utilisation de données d'exposition agrégées et non individuelles explique en grande partie la difficulté pour conclure de façon certaine. Il est donc attendu qu'avec l'amélioration des techniques de mesures et leur adéquation à des mesures d'exposition, des effets plus nets pourraient être observés (Ibald Mulli et coll., 2002). Par exemple, dans une étude de panels conduite récemment (Moshhammer et Neuberger, 2003), il a été montré que la concentration atmosphérique en « surface » des particules (mesurée à l'aide d'une technique de diffusion de charges) était un bon indicateur de l'apparition de symptômes respiratoires au sein d'une population de jeunes enfants scolarisés. Ce résultat vient corroborer les résultats récents (Maynard et Maynard, 2002) concernant l'analyse des séries de données historiques reliant un excès de risque de mortalité

à une exposition à la pollution atmosphérique particulaire dans la région de Londres. Cette étude montre qu'il existe une relation linéaire entre le taux de mortalité et la concentration en particules lorsque celle-ci est exprimée suivant une métrique « surface », la relation n'étant pas linéaire pour la métrique « masse ».

Le profil toxicologique des particules ultra-fines actuel résulte d'études expérimentales in vivo chez l'animal et in vitro conduites durant cette dernière décennie. C'est dans ce contexte qu'a été récemment proposée, au niveau international, une nouvelle branche de la toxicologie : la Nanotoxicologie (Donaldson et coll., 2004, Oberdörster et coll., 2005).

Parmi les nombreuses hypothèses actuelles sur les particules ultra-fines, on peut retenir que (Kreyling et coll., 2004) :

- leur surface, leur composition et leur structure sont des caractéristiques qui jouent un rôle important dans les interactions avec les différentes cellules cibles, fluides et tissus de l'organisme ;
- elles sont à l'origine de la formation d'espèces radicalaires qui ont un rôle essentiel dans le processus d'inflammation ;
- elles ont une activité oxydante plus forte et sont la cause d'effets inflammatoires plus importants que les particules de plus grande taille ;
- elles sont probablement impliquées dans des dommages de l'ADN cellulaire ;
- elles affectent les fonctions cardiaques, l'homéostasie vasculaire et l'immunité.

Dans une étude expérimentale très complète, Faux et coll. (2003) ont mis en évidence l'existence d'un seuil au-delà duquel l'effet inflammatoire augmente de manière significative. Ce seuil, dans les relations dose-réponse, correspond à un niveau du rapport de la surface des particules déposées par unité de surface développée des cellules épithéliales situé autour de la valeur de 1 et semble ne pas dépendre du type de particules testées. Les auteurs constatent que :

- la métrique « surface » est importante et ils recommandent que cette hypothèse soit testée sur un éventail large de type de particules ultra-fines pour être pleinement justifiée ;
- la relation directe observée entre dose in vivo et dose in vitro est potentiellement un outil d'évaluation du risque toxique intéressant. Elle devrait être affirmée par des études in vitro supplémentaires en utilisant les résultats des études in vivo publiées.

Finalement il convient de souligner un point très important : les différents résultats épidémiologiques et toxicologiques remettent en cause le paradigme de la masse dans le domaine de l'évaluation des risques professionnels. Ils suggèrent de façon de plus en plus évidente que la métrique « surface » et dans une moindre mesure la métrique « nombre » devraient constituer de bien meilleurs indicateurs d'exposition que la métrique « masse ». Au-delà de la métrique, d'autres paramètres semblent également essentiels comme la taille des particules, leur morphologie, leur structure, leur activité de surface...

## REFLEXION SUR UNE DEFINITION LIEE A LA SANTE POUR LES PARTICULES ULTRA-FINES

Dans le cadre de l'impact sur la santé de l'Homme, la limite de 100 nm est arbitraire et ne doit pas apparaître comme une frontière entre ce qui serait dès lors moins nuisible (au-delà de 100 nm) et ce qui le serait davantage (en deçà de 100 nm). D'autant plus que dans certains environnements de travail, des agglomérats ou agrégats de particules ultra-fines solides se forment pour atteindre des dimensions de plus de 100 nm.

Tout comme les définitions des trois fractions conventionnelles (inhalable, thoracique et alvéolaire) pour l'aérosol ambiant dans les atmosphères de travail, celle du terme « particule ultra-fine » (nanoparticule) ou « aérosol ultra-fin » (nanoaérosol) devrait être, dans une certaine mesure, liée à la santé. Mais actuellement le niveau de connaissance est encore insuffisant pour qu'un consensus puisse être adopté dans le cadre d'une future norme. Trois questions essentielles se posent :

- *Quel est le diamètre le plus approprié pour désigner les particules et leurs interactions avec les voies respiratoires ?* Le diamètre n'est pas une mesure absolue des caractéristiques de la particule mais il dépend de la méthode de mesure. La pénétration et le dépôt au sein des voies respiratoires sont traditionnellement décrits par le diamètre aérodynamique qui décrit bien le comportement aérodynamique dans l'air. Mais en deçà d'environ 300 nm, le comportement des particules est régi par la diffusion.
- *Quelle limite adopter pour la taille ?* La limite de 100 nm n'est pas liée au comportement des particules dans les voies respiratoires. Or, il est concevable d'adopter une définition qui puisse être basée sur la probabilité de dépôt dans les voies respiratoires. La taille limite supérieure pourrait alors correspondre au minimum de dépôt (environ 200 à 300 nm).

- *Quelle signification donner aux agglomérats/agrégats de particules ultra-fines ?* C'est une question importante puisque l'on ne sait pas à l'heure actuelle si, à volume égal de matériau, l'impact biologique de particules ultra-fines individuelles est équivalent ou non à celui d'un agglomérat/agrégat de particules ultra-fines.

En résumé et tant que ces trois questions ne seront pas résolues, il serait prudent de retenir les définitions suivantes :

- Particule ultra-fine ou nanoparticule : particule avec un diamètre nominal (géométrique, aérodynamique, de mobilité, d'aire projetée ou autre) inférieur ou égal à 100 nm.
- Aérosol ultra-fin ou nanoaérosol : aérosol composé de façon prédominante de particules ultra-fines (nanoparticules) sous forme individuelle ou groupée en agglomérats ou agrégats.

Le terme « nano » étant plutôt réservé au contexte des nanotechnologies. Enfin, il est important de souligner que ces définitions ne proviennent pas de normes et qu'il est probable qu'elles évoluent en fonction de la connaissance à venir dans ce domaine.

## PARTICULES ULTRA-FINES (NANOPARTICULES) EN MILIEU DE TRAVAIL

Dans l'environnement, les sources d'émission sont connues et relativement bien documentées : rejets industriels ou bien encore pollution automobile urbaine. Dans le milieu du travail, l'information est nettement plus éparse. Les particules ultra-fines peuvent être émises dans l'atmosphère par différentes sources qui dépendent du type d'activité et du procédé mis en jeu. Dans les technologies conventionnelles, ce sont principalement les procédés « chauds » (soudage, métallisation, laser, dégradation thermique etc.) et les émissions des moteurs qui conduisent à la formation et à la dispersion d'aérosols ultra-fins, même si l'on ne peut pas exclure ceux émis par le biais d'une action mécanique. Mais c'est surtout vers les nanotechnologies que la question des risques pour la santé au travail se pose, en particulier avec l'essor considérable des nanomatériaux (Hood, 2004). Ces nouveaux matériaux mettent à profit leurs exceptionnelles propriétés (mécaniques, optiques, thermiques, chimiques...) associées aux structures à l'échelle nanométrique. Beaucoup de nanomatériaux sont en phase de développement mais d'autres sont déjà produits et utilisés dans divers secteurs industriels comme la chimie, la pharmacie, la métallurgie, le bâtiment, la cosmétique, l'automobile (Dupuy et Roure, 2004) ... Une conséquence de ce développement est que le nombre d'employés potentiellement exposés aux particules ultra-fines (nanoparticules) peut s'accroître de façon très importante dans un avenir proche par rapport au nombre d'employés exposés aux particules ultra-fines émises par les technologies conventionnelles (Aitken et coll., 2004).

A ce jour il n'y a aucune étude publiée qui ait évalué l'exposition potentielle aux nanoaérosols émis dans une atmosphère de travail où seraient fabriquées, mises en forme ou manipulées de nouvelles nanoparticules ou autres particules nanostructurées. La seule étude scientifique qui a été publiée dans le domaine des nanomatériaux concerne les nanotubes de carbone (Maynard et coll., 2004), mais elle reste très succincte. Or ce n'est que lorsque nous aurons plus de connaissance sur les caractéristiques des nanoaérosols et que nous pourrons les coupler à celles sur les effets potentiels (toxicologie, épidémiologie) que la vraie nature du risque lié à certains des nano-objets pourra être précisée et ainsi mettre en place des moyens de prévention tout à fait adaptés (INRS, 2005b).

## CONCLUSION

Finalement, ce que les différents résultats épidémiologiques et toxicologiques remettent en cause c'est le « modèle » de la masse dans le domaine de l'évaluation des risques. Toutefois, devant le nombre encore limité de données de toxicité et quasi-inexistant de données d'expositions, rien n'est encore clair sur la façon la plus appropriée d'évaluer et de réglementer l'exposition aux aérosols ultra-fins (ou nanoaérosols). Il y a une forte présomption sur le fait que la métrique d'exposition pour les particules ultra-fines à faible solubilité soit la surface. Cette métrique a également l'avantage d'extraire dans une certaine mesure la dépendance vis-à-vis de la taille. Néanmoins, il existe d'autres études qui indiquent que le nombre de particules sur certaines tranches granulométriques est important.

Plus qu'un progrès technologique circonscrit, c'est un nouvel âge qui est en train de naître avec la maîtrise « nanotechnologique » et les domaines d'applications seront multiples. Mais il y a des incertitudes concernant les effets sur la santé provenant des mêmes propriétés que le monde de la recherche et de l'industrie s'efforcent d'exploiter. Donc au terme de cet article, la principale conclusion que l'on puisse tirer avec certitude des études liées aux risques professionnels potentiels associés aux nanotechnologies est qu'il reste du chemin à parcourir. Il semble que les nanomatériaux nécessitent de ré-évaluer en particulier les approches traditionnelles de prévention et de protection de la santé des salariés. Il est du devoir de tous (chercheurs et ingénieurs, responsables industriels,

médecins du travail, hygiénistes etc.) de travailler efficacement ensemble, de façon pluridisciplinaire, proactive et dans la plus grande transparence. Afin de ne pas réitérer certaines erreurs du passé, profitons de la jeunesse des nanotechnologies pour agir (INRS, 2005c, Maynard, 2004).

## REFERENCES

- AITKEN R.J., CREELY K.S., TRAN C.L. – Nanoparticles: An occupational hygiene review. Research Report, HSE Books, 2004, Edinburgh, UK, 102 p.
- CIPR - Commission Internationale pour la Protection Radiobiologique. Publication 66 : Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection. Oxford, Pergamon, 1994, 24, N° 1-3, 482 p.
- DONALDSON, K., STONE, V., GILMOUR P.S., BROWN D.M., MACNEE W. – Ultrafine particles: mechanisms of lung injury. Phil. Trans. R. Soc. London. A, 2000, 358, pp. 2741-2749.
- DONALDSON, K., STONE, V., TRAN, C.L., KREYLING W., BORN, P.J.A. – Nanotoxicology. Occup Environ Med, 2004, 61, pp. 727-728.
- DUPUY J.-P., ROURE F. – Les nanotechnologies. Ethiques et prospectives industrielles. Tome 1. 2004, 66 p.
- FAUX S.P., TRAN C.L., MILLER B.G., JONES A.D., MONTEILLER C., DONALDSON K. – In vitro determinants of particulate toxicity: the dose-metric of poorly soluble dust. Research report 154, HSE Books, 2003, Suffolk, UK, 52 p.
- HERVE-BAZIN H. - De la nécessité de faire le point sur les dangers des particules ultra-fines. Hygiène et Sécurité au Travail, 2004, 197, pp. 53-60. *Disponible sur [www.hst.fr](http://www.hst.fr)*
- HOOD E. – Nanotechnology: Looking as we leap. Environ Health Perspec, 2004, 112, pp. A741-A749.
- IBALD-MULLI A., WICHMANN H.E., KREYLING W., PETERS, A. - Epidemiological evidence on health effects of ultrafine particles. J. Aerosol Medicine., 2002, 15, pp.189-201.
- INRS – Valeurs limites d'exposition professionnelle aux agents chimiques en France. Cahiers de Notes Documentaires. 2e édition. ND 2098, 2005a. *Disponible sur [www.inrs.fr](http://www.inrs.fr)*
- INRS – Particules ultra-fines. Le nanodéveloppement sous surveillance. Travail et Sécurité, juin, 2005b, n°652. *Disponible sur [www.travail-et-securite.fr](http://www.travail-et-securite.fr)*
- INRS – Nanomonde : la nouvelle frontière de la prévention. Réalité et Prévention n°9, octobre, 2005c. *Disponible sur [www.inrs.fr](http://www.inrs.fr)*
- KREYLING W.G., SEMMLER M., MÖLLER W. – Dosimetry and toxicology of ultrafine particles. J. Aerosol Medicine., 2004, 17, pp. 140-152.
- LUDEP - Program for implementing the ICRP 66 Respiratory Tract Model, version 2.07, June 2000, Chilton, Didcot, OXON, NRPB, UK.
- MAYNARD A.D. – Nanotechnology – a new occupational health challenge for new generation? CIST Newsletter, 2004, volume 2, No. 3, pp 4-6.
- MAYNARD A.D., BARON P.A., FOLEY M., SHVEDOVA A.A., KISIN E.R., CASTRANOVA V. – exposure to carbon nanotube material: aerosol release during the handling of unrefined single-walled carbon nanotube material. Journal of Toxicology and Environmental Health, Part A, 2004, 67, pp. 87-107.
- MAYNARD A.D., MAYNARD R.L. – A derived association between ambient aerosol surface area and excess mortality using historic time series data. Atmospheric Environment, 2002, 36, pp. 5561-5567.
- MOSHAMMER H., NEUBERGER M. - The active surface of suspended particles as a predictor of lung function and pulmonary symptoms in Austrian school children. Atmospheric Environment, 2003, 37, pp. 1737-1744.
- NEMMAR A., HOYLAERTS M.F., HOET P.H.M., NEMERY B. – possible mechanisms of the cardiovascular effects of inhaled particles : systemic translocation and prothrombic effects. Toxicology Letters, 2004, 149, pp. 243-253.
- NIOSH Safety and Health Topic: Nanotechnology. 2005. [www.cdc.gov/niosh/topics/nanotech/](http://www.cdc.gov/niosh/topics/nanotech/)
- OBERDÖRSTER G., SHARP Z., ATUDOREI V., ELDER A., GELEIN R., KREYLING W., COX C. – Translocation of inhaled ultrafine particles to the brain. Inhalation Toxicology, 2004, 16, pp. 437-445.
- OBERDÖRSTER G., OBEDÖRSTER E., OBEDÖRSTER J. - Nanotoxicology: An Emerging Discipline Evolving from Studies of Ultrafine Particles. Environ. Health. Perspec., 2005, 113, 7, pp. 823-839.
- THE ROYAL SOCIETY & THE ROYAL ACADEMY OF ENGINEERING – Nanoscience and nanotechnologies. Opportunities and uncertainties. The Royal Society, 2004, 115 p.
- VINCENT J.H. – Aerosol science for Industrial Hygienists. New York, Pergamon, 1995, 411 p.
- WATSON J.G., CHOW J.C. – Ambient Air Sampling. In : BARON P.A., WILLEKE, K. (éd.) – Aerosol Measurement, Principles, Techniques and Applications. 2e éd. New York, Wiley Interscience, 2001, pp. 821-844.
- WITSCHGER O., FABRIES J.-F. – Particules ultra-fines et santé au travail. 1 – Caractéristiques et effets potentiels sur la santé. Hygiène et Sécurité au Travail, 2005a, 199, pp. 21-35. *Disponible sur [www.hst.fr](http://www.hst.fr)*
- WITSCHGER O., FABRIES J.-F. – Particules ultra-fines et santé au travail. 2 – Sources et caractérisation de l'exposition. Hygiène et Sécurité au Travail, 2005b, 199, pp. 37-54. *Disponible sur [www.hst.fr](http://www.hst.fr)*
- ZHANG Z., KLEINSTREUER C., DONOHUE J.F., KIM C.S. – Comparison of micro- and nano-size particle depositions in a human upper airway model. J Aerosol Sci, 2005, 36, pp. 211-233.

# CARACTERISATION DE L'EXPOSITION AUX AEROSOLS FONGIQUES DANS LES ENVIRONNEMENTS INTERIEURS : MESURE DE L'ERGOSTEROL ET DES MYCOTOXINES AEROPORTEES

S. Moularat\*, E. Robine, M. Boissier et I. Lacaze.

Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs,  
Centre Scientifique et Technique du Bâtiment,  
84 avenue Jean Jaurès, 77447 Champs sur marne.  
[stephane.moularat@cstb.fr](mailto:stephane.moularat@cstb.fr)

## TITLE

CHARACTERIZATION OF THE EXPOSURE TO THE AIRBORNE FUNGAL IN THE INDOOR ENVIRONMENTS: MEASUREMENT OF ERGOSTEROL AND AIRBORNE MYCOTOXINS.

## ABSTRACT

The aim of this study was to develop a methodology to measure both in the indoor environment three mycotoxins: sterigmatocystin, deoxynivalenol and ochratoxin A and a specific component of the fungal cell membranes (ergosterol). These toxins were measured using liquid chromatography (HPLC), the quantification limit is in respective concentration of 30 µg/L (n=30,  $\sigma/m=3,9\%$ ), 20 µg/L (n=10,  $\sigma/m=5,5\%$ ) and 20 µg/L (n=10,  $\sigma/m=7,6\%$ ). Associated with a rotating foam air sampler, the indoor mycotoxin concentrations were measured successfully with a detection limit of 60 pg/m<sup>3</sup>.

## RESUME

Le but de ce travail est de proposer une nouvelle approche méthodologique pour estimer l'exposition des individus aux aérosols de moisissures. Nous avons développé une méthodologie permettant de mesurer conjointement la biomasse fongique (l'ergostérol) et trois mycotoxines majeures des environnements intérieurs (la stérigmatocystine, la déoxynivalénol et l'ochratoxine A) aéroportées. La méthode de dosage développée permet d'identifier et de quantifier trois mycotoxines à des concentrations respectives de 30 µg/L (n=30,  $\sigma/m=3,9\%$ ), 20 µg/L (n=10,  $\sigma/m=5,5\%$ ) et 20 µg/L (n=10,  $\sigma/m=7,6\%$ ). En utilisant cette technique d'analyse et un appareil de collecte à coupelle rotative validé par ailleurs, la mesure des concentrations des trois mycotoxines aéroportées est rendue possible avec une limite de quantification théorique de 60 pg/m<sup>3</sup> d'air.

## INTRODUCTION

L'apparition de maladies chez les occupants d'environnements « moisissus » a été très largement décrite dans la littérature. L'inhalation de spores, fragments de mycélium, particules de matériaux ou poussières contaminées peut entraîner l'apparition de nombreux effets sur la santé : infections, allergies, toxi-infections (Hinkley et Jarvis, 2001). Cependant, il existe peu de données concernant l'exposition aux moisissures en milieu intérieur, notamment en raison des difficultés inhérentes à la métrologie de ces biocontaminants. Concernant la dose d'exposition, il n'existe pas à l'heure actuelle d'éléments fiables permettant d'établir un seuil au-dessous duquel il n'y a pas d'effet sur la santé ni de liste de références permettant de juger du niveau de risque selon les espèces de moisissures rencontrées.

Les méthodes les plus couramment employées pour réaliser l'analyse microbiologique de l'air et évaluer le niveau d'exposition des personnes sont principalement basées sur la culture des microorganismes. Ces techniques peuvent s'avérer inadéquates à l'évaluation de l'exposition des personnes en sous-estimant, d'une part, la concentration des microorganismes dans la mesure où seuls ceux capables de se développer sur les milieux utilisés peuvent être comptabilisés (Eduard, 1997 ; Russell *et al.*, 1999), et d'autre part, en ne permettant d'apprécier qu'un instantané du niveau de contamination.

Une méthode alternative consiste à doser un constituant spécifique de la membrane cellulaire des moisissures : l'ergostérol (Miller et Young, 1997 ; Robine *et al.*, 2005). Comparé aux méthodes traditionnelles, la mesure intégrée de l'ergostérol permet d'évaluer près d'une semaine d'exposition cumulée. De plus, cette technique mesure la fraction des spores non cultivables mais susceptible d'entraîner des manifestations immuno-allergiques. En revanche, la mesure de l'ergostérol ne permet pas d'évaluer la toxicité de ces aérosols liée à la présence de métabolites secondaires produits par la moisissure : les mycotoxines.

Dans ce contexte, l'objet de cette recherche a porté sur la caractérisation de l'exposition aux aérosols fongiques dans les environnements intérieurs par la mesure simultanée de l'ergostérol et des mycotoxines aéroportées.

La méthode de dosage de l'ergostérol décrite par Robine *et al.* en 2005 sera adaptée afin de permettre de doser conjointement cette molécule et les mycotoxines dans l'air. Afin de valider ce dosage, un banc expérimental sera mis au point pour générer des aérosols de mycotoxines.

## MATERIELS ET METHODES.

### Matériel biologique

Une moisissure toxigène (IHEM : *Aspergillus versicolor* 18884) cultivée à 25°C sur S10 (Bouillon de Sabouraud glucosé à 2% dilué, *Merck*) et PDA (Agar glucosé à la pomme de terre, *Merck*) a été utilisée.

La production de mycotoxine a été obtenue à partir de trois supports de croissance : fibre de verre compressée (filtre en fibre de verre GF/B, *Whatman*) et deux types de papier peint du commerce (papier peint (4 murs) et papier peint vinyl (réf. 60 665 143, *Leroy Merlin*)).

### Méthode d'analyse des mycotoxines

Trois standards : stérigmatocystine pur à 99,0 % (S3255, *Sigma*), déoxynivalénol pur à 99,0 % (D0156, *Sigma*) et ochratoxine A pur à 99,5% (O1877, *Sigma*) ont été utilisés.

Les mycotoxines sont analysées par chromatographie en phase liquide. La chaîne analytique employée est une HPLC WATERS munie d'une colonne LICHROSPHER RP18 de 100 Å (*Merck*). La détection est assurée par un détecteur UV (Waters 996 Photodiode Array Detector).

La phase mobile est composée d'un mélange méthanol:eau (85:15, v/v) (méthanol rectapur, Fisher) en mode isocratique.

### Production d'aérosols de mycotoxines

En relation avec de précédents travaux sur les aérosols fongiques (M. Boissier 2003). Un montage d'aérosolisation a été mis au point, dans le but de générer expérimentalement un aérosol de mycotoxines à partir de matériaux contaminés. Ce dispositif est composé d'une chaîne de production de l'aérosol comportant un générateur d'aérosols fongiques et d'un dispositif de mesure de l'aérosol disposé en aval de la chaîne de production (Figure 1). Ce banc fonctionne en dynamique avec des débits équilibrés. Il est placé sous un poste de sécurité microbiologique.

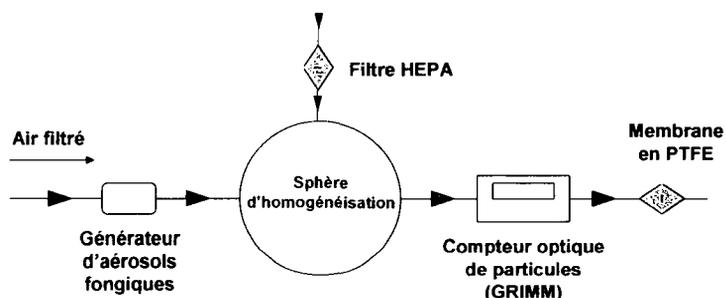


Figure 1: Schéma du montage d'aérosolisation

L'aérosol fongique est produit par le soufflage d'un air filtré et sec à un débit de 5 L/min sur une culture fongique (cultivée pendant 10 jours à 25°C sur différents supports). Il est ensuite acheminé vers une sphère d'homogénéisation. Sa concentration et sa granulométrie sont mesurées à l'aide d'un compteur optique de particules (GRIMM G1.108) dont le débit d'aspiration est égal à 1,2 L/min. L'air échantillonné traverse ensuite une membrane filtrante en PTFE (porosité 1,2 µm) où les particules sont collectées. Le traitement et l'analyse de ce filtre permettent de relier la quantité de mycotoxines dosées à la quantité d'aérosols mesurés.

## RESULTATS ET DISCUSSION

### Limite de quantification de la technique analytique

Nous avons vérifié la linéarité de la réponse de l'HPLC à des concentrations croissantes de stérigmatocystine comprises entre 0 et 500 µg/L ( $r^2$  0,99). En utilisant des concentrations décroissantes, nous avons évalué la limite de détection à 8,5 µg/L (soit une quantité de 1,7 ng de stérigmatocystine). La limite de quantification (LQ) a été évaluée à  $30 \pm 3$  µg/L (soit 60 pg/m<sup>3</sup> d'air avec un prélèvement de 100 m<sup>3</sup>) (n=30, coefficient de variation de 4%).

Cette même méthode a été appliquée à des standards de déoxynivalénol et d'ochratoxine A. Ce dosage s'est avéré applicable pour ces deux autres toxines. La sensibilité de la technique reste du même ordre de grandeur avec une limite de quantification de 20 µg/L pour ces 2 mycotoxines. Les coefficients de variation correspondant sont respectivement de 5,5% et 7,6%.

### Production contrôlée d'aérosols issus de matériaux moisiss

L'influence du support de croissance sur les aérosols produits a été évaluée. Les différents profils granulométriques sont présentés sur la Figure 2.

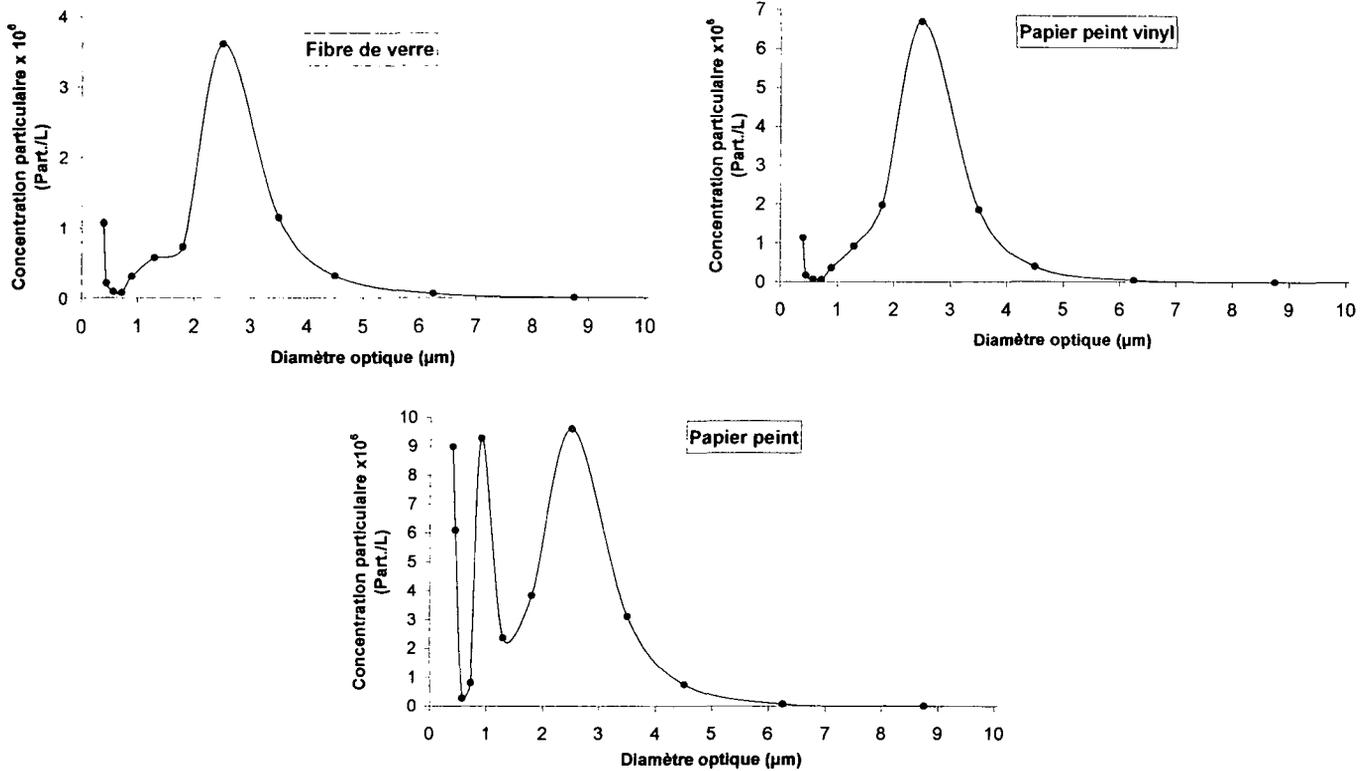


Figure 2 : Profils granulométriques des aérosols produit à partir de différents supports additionnés de nutriments (fibre de verre, papier peint vinyl et papier peint) contaminés par *Aspergillus versicolor* (10 jours d'incubation à 25°C)

Nous constatons que les aérosols issus de la fibre de verre et du papier peint vinyl présentent des profils granulométriques similaires, cependant, le papier peint a généré de plus fortes concentrations d'aérosols que la fibre de verre.

Pour ces deux matériaux, nous observons un mode à 2,5 µm. Nous supposons qu'il s'agit principalement de spores d'*Aspergillus versicolor*. Cette hypothèse est cohérente avec les travaux effectués par Gorny *et al.*, en 2001, où le diamètre aérodynamique de spores aéroportés d'*Aspergillus versicolor* a été mesuré entre 2,4 et 2,7 µm.

Le papier peint semble favoriser l'aérosolisation de particules plus fines ( $d_{opt}$  compris entre 0,3 et 1 µm). Ces particules sont soit d'origine fongique (fragments de mycélium) soit des particules inertes (fragments de matériau).

Les concentrations de stérigmatocystine (ST) contenues dans les aérosols ont été déterminées. Les résultats sont synthétisés sur la Figure 3 et sont exprimés en masse de stérigmatocystine par unités de volume d'air (ng/m<sup>3</sup>).

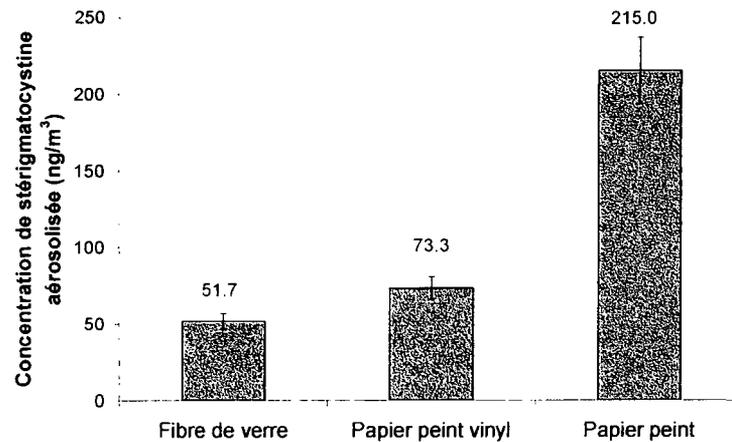


Figure 3 : Concentration de stérigmatocystine mesurée dans les aérosols fongiques en fonction du support de croissance (culture d'*Aspergillus versicolor* ; Mesures réalisées après 10 jours d'incubation ; n=3)

La concentration maximale de stérigmatocystine aéroportée a été relevée sur le papier peint (215,0 ng/m<sup>3</sup>). Les deux autres matériaux se comportent sensiblement de la même façon : la fibre de verre 51,7 ng/m<sup>3</sup> et le papier peint vinyl 73,3 ng/m<sup>3</sup>. La nature du support de croissance semble donc avoir un impact sur les quantités de ST aéroportées.

A travers ces résultats, nous vérifions que la technique de dosage développée permet de quantifier la stérigmatocystine dans des aérosols issus de matériaux moisiss.

La production de stérigmatocystine étant susceptible de dépendre de la nature du support de croissance, nous avons mesuré les concentrations de stérigmatocystine produites sur chaque matériau (ng de ST / cm<sup>2</sup> de matériau) : fibre de verre 0,4 ng/cm<sup>2</sup>, papier peint 0,6 ng/cm<sup>2</sup> et papier peint vinyl 0,8 ng/cm<sup>2</sup>). Nous constatons que le papier peint vinyl est le support qui favorise le plus la production de stérigmatocystine par la moisissure. Par conséquent, la proportion de ST aéroportée ne semble pas uniquement liée à la masse de mycotoxine produite sur le support.

## CONCLUSION

A ce jour, les études relatives aux mycotoxines dans l'habitat évaluent essentiellement la concentration de ces toxines sur des matériaux contaminés ou dans des poussières collectées dans des moquettes ou des gaines de ventilation (Johanning *et al.*, 1998 ; Nielsen *et al.*, 1998 ; Richard *et al.*, 1999 ; Tuomi *et al.*, 2000 ; Engelhart *et al.*, 2002). Or, dans le cas de maladies respiratoires induites par ce type d'agents, le mode d'exposition des personnes est l'inhalation de particules (Cahagnier, 1998 ; Fung et Hughson, 2002). Pourtant, au vu de nos premiers résultats, le dosage des mycotoxines sur les supports ne permet pas d'évaluer réellement l'exposition des personnes et *a priori* seul le dosage de ces métabolites directement dans l'air devrait à terme le permettre.

## REFERENCES

- AFNOR, (1996). Qualité de l'air - Définitions des fractions de taille des particules pour l'échantillonnage lié aux problèmes de santé (NF ISO 7708).
- BOISSIER, M (2003). Etude et compréhension des phénomènes environnementaux régissant la colonisation des produits de construction par les aérosols fongiques: application à l'hygiène des environnements intérieurs. Thèse de l'Université Paris XII, p. 133.
- CAHAGNIER, B, (1998). Moisissures des aliments peu hydratés. Ed. Lavoisier TEC et DOC Paris.
- EDUARD, W, (1997). Exposure to non infectious microorganisms and endotoxins in agriculture. *Annals of Agricultural and Environmental Medicine*, 4 pp.179-186.
- ENGELHART, S ; LÖOCK, A ; SKUTLAREK, D ; SAGUNSKI, H ; LOMMEL, A ; FÄRBER, H et EXNER, M, (2002). Occurrence of toxigenic *Aspergillus versicolor* isolates and Sterigmatocystin in carpet dust from damp indoor environments. *Applied and Environmental Microbiology*, 68 ,(8), pp.3886-3890.
- FUNG, F et HUGHSON, WG (2002). Health effects of indoor fungal bioaerosol exposure. 9th International Conference on Indoor Air Quality and Climate, Monterey, California.
- HINKLEY, SF et JARVIS, BB (2001). Chromatographic method for *Stachybotrys* toxins in Mycotoxin protocols. MW TRUCKESS et AE POHLAND. Washington. 157 pp.173-194.

- JOHANNING, E ; GAREIS, M ; YANG CHIN, S ; HINTIKKA, E-L ; NIKULIN, M ; JARVIS, B et DIETRICH, R, (1998). Toxicity screening of materials from buildings with fungal indoor air quality problems (*Stachybotrys chartarum*). *Mycotoxin Research*, 14 pp.60-73.
- MILLER, JD and YOUNG, JC, (1997). The use of ergosterol to measure exposure to fungal propagules in indoor air. *American industrial hygiene association journal*, 58 pp.39-43.
- NIELSEN, KF ; THRANE, U ; LARSEN, TO ; NIELSEN, PA et GRAVESEN, S, (1998). Production of mycotoxins on artificially inoculated building materials. *International Biodeterioration and Biodegradation*, 42 pp.9-16.
- RICHARD, JL ; PLATTNER, RD ; MAY, J et LISKA, SL, (1999). The occurrence of ochratoxine A in dust collected from a problem household. *Mycopathologia*, 146 pp.99-103.
- ROBINE, E ; LACAZE, I ; MOULARAT, S ; RITOUX, S et BOISSIER, M, (2005). Characterisation of exposure to airborne fungi: Measurement of ergosterol. *Journal of Microbiological Methods*.
- ROQUEBERT, MF (1998). Taxonomie des moisissures. in *Moisissures des aliments peu hydratés*. B CAHAGNIER. Paris pp. 38-91.
- RUSSELL, C ; MITCHELL, J et GODISH, T (1999). Apparent viability of airborne mould spores/particules determined from culturable/viable and totale mould spore sampling methods. 8th international conference on indoor air quality and climate, Indoor air'99.
- TUOMI, T ; REIJULA, K ; JOHNSON, T ; HEMMINKI, K ; HINTIKKA, E-L ; LINDROOS, O ; KALSO, S ; KOUKILA-KÄHKÖLÄ, P ; MUSSALO-RAUHAMAA, H et HAAHTELA, T, (2000). Mycotoxins in crude building materials from water-damaged buildings. *Applied and Environmental Microbiology*, 66 (5) pp.1899-1904.

# ETUDE DE L'ÉCOULEMENT DE POUDRES A INHALER DANS LES VOIES RESPIRATOIRES

N. BARDIN-MONNIER, M. DELARUE, L. MARCHAL-HEUSSLER

Laboratoire des Sciences du Génie Chimique UP CNRS 6811- ENSIC 1, rue Grandville BP20451  
Nancy Cedex 1

[nathalie.monnier@ensic.inpl-nancy.fr](mailto:nathalie.monnier@ensic.inpl-nancy.fr)

TITLE : Powder flow pattern simulation : application to powder inhalation

## ABSTRACT:

The efficiency of inhaled powders is directly related to the proportion of fine particles in the powder as well as to the interaction of particles with the air flow entering into the pulmonary system. Aerodynamic particle diameters are usually determined using cascade impactors. Nevertheless, the results are often non reproducible due to the high sensitivity of the device to the process variables, especially the air flow patterns. With a view to simulate the particle flow in the impactors, a first attempt has been made to characterize and simulate the system hydrodynamics by using CFD. Using the CFD code FLUENT<sup>®</sup>, the carrier flow is simulated in the nozzle of the impactor and the particle flow is studied via a Lagrangian approach. Sensitivity tests have been carried out to determine the simulation parameters such as the numbers of particles and the different force models. The way the particles were divided up has been studied in 8 sections of the nozzle and different types of particle-wall interactions have been tested. It has been shown that a better particle dispersion and less wall-particle interactions is obtained with particles having a mean diameter lower than 30  $\mu\text{m}$ .

## RESUME :

L'efficacité des poudres à inhaler est directement reliée à la proportion de fines particules présentes dans la poudre. Les diamètres aérodynamiques des particules sont couramment déterminés à l'aide des impacteurs en cascade. Les résultats obtenus sont cependant peu reproductibles en raison de la sensibilité de l'appareil aux variables du procédé et notamment aux variables régissant l'hydrodynamique des écoulements. Ce travail propose une alternative numérique à l'étude de l'hydrodynamique des phases dans un appareil de type Impacteur Andersen<sup>®</sup>.

Via le code de calcul FLUENT<sup>®</sup>, une étude de l'écoulement porteur est tout d'abord conduite sur la tuyère de l'impacteur, puis le comportement hydrodynamique des particules est abordé. Pour déterminer les paramètres de simulation adéquats (nombre de particules, modèles à utiliser), une étude de sensibilité a tout d'abord été menée. Une analyse a ensuite été effectuée sur la répartition des particules au niveau de différentes sections de la tuyère. Les différents types d'interactions possibles à la paroi ont également été abordés. Les résultats obtenus ont montré que les particules de diamètre moyen inférieur à 30  $\mu\text{m}$  offrent à la fois une bonne dispersion dans la gorge ainsi qu'un minimum d'interactions aux parois.

## INTRODUCTION :

La phase dispersée d'une poudre pour administration pulmonaire est constituée de particules d'excipient inertes de taille 10 à 100  $\mu\text{m}$ , sur lesquelles sont adsorbées les molécules de Principe Actif (PA). Une fois expulsées de l'inhalateur, les particules arrivent dans la gorge où le PA doit se désorber de l'excipient pour pénétrer dans les voies pulmonaires profondes où il passera dans le sang. Les particules non désorbées sont avalées ou déposées dans la gorge et n'ont aucune efficacité. La biodisponibilité du PA dépend donc fortement du comportement des particules de l'aérosol dans la gorge.

Pour évaluer l'efficacité d'une nouvelle formule du médicament ou contrôler sa conformité aux spécifications, les formulateurs utilisent un appareil reproduisant les conditions d'écoulement dans les voies pulmonaires : l'impacteur en cascade.

L'objectif du travail mené au sein de notre équipe est de caractériser les écoulements de poudres type « aérosol », en particulier dans les voies respiratoires. La description de l'écoulement apparaît en effet comme un paramètre clé de la distribution des particules dans les étages de l'impacteur; il est cependant mal connu et peu maîtrisé du fait de la difficulté de son étude expérimentale. En conséquence, le recours à la simulation numérique a été adopté. Cette dernière ne permet pas en l'état actuel du développement des modèles et de la complexité des phénomènes mis en jeu de

rendre compte exactement du comportement hydrodynamique des poudres. C'est pourquoi, notre travail s'est traduit par une approche séquentielle du phénomène.

**ÉCOULEMENT DE LA PHASE CONTINUE :**

La première partie a été consacrée à la simulation de l'écoulement de la phase continue dans la tuyère représentant la gorge. Cette étape a permis de mettre en évidence des zones de recirculation et des zones de turbulence qui permettent a posteriori d'interpréter le comportement des particules solides.

La géométrie de la tuyère et les résultats de l'écoulement sont reportés ci-après. (figure 1)

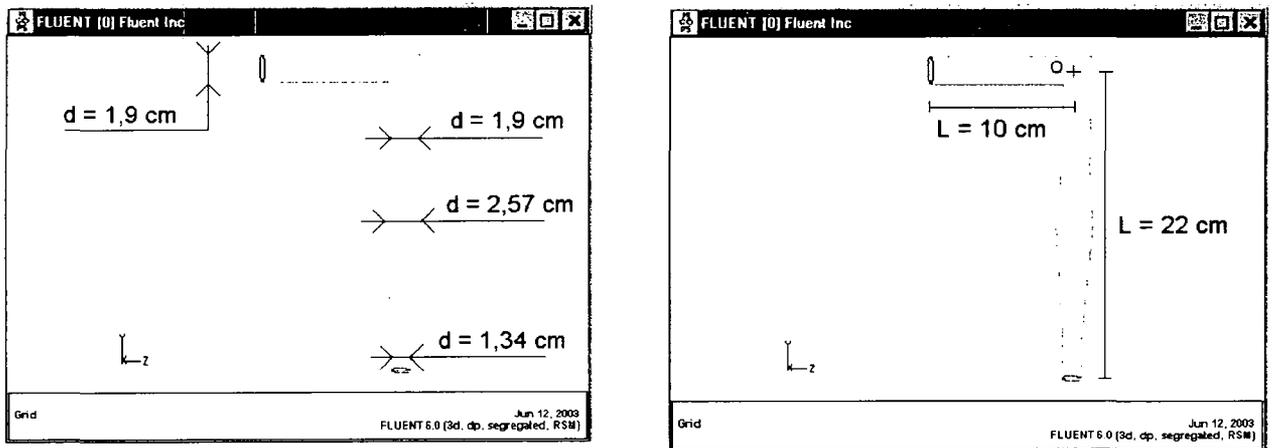


Figure 1. Caractéristiques de la tuyère simulée.

L'écoulement de la phase continue est simulé via la résolution des équations de Navier-Stokes, la turbulence étant prise en compte par l'intermédiaire d'un modèle de type « RSM » [Reynolds Stress Model]. Les résultats reportés sur les figures 2 et 3 montrent l'évolution du champ de vitesse moyen de l'écoulement porteur ainsi que de l'énergie cinétique de turbulence, dont on peut penser qu'elle joue un rôle important dans la désorption du principe actif.

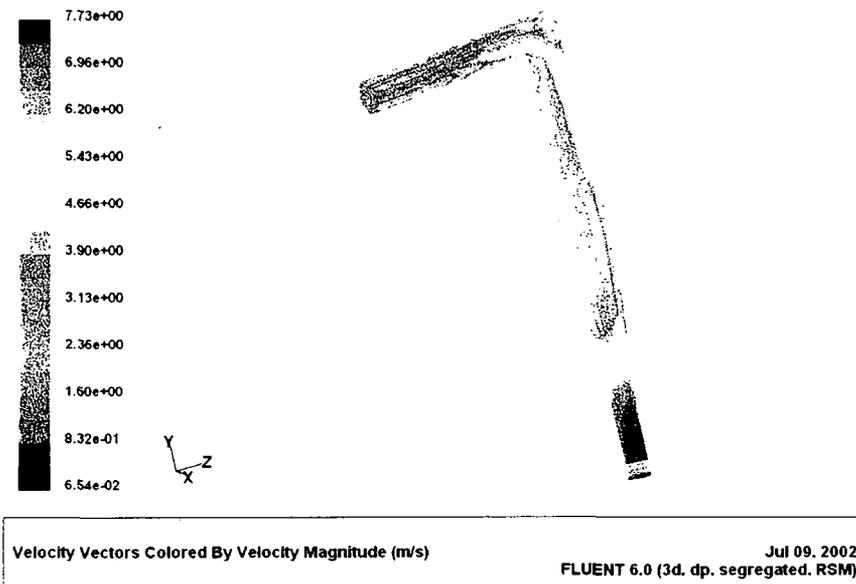


Figure 2. Champ de vitesse de la phase continue. Débit d'air = 60L/min.

On peut observer une vitesse uniforme dans la première partie de la tuyère, en amont du coude. A l'aval de celui-ci, les lignes de courant se concentrent au niveau de la paroi externe : le fluide entre en contact avec la paroi. La vitesse diminue ensuite en raison de l'accroissement de section puis augmente au niveau du rétrécissement. On distingue également (figure 3) deux zones particulières au

niveau du coude : le changement de direction subi par le gaz porteur génère des localisations à faible vitesse : une zone morte à l'angle extérieur du coude et une zone de recirculation localisée sous les lignes de courant après le coude.

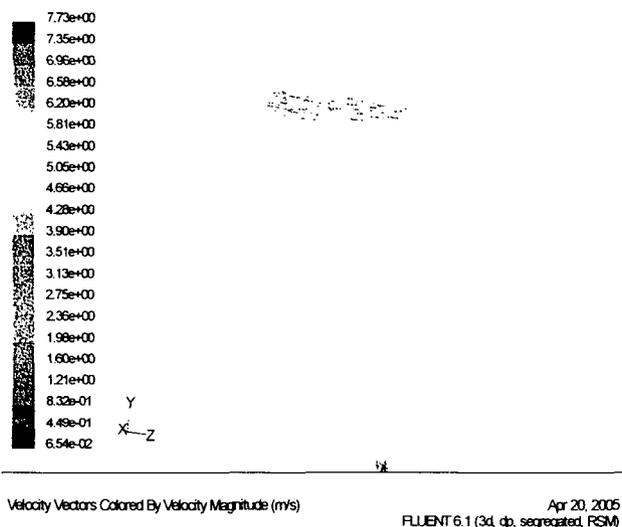
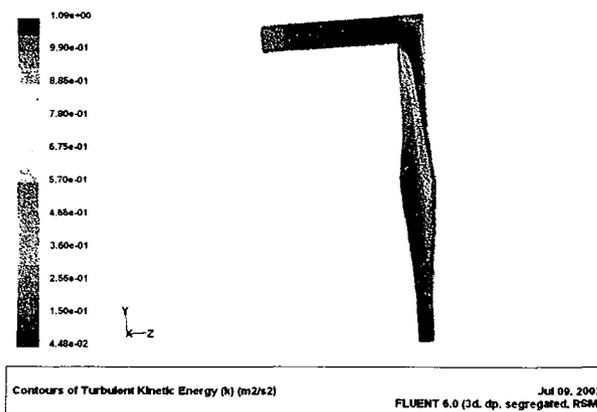


Figure 3 Champ de vitesse de la phase continue.  
Débit d'air = 60L/min - Zoom sur la recirculation

Figure 4. Energie cinétique de turbulence



La répartition de l'énergie cinétique de turbulence fait apparaître une zone à plus forte valeur en aval du coude. Ce site semble favorable à la « désorption » du principe actif de l'excipient. Les informations acquises sur la phase continue permettent d'ores et déjà de localiser des zones au comportement hydrodynamique particulier, qui serviront de base à l'interprétation du mouvement des particules.

#### ETUDE DE LA PHASE DISPERSÉE :

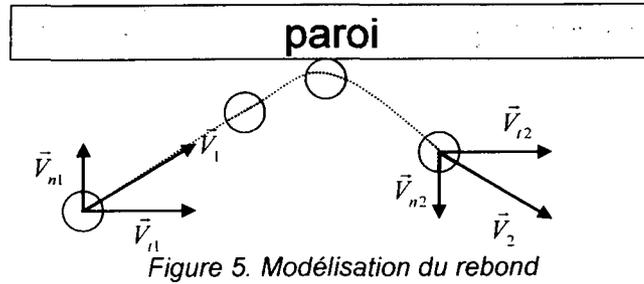
La partie suivante a été consacrée à l'écoulement de la phase dispersée. Après une phase de détermination des paramètres de simulation, deux facteurs ont été étudiés : le diamètre des particules et le comportement à la paroi.

La méthode suivante a été adoptée : les particules considérées sont des particules de lactose ( $\rho_p = 1525 \text{ kg/m}^3$ ) inertes. Une approche de type « Lagrangien » est utilisée compte tenu du caractère dilué de l'écoulement. Chaque trajectoire de particule est calculée par résolution de bilan de forces s'appliquant sur celle-ci. Les forces prises en compte sont : la force de flottabilité, la force de gradient de pression ainsi que la force de traînée. L'influence des particules sur l'écoulement de la phase continue est considérée comme négligeable et les interactions inter particulaires ne sont pas prises en compte. La vitesse instantanée du fluide « vue » par les particules est générée via un modèle stochastique. Les simulations préliminaires ont permis de déterminer le nombre de particules nécessaires à une représentation « non biaisée » de l'écoulement de la phase dispersée. Ce dernier a été fixé à 500. Les conditions initiales de simulation sont les suivantes :

- les particules sont injectées au centre de la tuyère. Deux vitesses initiales ont été testées : vitesse initiale nulle ou égale à celle du fluide. Les résultats obtenus en matières de trajectoire ne montrant pas de différences, une vitesse nulle a été choisie.

Ces conditions initiales étant déterminées, les études suivantes ont été conduites :

- variation du diamètre des particules de 10 à 100  $\mu\text{m}$
- variation du débit de gaz porteur : 30 L/min ; 60 L/min ; 90 L/min
- variation du coefficient de réflexion à la paroi de 0 (choc sans restitution de vitesse) à 1 (rebond purement élastique). Le coefficient de réflexion traduit en effet le taux de restitution des vitesses normales et tangentielles comme l'indique la figure 5 ci-après.

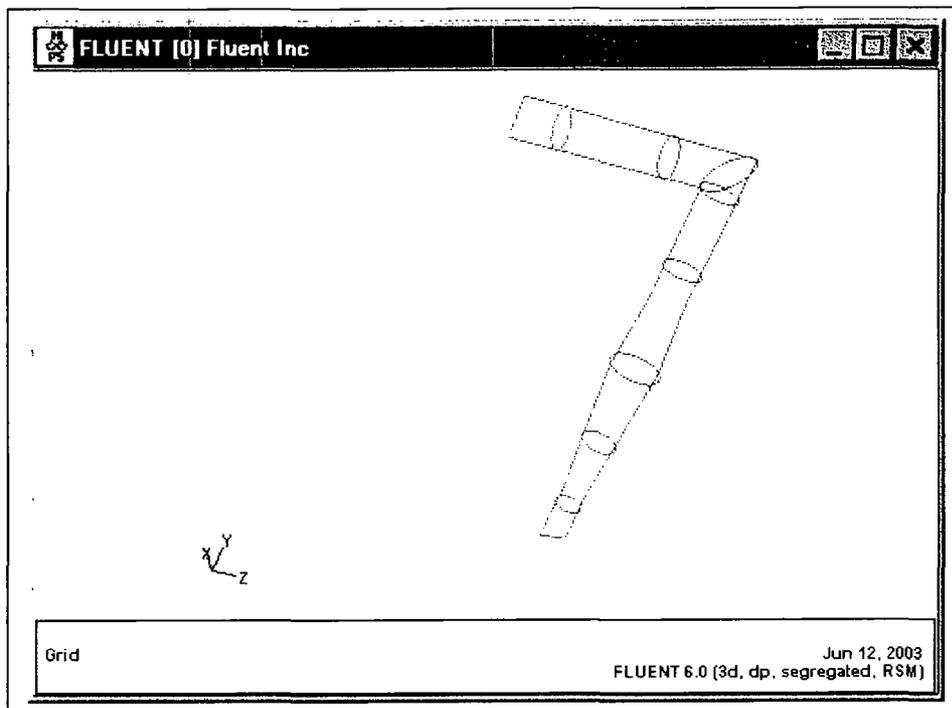


Le coefficient de rebond comporte deux composantes définies comme suit :

$$\vec{V}_{t2} = c_t \cdot \vec{V}_{t1} \qquad \vec{V}_{n2} = -c_n \cdot \vec{V}_{n1}$$

$C_t$  et  $C_n$  sont fixés à des valeurs identiques.

Les résultats bruts issus des calculs de trajectoires sont ensuite traduits en terme graphique. Pour un certain nombre de sections (figure 6), la répartition des particules est déterminée et représentée. Ces sections sont appelées  $S_1$  à  $S_8$  dans le sens de l'écoulement du fluide.



*Figure 6. Sections de visualisation.*

Pour chacune de ces sections, on représente le titre numérique surfacique de particules en fonction de la portion de section. (exemple figure 7)

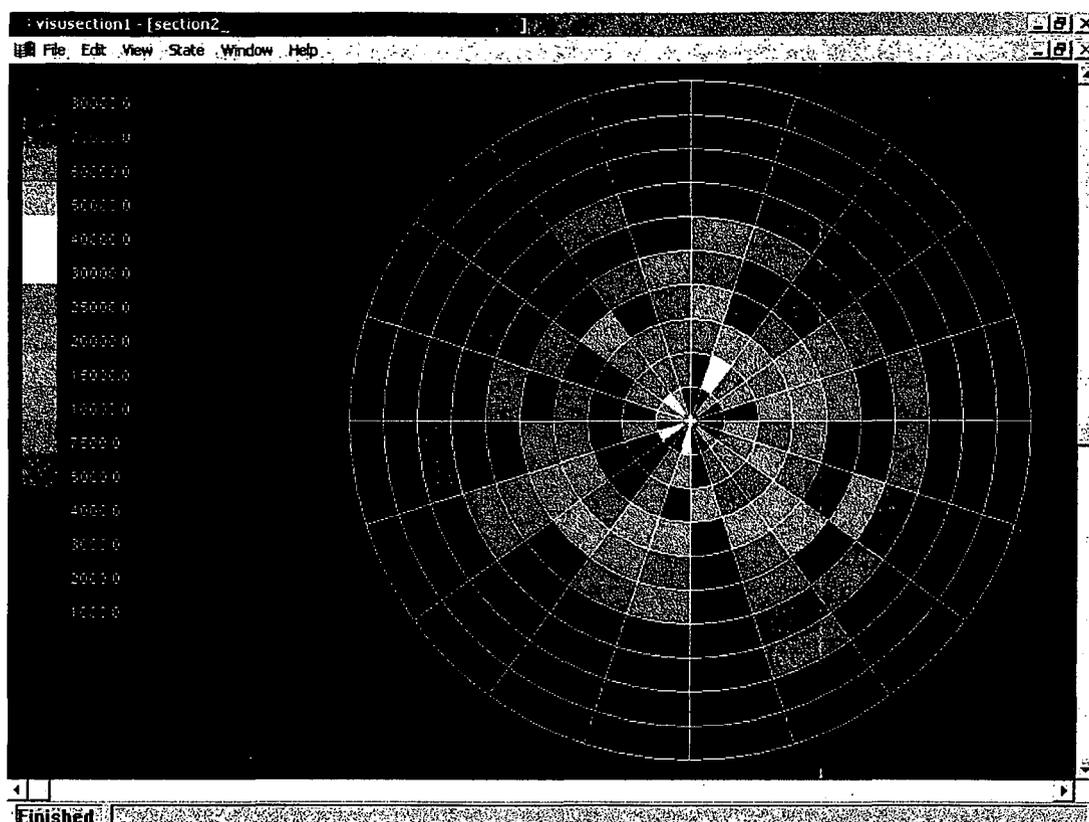


Figure 7. Exemple de répartition des particules sur une section donnée

L'étude de l'influence des paramètres précités a mis en évidence les résultats suivants :

Plus la taille des particules augmente, plus le centre de gravité du nuage est bas : l'influence de la gravité augmente avec la taille des particules. Cette augmentation de l'effet des forces de gravité tend également à diminuer l'influence du régime d'écoulement sur la position des particules, quel que soit le coefficient de réflexion de la tuyère.

En ce qui concerne la dispersion, pour les particules de diamètre inférieur à 50  $\mu\text{m}$ , quelle que soit la section, la dispersion diminue avec une augmentation de la taille des particules. Pour les particules de diamètre plus élevé, on constate une inversion de cette tendance au niveau de la section 4.

Une analyse plus détaillée au niveau de chaque section permet d'aboutir aux remarques suivantes :

#### Section 1 :

On observe une diminution de la dispersion au fur et à mesure que la taille des particules augmente. Cependant les particules de taille supérieure à 30  $\mu\text{m}$  se dispersent de façon similaire.

#### Section 2 :

On observe également une diminution de la dispersion au fur et à mesure que la taille des particules augmente. Cependant cette diminution est beaucoup plus marquée lorsque la taille des particules passe de 40 à 50  $\mu\text{m}$ . En effet, aucune particule de taille supérieure à 50  $\mu\text{m}$  n'atteint le périmètre supérieur ni ne touche la paroi supérieure de la tuyère; seules quelques particules touchent la paroi inférieure, et ce d'autant plus que la taille des particules est plus importante. On observe ainsi un regroupement des particules vers le centre de la section.

#### Section 3 :

De même qu'au niveau de la section 2, la dispersion des particules de taille supérieure à 50  $\mu\text{m}$  est beaucoup plus faible que celle des particules de taille inférieure à 40  $\mu\text{m}$ . Ainsi, plus aucune particule de 50  $\mu\text{m}$  ou plus ne se situe dans le périmètre supérieur de la tuyère.

La zone de recirculation turbulente au niveau de cette section étant située dans la partie supérieure de la section, les particules de taille supérieure à 50 à 60  $\mu\text{m}$  n'y seront pas bloquées tandis que les particules de taille inférieure à 50-60  $\mu\text{m}$  y seront.

#### Section 4 :

La dispersion des particules de taille comprise entre 10 et 50  $\mu\text{m}$  diminue lorsque la taille augmente, tandis que la dispersion des particules de taille supérieure à 60  $\mu\text{m}$  augmente avec la taille.

#### Section 5 à 8 :

Dans les dernières sections les rebonds compliquent beaucoup l'interprétation des images. On remarque cependant que les résultats sont très sensibles aux conditions de débit et de taille des particules. Ainsi, plus les particules sont dispersées à l'entrée du coude (petite taille de particule), plus elles sont dispersées après celui-ci (section 5). Cette dispersion continue ensuite à être plus grande pour les particules de faible taille tout au long des différentes sections.

L'analyse spécifique du coefficient de réflexion permet de mentionner les remarques suivantes :

#### Section 1, 2 et 3 :

Aucune influence prépondérante du coefficient de réflexion sur la dispersion des particules n'est mise en évidence. Toutefois, l'augmentation de la dispersion lorsque le coefficient de réflexion diminue (section 3) semble montrer que la perte d'énergie lors des rebonds sur la paroi tend à augmenter la dispersion des particules dans la section. Ce phénomène concerne les particules de taille intermédiaire (30 à 70  $\mu\text{m}$ ). En effet, les petites particules sont déjà fortement dispersées dans ces zones et les particules de grosses tailles ne sont pas présentes dans la partie supérieure de cette section.

#### Section 4 :

De même que précédemment, la dispersion des particules de taille inférieure à 50  $\mu\text{m}$  s'accroît lorsque le coefficient de réflexion diminue. Par contre, à partir de 50  $\mu\text{m}$ , on observe une diminution de la dispersion des particules lorsque le coefficient de réflexion diminue. Ce phénomène est d'autant plus important que la taille est élevée.

#### PERSPECTIVES :

Les résultats obtenus et présentés ici permettent désormais d'étudier l'influence de différentes variables du procédé, notamment : l'influence de la direction d'injection des particules qui permettrait de quantifier d'un point vue hydrodynamique la mauvaise inclinaison d'un inhalateur par le patient, la détermination de la vitesse locale du fluide porteur « vue » par la particule afin d'évaluer l'importance relative de chaque force mise en jeu. Enfin, l'étude de l'écoulement d'une population de particules polydispersées nous permettra de nous rapprocher des conditions réelles de fonctionnement des impacteurs.

# 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 nuclear and other industrial facilities. Nuclear industry, and 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 thus to determine the different mechanisms involved in the airborne particles generation under conditions of falling powder. In order to determine the main parameters that affect significantly these mechanisms, experiments are developed on the effect of the falling mass, the kind of powder, the impaction surface (liquid or solid surface) and the kind of spill (mass or flow through a leak).

## Résumé

Cette étude s'inscrit dans le cadre général des études et recherches sur l'évaluation de la sûreté des installations. L'industrie nucléaire, notamment les laboratoires et usines du cycle du combustible, manipulent 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 la fraction mise en suspension dans le cas d'un scénario de chute accidentelle de poudre.

Le but de cette étude est donc de déterminer les différents mécanismes impliqués dans la mise en suspension de particules lors de chute de poudre. Afin de déterminer les principaux paramètres qui affectent ces mécanismes, des expériences ont été menées pour d'étudier l'influence de la masse, de la nature de la poudre, de la surface d'impact (surface liquide ou solide) et du type de déversement (déversement en paquet ou écoulement à travers une fuite).

## Introduction

L'étude de la mise en suspension de contamination, en fonctionnement normal ou lors de scénarios d'accidents ou d'incidents sur un procédé, présente un intérêt de premier ordre afin de pouvoir estimer les répercussions sur l'opérateur et son environnement direct (installation). La mise en suspension intéresse les liquides et les solides sous forme de poudre. Dans le cas des poudres, celle-ci est étudiée suivant deux cas qui sont l'écoulement d'air sur un tas (léchage) et la chute de poudre.

La mise en suspension de matière est estimée par l'intermédiaire de coefficients de mise en suspension. Dans le cas de la chute de poudre, le principal coefficient utilisé pour quantifier la mise en suspension est : la fraction mise en suspension  $K_{MES}$ , définie comme étant le rapport entre la quantité de matière mise en suspension ( $m_{mes}$ ) et la quantité initiale manipulée ( $m_0$ ) ; elle s'exprime par la relation suivante :

$$K_{MES} = \frac{m_{mes}}{m_0}$$

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 (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 matériaux testés et les conditions dans lesquelles ont été réalisées les expériences. Plus récemment, des travaux ont été menés par l'IRSN et serviront d'expériences de référence (Gensdarmes *et al.*, 2003). Ces différentes études sont difficiles à comparer car, comme le montre le tableau 1, les conditions expérimentales ainsi que les coefficients utilisés (mesurés ou calculés) sont multiples et très différents d'une étude à l'autre.

**Tableau 1. Synthèse de différentes études de la littérature concernant la mise en suspension de poudre.**

Auteurs	Type de poudres	Paramètres étudiés	Grandeur mesurée
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 <sub>MES</sub>
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)	K <sub>MES</sub>
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 <sub>MES</sub>
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 <sub>MES</sub>

Par ailleurs, dans le cas de la chute de poudre, les mécanismes conduisant à la mise en suspension sont divers. De ce fait, le phénomène à étudier est complexe. Dans la littérature, des études décrivent la mise en suspension de particules de manière phénoménologique comme résultant de deux effets qui sont l'écoulement de la poudre et l'impact au sol ( Liu *et al.*, 1999 ; Wypych *et al.*, 2005 ; Plinke *et al.*, 1994). De plus, ces études comparent les débits d'air induits obtenus expérimentalement au cours de la chute à différentes théories permettant de les estimer (Cooper et Arnold, 1995 ; Hemeon, 1963 ; Tooker, 1992).

Afin de pouvoir utiliser les différents coefficients permettant d'estimer la mise en suspension, il est nécessaire de déterminer la masse des particules mises en suspension lors de la chute. Pour cela, il faut pouvoir collecter rapidement les particules et déterminer la granulométrie de l'aérosol. Par la suite, il est nécessaire d'appliquer un traitement aux valeurs expérimentales obtenues afin de prendre en compte les pertes de particules dues notamment à la perte par sédimentation au cours du prélèvement.

### Démarche expérimentale

Le but de nos travaux est de discriminer expérimentalement les deux effets mis en évidence dans la littérature (écoulement et impaction). Pour cela, des expériences de mise en suspension sont réalisées dans une enceinte close. Au cours des expériences, différentes configurations ont été envisagées en ce qui concerne le type de déversement (déversement en paquet ou écoulement à travers une fuite), la nature de la surface sur laquelle la poudre vient s'impacter (surface solide ou liquide) et le type de poudre utilisée (billes de verre ou alumine).

### Dispositif expérimental

L'installation utilisée pour réaliser les expériences de mise en suspension est une enceinte parallélépipédique 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 de systèmes permettant le versement de la poudre (figure 1).

Au cours des expériences, deux surfaces d'impaction (surface solide et surface liquide) sont utilisées afin de distinguer 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, lors de l'impact de la poudre sur un liquide, celle-ci pénètre la surface liquide ce qui permet d'éviter l'émission de particules par phénomène d'impaction.

Les poudres utilisées (alumine et billes de verre) au cours des expériences ont été choisies d'après leurs caractéristiques géométriques et leurs distributions granulométriques relativement proches.

Billes de verre (Verre Industrie/Microbilles 0-50  $\mu\text{m}$ ) : particules sphériques dont les caractéristiques sont :  $d_{ev50}$  en volume = 30  $\mu\text{m}$  ;  $\sigma_g = 1,5$  ;  $\rho_{matériau} = 2,5 \text{ g/cm}^3$  et  $\rho_{poudre} = 1,4 \text{ g/cm}^3$  (mesure au Powder Tester – Hosokawa).

Alumine (Alumines Durmax / SPM 71) : particules irrégulières dont les caractéristiques sont :  $d_{ev50}$  en volume = 33  $\mu\text{m}$  ;  $\sigma_g = 1,4$  ;  $\rho_{matériau} = 3,9 \text{ g/cm}^3$  et  $\rho_{poudre} = 1,53 \text{ g/cm}^3$  (donnée fournisseur).

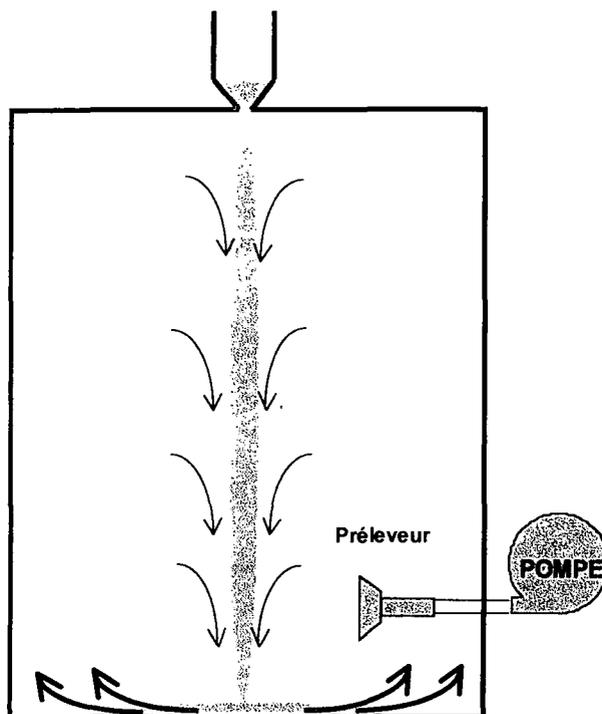


Figure 1. Schéma de l'enceinte expérimentale.

La collecte des particules 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 afin de limiter les pertes de particules (notamment par sédimentation). L'axe du préleveur est placé horizontalement à une hauteur de 20 cm par rapport au bas de l'enceinte.

La masse mise en suspension ainsi récupérée est mesurée par pesées différentielles du filtre de prélèvement. Les distributions granulométriques sont ensuite déterminées à l'aide du granulomètre Coulter - Multisizer II, permettant de mesurer le diamètre équivalent en volume ( $d_{ev}$ ) des particules collectées.

### Traitement des résultats expérimentaux

Les données expérimentales brutes obtenues par l'intermédiaire des prélèvements sur filtre sont des valeurs qui nécessitent d'être traitées afin d'être comparées aux données de la littérature et utilisées pour le calcul des coefficients de mise en suspension. En effet, l'aérosol produit au cours de la chute est en perpétuelle évolution du fait de la perte de particules notamment par sédimentation. Le prélèvement effectué ne permet pas de collecter la totalité des particules mises en suspension mais seulement une partie d'entre elles.

Afin de déterminer la masse mise en suspension, il est nécessaire de prendre en compte la perte de particules par sédimentation au cours du prélèvement. Pour cela, les hypothèses faites sont : concentration homogène à l'intérieur de l'enceinte à tout instant, pas de terme source de mise en suspension après la fin de la chute, épuration de l'enceinte due uniquement au système de prélèvement et à la sédimentation. Cette méthode tient compte des paramètres de l'enceinte expérimentale (volume et surface au sol), des paramètres de prélèvement (débit, temps de prélèvement) et des paramètres de l'aérosol collecté (masse prélevée, distribution granulométrique).

En établissant l'évolution de la concentration d'un polluant après son émission, on obtient la relation suivante à l'aide des hypothèses précédemment décrites :

$$\frac{dC_n(d)}{dt} = -\left(\frac{Q}{V_c}\right)C_n(d) - \left(\frac{V_s(d) \cdot S_d}{V_c}\right)C_n(d)$$

où  $C_n(d)$  représente la concentration numérique de particules de diamètre  $d$  (particules/m<sup>3</sup>),  $Q$  le débit des systèmes d'épuration (m<sup>3</sup>/s),  $V_e$  le volume de l'enceinte (m<sup>3</sup>),  $V_s(d)$  la vitesse de sédimentation des particules de diamètre  $d$  (m/s) et  $S_d$  la surface au sol de l'enceinte (m<sup>2</sup>).

Au cours du prélèvement, la mesure effectuée est une mesure moyenne. La concentration moyenne de particules de diamètre  $d$  en suspension dans l'enceinte pendant le temps de prélèvement

où  $C_n(d)$  représente la concentration numérique de particules de diamètre  $d$  (particules/m<sup>3</sup>),  $Q$  le débit des systèmes d'épuration (m<sup>3</sup>/s),  $V_e$  le volume de l'enceinte (m<sup>3</sup>),  $V_s(d)$  la vitesse de sédimentation des particules de diamètre  $d$  (m/s) et  $S_d$  la surface au sol de l'enceinte (m<sup>2</sup>).

Au cours du prélèvement, la mesure effectuée est une mesure moyenne. La concentration moyenne de particules de diamètre  $d$  en suspension dans l'enceinte pendant le temps de prélèvement  $\Delta t_p$  s'écrit donc :

$$C_n(d, \Delta t_p) = \frac{1}{\Delta t_p} \times C_n(d, t_0) \times T_p(d) \times \left[ 1 - \exp\left(-\frac{\Delta t_p}{T_p(d)}\right) \right] = \frac{n(d, \Delta t_p)}{V_p} = \frac{m(\Delta t_p) \times \left( \frac{6}{\pi \times d^3 \times \rho_p} \right) \times f_{v,p}}{V_p}$$

où  $V_p$  est le volume prélevé (m<sup>3</sup>),  $m(\Delta t_p)$  la masse collectée sur le filtre (kg),  $\rho_p$  la masse volumique des particules (kg/m<sup>3</sup>) et  $f_{v,p}$  la distribution granulométrique en volume mesurée.

Avec  $C_n(d, t_0) = \frac{n(d, t_0)}{V_e}$ , on aboutit à la relation suivante :

$$n(d, t_0) = n(d, \Delta t_p) \times \frac{1}{Q_p} \times V_e \times \frac{1}{T_p(d)} \times \left[ 1 - \exp\left(-\frac{\Delta t_p}{T_p(d)}\right) \right]^{-1} \text{ avec } T_p(d) = \frac{V_e}{Q + V_s(d) \times S_d}$$

où  $Q_p$  représente le débit du système de prélèvement (m<sup>3</sup>/s),  $n(d, t_0)$  le nombre de particules de diamètre  $d$  au début du prélèvement et  $n(d, \Delta t_p)$  le nombre de particules de diamètre  $d$  collectées.

A partir des mesures que nous effectuons, nous pouvons calculer le nombre de particules prélevées pour chaque diamètre  $n(d, \Delta t_p)$ . Il est donc possible de déterminer le nombre de particules présentes au début du prélèvement  $n(d, t_0)$  et, par la suite, la masse mise en suspension par la

$$\text{relation : } m(t_0) = \int_0^{\infty} n(d, t_0) \times \frac{\pi \times d^3 \times \rho_p}{6} dd.$$

## Résultats et discussion

Les résultats de la figure 2 représentent les fractions moyennes ( $K_{MES} \pm 1\sigma$ ) mises en suspension calculées à partir des masses corrigées qui tiennent compte des effets de la sédimentation sur l'évolution de l'aérosol au cours du temps. Ces résultats sont ceux obtenus dans les cas de chutes de poudres non compactées de billes de verre et d'alumine d'une hauteur égale à 1,42 m pour différents types de verseurs, différentes masses et différentes surfaces d'impaction.

### *Influence de la nature de la poudre*

Il semble y avoir une influence du type de poudre dans le cas du déversement au travers d'une fuite, les fractions mises en suspension lors des chutes de poudre de billes de verre étant supérieures à celles obtenues avec la poudre d'alumine. Toutefois, cet effet semble moins marqué dans le cas de l'impaction sur une surface liquide. Dans le cas de chutes en paquet, on n'observe pas d'effet notable de la nature de la poudre sur la fraction mise en suspension.

Ceci peut être expliqué par le fait que, dans le cas de déversement en paquet, les deux poudres forment un tas au bas de l'écoulement. En revanche, pour des chutes au travers de fuites,

### Influence du type de déversement

Les résultats montrent que pour chaque masse de poudre de billes de verre, les fractions mises en suspension lors de chutes en paquet semblent être inférieures à celles obtenues pour des écoulements au travers d'une fuite, et ceci pour les deux types de surface d'impaction. Dans le cas de la poudre d'alumine, les résultats obtenus ne montrent pas d'influence importante du type de déversement sur la fraction mise en suspension, notamment dans les cas de chutes sur une surface liquide.

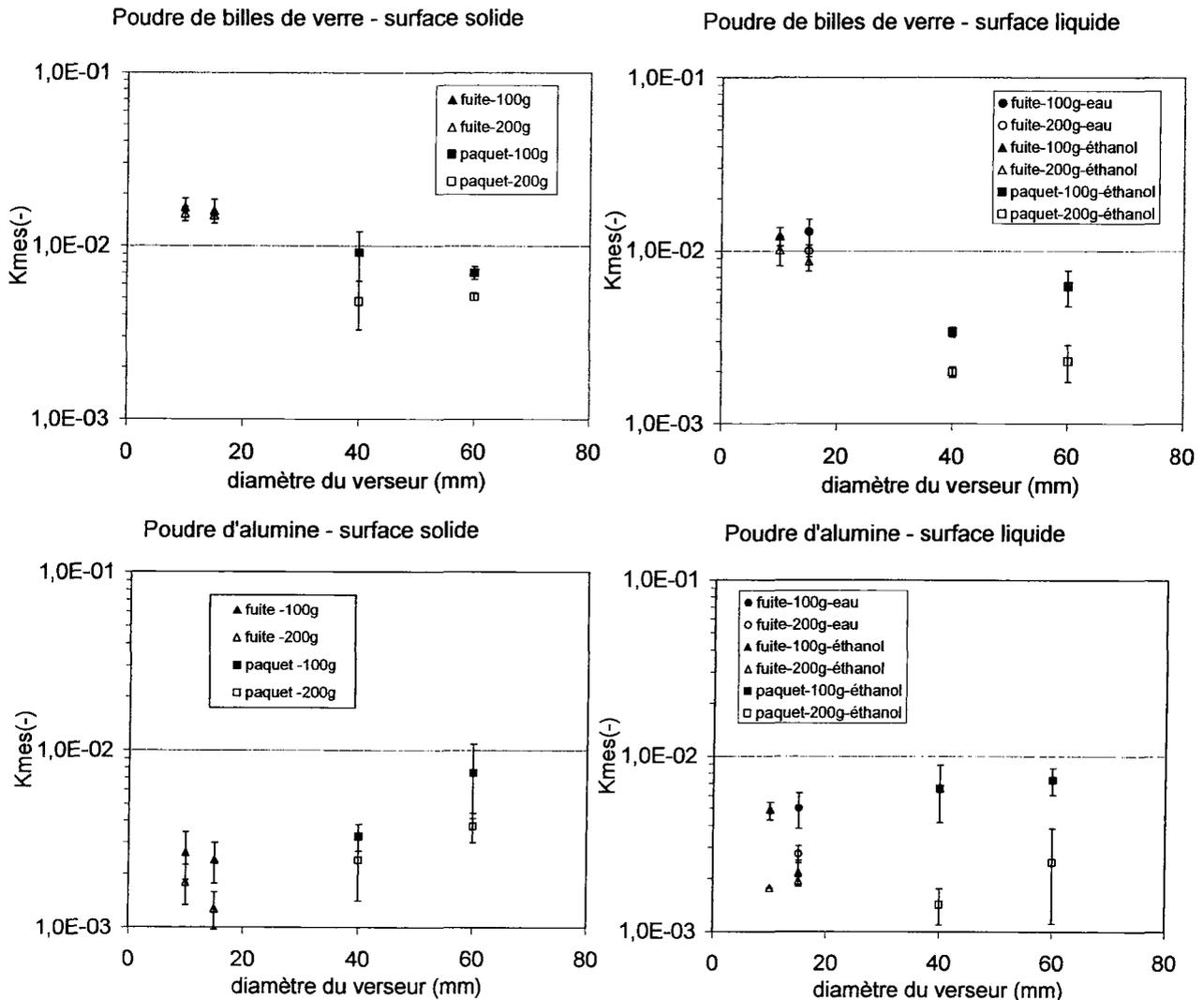


Figure 2. Fractions mises en suspension ( $K_{MES} \pm 1\sigma$ ) pour les deux types de poudre (billes de verre et alumine) en fonction de la surface d'impaction (solide et liquide) et du type de déversement (fuite ou paquet).

### Influence de l'augmentation du diamètre du verseur pour chaque type de déversement

Dans les cas des chutes de poudre de billes de verre, on n'observe pas d'influence notable de l'augmentation du diamètre du verseur pour des chutes sur surface solide effectuées dans les mêmes conditions de déversement (fuite ou paquet). On observe une légère influence dans les cas de chutes de 100 g en paquet sur surface liquide. De même, pour les chutes de poudre d'alumine, l'augmentation du diamètre du verseur ne semble pas avoir d'influence, hormis dans le cas de chutes de 100 g au travers d'une fuite (comparaison entre  $d = 10$  mm et  $d = 15$  mm) sur une surface liquide (éthanol).

### Influence de la masse

D'une façon générale, la fraction mise en suspension tend à diminuer légèrement lorsque la masse de poudre augmente. Cet effet est présent pour les deux types de surface mais semble moins marqué dans le cas d'impaction sur une surface solide que lors de l'impact sur surface liquide.

Pour la poudre de billes de verre, cet effet paraît plus marqué dans le cas de chute en paquet que dans le cas de déversement en fuite. En ce qui concerne les fractions mises en suspension obtenues avec la poudre d'alumine, la masse semble avoir un effet similaire à celui observé pour la poudre de billes de verre, surtout dans le cas de la chute sur une surface liquide.

#### *Influence de la surface d'impaction*

D'une façon générale pour la poudre de billes de verre, les expériences de chute sur une surface solide conduisent à des fractions mises en suspension supérieures à celles obtenues dans le cas de chute sur une surface liquide, ceci quel que soit le type de déversement (fuite ou paquet).

Pour la poudre d'alumine, la surface d'impaction ne semble pas avoir d'influence sur la fraction mise en suspension. Les faibles différences observées entre les deux surfaces d'impaction peuvent être expliquées par des interactions entre la surface et la poudre. Lors de l'impact sur une surface solide, la poudre d'alumine forme un tas au bas de l'écoulement, celui-ci pouvant avoir un effet limitant sur la mise en suspension.

#### **Conclusions**

Nous avons vu qu'il était difficile de conclure de façon certaine sur les effets des différents paramètres étudiés, du fait notamment de la grande variabilité expérimentale. Afin de pouvoir déterminer les influences des paramètres étudiés, il est nécessaire d'effectuer une analyse statistique des résultats obtenus.

Par la suite, nous nous intéresserons plus en détail aux paramètres rhéologiques (cohésion, fluidisation, etc.) afin de mieux comprendre les différences observées entre les deux poudres. En effet, la mise en suspension d'une poudre peut être décrite comme le rapport entre des forces de liaison et des forces de séparation agissant sur une particule ou un ensemble de particules. Les forces de liaison peuvent être assimilées aux forces de cohésion présentes au sein d'une poudre, les forces de séparation pouvant, quant à elles, être représentées par l'impaction et le frottement de l'air.

#### **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.*
- Cooper P. et Arnold P.C. (1995) Air entrainment and dust generation from a falling stream of bulk material. *KONA*, n°13, 125-134.
- Cowherd C. Jr, Grelinger 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.
- 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.
- Hemeon W.C.L. (1963) Plant and process ventilation. *The industrial Press, New-York.*
- Liu Z., Wypych P. et Cooper P. (1999) Dust generation and air entrainment in bulk materials handling-A review. *Powder handling & processing*, **11**, 421-425
- 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.
- Plinke M.A.E., Leith D., Goodman R.G. et Löffler F. (1994) Particle separation mechanisms in flow of granular material. *Particulate Science and Technology*, **12**, 71-87.
- 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.
- Tooker G.E. (1992) Controlling fugitive dust emissions in material handling operations. *Bulk Solids Handling*, **12**, 227-232.
- Wypych P., Cook D. et Cooper P. (2005) Controlling dust emissions and explosion hazards in powder handling plants. *Chemical Engineering and Processing*, **44**, 323-326.

# Etude de la mise en suspension de micro-gouttelettes lors de l'impact d'une goutte sur une surface sèche ou sur un film liquide

C.Motzkus \* (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 : charles.motzkus@irsn.fr

## TITLE

Study of airborne particles during the impact of droplets on a dry surface or on a liquid film.

## ABSTRACT

The safety analyses of the nuclear facilities require extensive knowledge on the airborne micro-droplet, in order to assess the potential sources of contamination in the case of hypothetical scenarios of accidental falls of liquids caused by leakage or discharge from a container. There are very few data in the literature in the case of the impaction of millimeter-size droplets on the airborne particles. The objective of our work is to study experimentally the emission of the particles during the impaction on a dry or wet plane surface, in order to understand the mechanisms leading to the airborne particles. First experiments are carried out in order to study the airborne particles produced by the free falls of droplet according to the fall height. These results are faced with a semi empirical correlation, which describes the transition between deposition and splash. In the case of a dripping of 3.84 mm-diameter droplets, our results show that the splash occurs for a fall height above 30 cm, which leads to resuspension fractions between  $1,9 \cdot 10^{-6}$  at 46 cm and  $7,5 \cdot 10^{-6}$  at 80 cm.

## RESUME

L'analyse de la sûreté des installations nucléaires nécessite des données sur la mise en suspension de micro-gouttelettes, ceci afin d'évaluer les sources potentielles de contamination dans le cas de scénarios hypothétiques de chutes accidentelles de liquide lors de fuite ou de déversement de conteneur. Il y a très peu de données dans la littérature sur la mise en suspension dans le cas d'impaction de gouttes millimétriques. Le but de nos travaux est d'étudier expérimentalement l'émission de particules lors d'impaction sur une surface plane sèche ou humide, afin d'établir et de comprendre les mécanismes prépondérants de la mise en suspension. Des premières expériences ont permis d'étudier la mise en suspension produite par l'impaction de gouttes selon leur hauteur de chute. Ces résultats ont permis d'apprécier l'utilisation d'une relation semi-empirique déjà existante, décrivant la transition entre le régime de dépôt et d'éclaboussure. Dans le cas de train de gouttes de 3,84 mm de diamètre, nos résultats montrent que l'éclaboussure a lieu à des hauteurs de chute supérieures à 30 cm, conduisant à une fraction mise en suspension brute comprise entre  $1,9 \cdot 10^{-6}$  et  $7,5 \cdot 10^{-6}$ , valeurs obtenues respectivement à 46 cm et 80 cm.

## 1. Introduction

L'étude de la mise en suspension de contaminants radioactifs, en fonctionnement normal ou lors de scénarios d'accidents, présente un intérêt de premier ordre afin de pouvoir estimer les conséquences de ce terme source sur l'opérateur et son environnement direct (installation). L'évaluation de la mise en suspension se fait généralement par l'utilisation de coefficients déterminés expérimentalement.

L'objectif de l'étude globale est de déterminer expérimentalement l'émission d'aérosol lors de la chute gravitaire d'un liquide sur une surface plane. Dans ce type de scénario, trois cas peuvent être distingués : la chute d'un train de gouttes, d'un jet liquide se fragmentant avant d'impacter la surface, et le cas d'un jet continu qui s'impacte sur la surface. Cette démarche permet d'étudier des scénarios d'accidents allant de la fuite (goutte à goutte) jusqu'au déversement massif de liquide. Seul le premier scénario fait l'objet de cet article.

Un bilan des connaissances a été réalisé sur les impactions de gouttes sur des surfaces sèches ou sur des films liquides. Dans le cas d'un train de gouttes, des expériences sont mises en œuvre afin de valider des modèles d'impaction de gouttes issus de la littérature, et obtenir ainsi des données sur les coefficients de mise en suspension.

On s'est intéressé en particulier à l'établissement d'une corrélation permettant de déterminer le seuil dépôt/éclaboussure afin de prédire l'apparition de mise en suspension de particules.

## 2. Synthèse bibliographique

### Définition de la mise en suspension

La caractérisation de la mise en suspension passe par la connaissance de la masse mise en suspension et de la granulométrie de l'aérosol produit. La masse mise en suspension est utilisée afin de déterminer la quantité potentielle d'aérocontaminant dispersé dans une installation ou inhalé par un opérateur. En ce qui concerne la granulométrie, elle permet de déterminer le transfert de l'aérosol et sa pénétration dans le système respiratoire d'un individu ou dans les systèmes d'épuration.

La mise en suspension concerne principalement les particules de diamètre aérodynamique inférieur à la centaine de micromètres. Cette valeur correspond à la limite supérieure de la dimension d'un aérosol. Pour les particules supérieures à 100  $\mu\text{m}$ , la vitesse de sédimentation (26 cm/s pour un diamètre aérodynamique de 100  $\mu\text{m}$ ) est telle que le temps de séjour en suspension est très faible. Dans la littérature, il existe différents coefficients qui permettent de quantifier la mise en suspension. Dans notre cas, pour la chute gravitaire de liquide, le principal coefficient utilisé est la fraction mise en suspension  $K_{MES}$ , définie par le rapport entre la quantité de matière mise en suspension ( $m$ ) et la quantité initiale chutant ( $m_0$ ) :

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

Dans la littérature, les résultats peuvent être exprimés à l'aide de la fraction mise en suspension « brute » ( $K_{MES}$  brute) qui est définie comme le rapport entre la quantité de matière prélevée dans l'expérience et la quantité de matière chutante.

### Généralités sur l'impaction d'une goutte

Dans le cas de la chute d'une goutte sur une surface sèche (figure 1) ou sur une flaque liquide, trois phénomènes peuvent se produire : le dépôt, le rebond et l'éclaboussure (rupture).

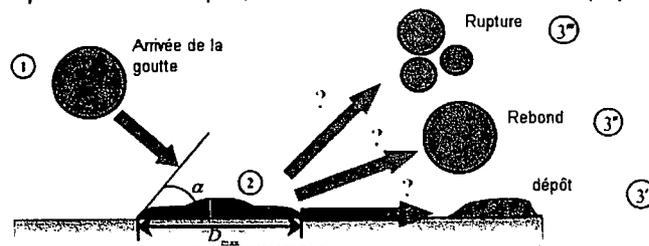


Figure 1. Différents phénomènes rencontrés lors de l'impaction d'une goutte sur une surface sèche plane.

L'interaction entre une goutte et une surface (humide ou sèche) est un phénomène très complexe. Les principaux paramètres influents sont les caractéristiques de la goutte (diamètre  $d_g$ , vitesse  $V_g$ , température, propriétés physique du liquide : masse volumique  $\rho$ , viscosité  $\mu$  et tension de surface  $\sigma$ ), celles de la paroi (température, rugosité, angle de mouillage avec le liquide), la présence d'un film liquide sur la paroi (épaisseur du film, vitesse du liquide, caractéristique de la paroi) et enfin les caractéristiques de l'écoulement gazeux (vitesse, pression, température, régime laminaire ou turbulent).

Afin de caractériser de manière générale l'impaction d'une goutte sur une paroi, différents nombres adimensionnels liés aux caractéristiques de la goutte peuvent être utilisés : le nombre de Reynolds

$$Re = \frac{\rho d_g V_g}{\mu}, \text{ de Weber } We = \frac{\rho d_g V_g^2}{\sigma} \text{ et d'Ohnesorge } Oh = \frac{\sqrt{We}}{Re} = \frac{\mu}{\sqrt{\rho \sigma d_g}}.$$

Ces trois nombres permettent d'étudier les effets des forces de tension de surface, d'inertie et de viscosité lors de l'impaction.

D'autres nombres adimensionnels sont également utilisés comme le paramètre de rugosité  $S_r = R_a/d_g$  (rapport entre la rugosité de la paroi  $R_a$  et le diamètre de la particule impactante  $d_g$ ), un paramètre d'épaisseur de film  $S_f = h_{film}/d_g$  (avec  $h_{film}$  l'épaisseur du film liquide) et un paramètre de fréquence d'impaction  $f_{nd} = f/f^*$  (où  $f^* = V_g/d_g$  avec  $V_g$  la vitesse d'impaction de la goutte et  $f$  la fréquence d'impaction).

La formation des gouttelettes produites dans le régime d'éclaboussure suit le processus suivant (figure 2) : quand la goutte touche la surface (a), un film liquide se répand (b), ensuite une couronne de liquide se crée au-dessus du film (c), le débit de liquide alimentant le film diminue ce qui amincit la couronne qui poursuit son expansion (d). Cet amincissement entraîne une instabilité dans la couronne qui se traduit par sa fragmentation en petites gouttes, appelées "gouttes secondaires" (e).

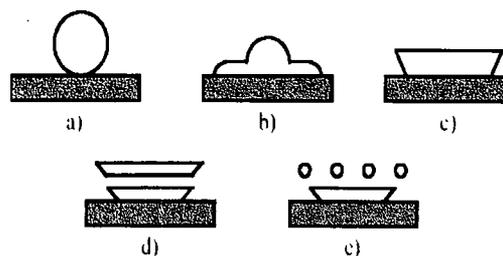


Figure 2. Représentation schématique de l'éclaboussure (Duplantier, 2001).

## Etudes sur la mise en suspension lors d'impaction d'une goutte sur une surface sèche

### Etudes théoriques

Dans le cas d'impaction sur une surface solide sèche, une approche théorique permet de prédire le seuil dépôt/éclaboussure en utilisant un nombre d'Ohnesorge limite ( $Oh_c$ ) qui est une fonction du nombre de Reynolds de la goutte, d'un facteur géométrique  $\beta_{max} = d_{max}/d_g$  (où  $d_{max}$  est le diamètre maximal que le film atteint) et de l'angle de contact  $\alpha$  (voir figure 1).

On peut déterminer la limite entre le régime de dépôt et d'éclaboussure (Duplantier, 2001) en fonction des nombres d'Ohnesorge et de Reynolds de la goutte impactante. Ainsi, si le nombre d'Ohnesorge de la goutte impactante est supérieur à la valeur déterminée par la relation suivante :

$$Oh_c = \sqrt{\frac{3(1 - \cos \alpha) \beta_{max}^2 - 12}{Re^2 - 4.5 \beta_{max}^4 Re}}$$

le phénomène d'éclaboussure se produit lors de l'impact.

Lorsque la couronne se crée, il y a formation de jets se fragmentant en gouttes par les instabilités de Rayleigh. En établissant les lois de conservation entre les jets et le film de la couronne, Wu (2003) a montré que le diamètre des jets est directement lié à la vitesse du liquide dans la couronne. En estimant cette vitesse et en utilisant la relation de rupture de jet sous les instabilités de Rayleigh ( $d_s = 1,889 d_{jet}$ ), il a pu déterminer une relation décrivant le diamètre le plus probable des gouttes secondaires ( $d_{s prob}$ ) :

$$\frac{d_{s prob}}{d_g} = 4,23 \left( \sqrt{9 + \frac{2 We (We + 12)}{Re}} + 3 \right) (We + 12)^{-1}$$

En utilisant une loi log-normale avec le principe de taux maximum de production d'entropie pour estimer la largeur de la courbe de distribution, Wu (2003) a également établi une relation permettant de décrire la loi d'occurrence d'une goutte secondaire de diamètre  $d_s$  :

$$g(x) = \frac{\sqrt{3}}{\sqrt{\pi} x} \exp \left( -3 \left( \ln x - \frac{1}{6} - \ln \frac{d_{s prob}}{d_g} \right)^2 \right) \text{ où } x = d_s/d_g$$

### Etudes expérimentales

Le tableau suivant représente la synthèse de nos recherches bibliographiques sur les études expérimentales d'impaction de gouttes sur des surfaces sèches.

Tableau 1. Synthèse des études expérimentales dans le cas d'impaction sur une surface sèche.

Auteurs	Seuil dépôt / éclaboussure	Gamme de validité
Stow et Hadfield (1981)	$Seuil(R_a) = Re_c^{0,31} We_c^{0,69} = We_c Oh_c^{-0,4}$	$0,05 < R_a < 12\mu m$ , goutte d'eau
Rein (1993)	$We_c = 7,910^{10} Oh^{2,8}$	pas d'indications
Cosali et al. (1997)	$K_L = We_c Oh_c^{-0,4} = 649 + \frac{3,76}{(2S_r)^{0,63}}$	$2 \cdot 10^{-5} < 2S_r < 10$ , établie à partir des mesures de Mundo et al. (1995) et de Stow et Hadfield (1981)
Range et Feuillebois (1998)	$We_c = a \log^b \left( \frac{d_g}{2R_a} \right)$	a et b : 2 cst expérimentales $0,01 < R_a < 41\mu m$ , $100 < We < 1100$

Ces études expérimentales ont permis d'établir des relations en fonction des nombres de Weber et d'Ohnesorge, pour déterminer le passage du régime de dépôt à celui de l'éclaboussure. La séparation entre ces deux régimes est caractérisée par une valeur critique qui est exprimée en fonction de ces nombres. En dessous de cette valeur, aucune éclaboussure n'aura lieu ; de ce fait, on n'attend pas de mise en suspension.

### Etudes sur la mise en suspension lors d'impaction de gouttes sur un film liquide

Le phénomène d'éclaboussure (*splashing*) sur une surface liquide a été étudié par différents auteurs mais la plupart de ces travaux traitent des « splash » appelés profonds ( $S_f \gg 1$ ), alors qu'il y a peu d'études sur l'éclaboussure avec un film liquide mince ( $S_f \ll 1$ ).

Le tableau suivant présente la synthèse de nos recherches bibliographiques sur les études expérimentales dans les cas d'impaction de trains de gouttes micrométriques (Mundo *et al.*, 1998 ; Samenfink *et al.*, 1999), et d'une goutte millimétrique sur un film liquide (Cosali *et al.*, 1997 et 2004).

Tableau 2 : Synthèse des études expérimentales dans le cas d'impaction sur une surface humide.

Auteurs	Seuil dépôt / éclaboussure	Diamètre (d) et nombre des gouttes secondaires (n)	Gamme de validité
Yarin et Weiss (1995)	$We_c = 18^2 d_g \left(\frac{\rho}{\sigma}\right)^{1/2} \left(\frac{\mu}{\rho}\right)^{1/4} f^{3/4}$	$d_s/d_g \sim 0,06$	$70 < d_g < 340 \mu\text{m}$ , $V < 30\text{m/s}$ et $R_a = 1$ et $16 \mu\text{m}$ , $f$ (de l'ordre de $10^4 \text{s}^{-1}$ ), $20 < h_{\text{film}} < 50 \mu\text{m}$
Cosali <i>et al.</i> (1997 et 2004)	$We_c Oh_c^{-0.4} = 2100 + 5880 S_f^{1.44}$	$\frac{d_s}{d_g} = q \left(\frac{V_g t}{d_g}\right)^m$	seuil : $2 \cdot 10^2 < We < 1,6 \cdot 10^3$ ; $2,2 \cdot 10^{-3} < Oh < 0,141$ ; $0,1 < S_f < 1,2$ ; $S_r = 5 \cdot 10^{-5}$ . $d_s$ : $Oh = 0,00019$ , $q$ et $m$ csts exp, $S_f = 0,29$ ; $0,67$ et $1,13$ )
Mundo <i>et al.</i> (1998)	$K = (We Oh^{-0.4})^{3/4.8}$ $K_{\text{seuil}} = 57,7$	$\frac{d_s}{d_g} = \text{Min}(8,72 \exp(-0,0281 K^{2,539}), 1)$ $\frac{n_s}{n_g} = 1,676 \cdot 10^{-5} K^{2,539}$	seuil : $60 < d_g < 150 \mu\text{m}$ , $12 < V_g < 18 \text{m/s}$ , $1 < \mu < 2,9 \text{mPa.s}$ , $22 < \sigma < 72 \text{mN/m}$ , $n_g$ et $n_s$ ( $57,7 < K < 180$ , $2S_f = S_f = 0,03$ )
Samenfink <i>et al.</i> (1999)	-	$\frac{d_s}{d_g} = 1 - 0,03454 S_{cd}^{0,175} \alpha_{id}^{0,1239} La^{0,265}$ $\frac{n_s}{n_g} = (0,0866 (S_{cd} - 1)^{0,3188} \alpha_{id}^{0,1223} S_f^{-0,9585}) \left(\frac{d_s}{d_g}\right)^{-3}$	$1 < S_{cd} < 5$ , $5000 < La < 20000$ , $0,3 < S_f < 3$ , $5^\circ < \alpha_{id}$ (angle d'impaction) $< 90^\circ$ $S_{cd} = \frac{1}{24} \text{Re} La^{-0,4189}$ $La = \frac{\rho \sigma d_g}{\mu^2}$

Les modèles semi-empiriques existant ont leurs limites puisqu'ils sont validés seulement dans certaines conditions.

Dans le cas de train de gouttes micrométriques ( $< 150 \mu\text{m}$ ), deux études très complètes déterminent la mise en suspension par des relations décrivant le  $K_{\text{MES}}$  et la granulométrie (Mundo *et al.*, 1998 et Samenfink *et al.*, 1999). Dans le cas d'impaction d'une goutte millimétrique, une seule étude a permis de déterminer le seuil dépôt/éclaboussure dans un certain domaine de validité (Cosali *et al.*, 1997). Cette étude n'a pas permis de déterminer l'aérosol produit puisque le système de mesure (visualisation) était limité en taille ( $> 50 \mu\text{m}$ ) et en résolution ( $> 0,2 \text{ms}$  entre 2 images). Un manque de connaissance a été clairement identifié sur la mise en suspension dans ce cas. Le but de notre étude sera donc de valider et/ou d'étendre ces relations (comme celle de Cosali *et al.*, 1997) dans le cadre de l'étude de la mise en suspension d'aérocontaminants.

### 3. Dispositifs expérimentaux et méthodes de mesure

Deux types différents d'expériences sont menés afin d'étudier la mise en suspension. Le premier consiste à mesurer la masse mise en suspension et la granulométrie de l'aérosol produit lors de l'impact du train de gouttes. Ces expériences sont réalisées dans une enceinte expérimentale de type boîte à gants. Le deuxième type consiste à analyser visuellement les phénomènes à l'aide d'une caméra rapide, comme le seuil dépôt/éclaboussure lors de l'impaction de gouttes.

#### Mise En Suspension par Impaction de Gouttes (MESIG)

L'enceinte utilisée pour réaliser les expériences de mise en suspension est une boîte à gants possédant les dimensions suivantes :  $0,86 \times 0,86 \times 0,76 \text{m}^3$ , soit un volume égal à  $0,562 \text{m}^3$ .

Les gouttes millimétriques sont créées à l'aide d'un pousse seringue et de capillaires de différentes tailles. Ce dispositif permet de réaliser un train de gouttes de 2 à 5 mm de diamètre et de fréquence inférieure à 4 gouttes/s. Afin de déterminer la masse mise en suspension, nous avons utilisé un traceur fluorescent (la fluorescéine sodée) mis en solution dans le liquide testé. Lors de la mise en

suspension des microgouttelettes, on collecte ce traceur sur un filtre THE (Très Haute Efficacité) en fibre de verre. Par analyse fluorimétrique, nous pouvons alors déterminer la masse mise en suspension.

Un préleveur à fort débit (400L/min) a été utilisé dans l'installation MESIG. Du fait de la très faible quantité mise en suspension à chaque impact de goutte, il a fallu prélever pendant le phénomène d'impaction et réaliser des expériences sur une durée suffisamment longue. Après la fin du train de gouttes, on prélève pendant 6 min 30s, ce qui permet de réaliser l'épuration de l'aérosol contenu dans le volume. Deux granulomètres optiques, l'Aerodynamic Particle Sizer et le Welas (série 2000), sont utilisés dans les expériences. Ces appareils sont utilisés en tant que compteurs de particules, permettant de mesurer en temps réel la concentration numérique de l'aérosol, sur différentes classes granulométriques, respectivement 0,5 à 20  $\mu\text{m}$  et 0,7 à 40  $\mu\text{m}$ .

### Le banc vidéo

Un banc vidéo permet de caractériser le seuil dépôt/splash lors de l'impaction de gouttes sur une surface sèche ou sur un film liquide. Il se compose d'une caméra rapide (5000 images/s), d'un banc de déplacement, d'un projecteur de 300 Watts, d'un écran diffusant et d'un ordinateur équipé d'un logiciel d'acquisition de vidéo. Le système de production de gouttes est le même que dans MESIG.

## 4. Résultats

Dans des expériences préliminaires, nous nous sommes fixés un diamètre de goutte égal à 3,87 mm ( $\pm 1\%$ ), une fréquence de gouttes égale à 0,4 gouttes/s avec une solution aqueuse de fluorescéine sodée de concentration 10 g/l. Nous avons fait varier uniquement la hauteur de chute de 10 à 80 cm et la hauteur de la flaqué liquide formée sur une surface en acier inoxydable.

Le diamètre des gouttes est calculé en comptant et en mesurant la masse d'un ensemble de gouttes. Nous validons ce calcul en utilisant les images produites par le banc vidéo (suivant la méthode de Stow et Hadfield, 1981), ainsi que par la relation théorique d'une goutte tombant d'un capillaire par la gravité.

La vitesse des gouttes à l'impact est mesurée avec le banc vidéo et est en bon accord avec la relation théorique prenant en compte un coefficient de frottement en fonction de  $Re$ .

Les premières expériences ont clairement montré l'influence de la vitesse des gouttes impactantes sur la masse mise en suspension. Ces résultats sont présentés sur la figure 3.

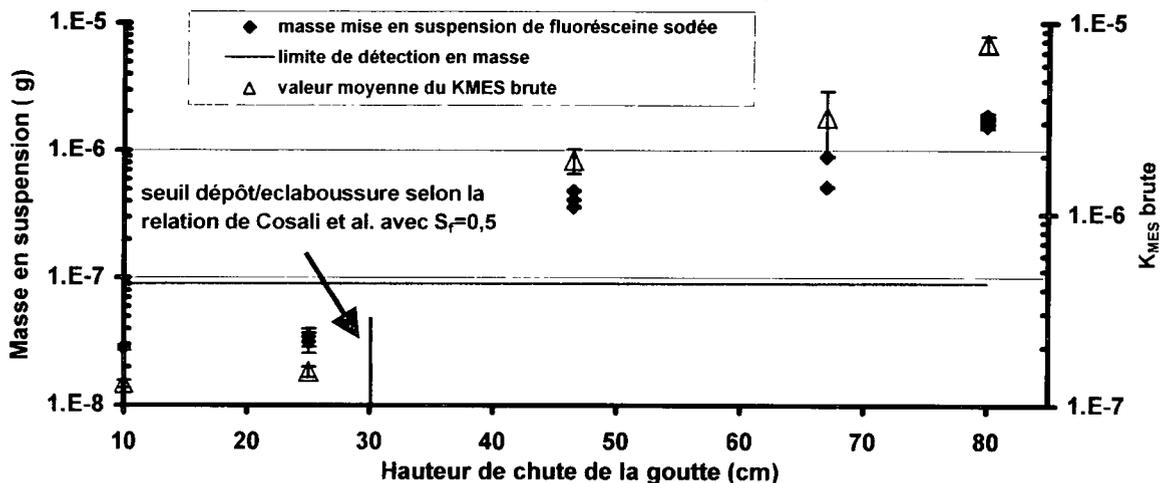


Figure 3. Evolution du  $K_{MES}$  brute en fonction de la hauteur de chute pour un train de gouttes de diamètre 3,87 mm et de fréquence 0,4 goutte/s pendant 30 min.

Le  $K_{MES}$  brute, dans ce cas, augmente en fonction de la hauteur de chute des gouttes à partir d'une hauteur seuil environ égale à 30 cm de  $1,9 \times 10^{-6}$  à 46 cm à  $7,75 \times 10^{-6}$  à 80 cm. Ces premières expériences ont également permis d'apprécier l'utilisation de la relation de Cosali *et al.* (1997) pour expliquer nos résultats. En effet, le seuil calculé par cette relation en utilisant la hauteur moyenne du film mesuré pour chaque expérience, est en accord avec les mesures de masse mise en suspension obtenues à différentes hauteurs de chute.

Sur la figure 4 nous représentons le seuil dépôt/éclaboussure déterminé par la corrélation de Cosali *et al.* (1997).

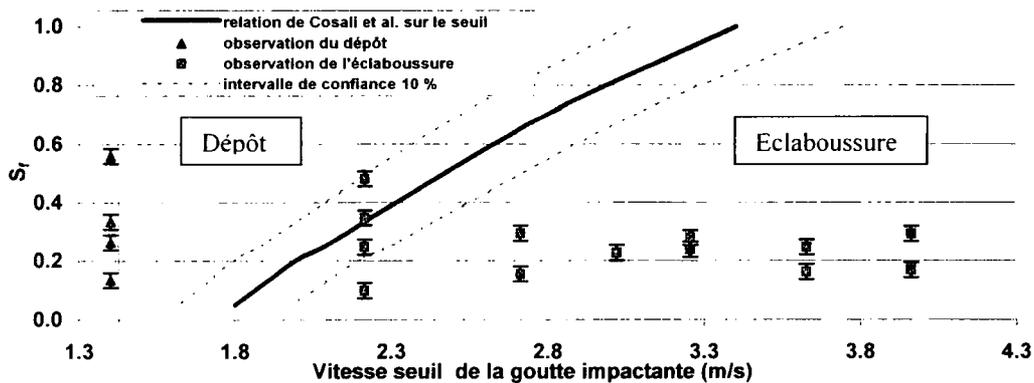


Figure 4. Application de la relation de Cosali et al. (1997) comparée aux résultats du banc vidéo pour une goutte de solution eau+uracine ( $C=10\text{g/l}$ ) de  $d_g = 3.87\text{ mm}$ .

Ce seuil est représenté avec un intervalle de confiance de 10% préconisé par les auteurs, ce qui revient à définir une zone de transition dépôt/éclaboussure. Nous remarquons que nos points expérimentaux obtenus à partir de l'analyse des vidéos sont en bon accord avec cette relation.

## 5. Conclusions

Il a été trouvé deux études de référence (Mundo *et al.*, 1998 et Samenfink *et al.*, 1999) ayant déterminé de façon empirique le  $K_{MES}$  et le diamètre des gouttes produites lors de l'impaction de microgouttelettes de fréquence élevée sur des surfaces planes. Dans la littérature, il existe des études théoriques traitant la granulométrie des gouttes secondaires produites lors du phénomène d'impaction. A notre connaissance, aucune étude ne traite de la mise en suspension lors d'impaction de gouttelettes millimétriques. En effet, les études décrivent essentiellement le seuil dépôt/éclaboussure avec des techniques de visualisation ne permettant pas de mesurer les particules inférieures à  $60\text{ }\mu\text{m}$ . Elles ont néanmoins déterminé le diamètre le plus probable de gouttes secondaires et donné une loi de probabilité.

Il a été réalisé deux installations expérimentales (un banc vidéo et MESIG) permettant d'étudier de façon différente le seuil dépôt/éclaboussure dans le cas de la chute de gouttes sur une surface. Des premières expériences ont permis de mettre en évidence l'influence de la vitesse de chute des gouttes et d'autres paramètres comme le nombre adimensionnel lié au film liquide ( $S_f$ ). Des premiers résultats ont permis d'apprécier l'utilisation d'une relation décrivant le seuil, lors d'impaction sur film liquide d'un train de gouttes millimétriques, dans le cas de la mise en suspension. Néanmoins, les influences observées doivent être confirmées par des expériences complémentaires. Il reste encore à étudier différents paramètres (le type de surface, différentes caractéristiques de liquide : viscosité, masse volumique et tension de surface, etc.)

## Références bibliographiques

- Cosali, GE., Coghe, A. et Marengo, M. (1997) The impact of a single drop on a wetted solid surface. *Exp. Fluids*, **22**, 463-473.
- Cosali, GE., Marengo, M., Coghe, A. et Zhdanov, S. (2004) The role of time in single drop splash on thin film. *Exp. Fluids*, **36**, 888-900.
- Duplantier, S. (2001) Analyse des conditions de dispersion d'un gaz liquéfié en champ proche en présence d'obstacles. *Rapport INERIS*, DRA-01.
- Mundo, C., Sommerfeld, M. et Tropea, C. (1998) On the modeling of liquid sprays impinging on surfaces. *Atomization and Sprays*, **8**, 625-652.
- Range, K. et Feuillebois, F. (1998) Influence of surface roughness on liquid drop impact. *J. Colloid. Interf. Sci.*, **203**, 16-30.
- Rein, M. (1993) Phenomena of liquid drop impact on solid and liquid surfaces. *Fluid. Dyn. Res.*, **12**, 61-93.
- Samenfink W, Elsaber A, Dullenkopf K et Wittig S. (1999) Droplet interaction with shear-driven liquid film: analysis of deposition and secondary droplet characteristics. *Int J Heat Fluid Flow*, **20**, 462-9.
- Stow, CD. et Hadfield, MG. (1981) An experimental investigation of fluid flow resulting from the impact of a water drop with an unyielding dry surface. *Proc R Soc Lond. A.*, **373**, 419-441.
- Yarin, AL. et Weiss, DA. (1995) Impact of drops on solid surfaces: selfsimilar capillary waves, and splashing as a new type of cinematic discontinuity. *J. Fluid. Mech.*, **283**, 141-173.
- Wu, Z.N. (2003) Prediction of the size distribution of secondary ejected droplets by crown of droplets impinging on a solid wall. *Prob Eng Mech.*, **18**, 241-249.

# CARACTERISATION DE L'AEROSOL EMIS LORS D'UNE DECOUPE LASER

S. Fauvel\*(1), G. Pilot (1), G. De Dinechin (2) X. Gosse (3) et P. Arnaud (4)

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

(2) Groupe d'Intérêt Public Groupement d'Etudes et de Recherche pour les Applications Industrielles  
des Lasers de Puissance, Bât 107, 16 bis, avenue prieur de la côte d'Or, 94114 Arcueil Cedex.  
& Commissariat à l'Energie Atomique/DRT/LITEN, Bât 611, 91191 Gif sur Yvette Cedex

(3) Direction de l'Assainissement et des Projets, Maîtrise d'Oeuvre Projets, COGEMA Etablissement  
de Marcoule, BP 76170, 30206 Bagnols sur Cèze Cedex

(4) Ligne de Produit Démantèlement, SGN, ZA de l'Euze, BP 144, 30204 Bagnols sur Cèze

## TITLE

Characterisation of aerosols produced by laser cutting.

## ABSTRACT

Powerful lasers represent a promising alternative solution to traditional cutting processes used in dismantling nuclear equipments. The use of optical fibers has an unquestionable advantage when dealing with airtight workshops. A study funded by COGEMA Marcoule was undertaken by IRSN/SERAC in collaboration with GIP/GERAILP in order to characterise the aerosols emitted by the cutting of evaporators' elements with a 4 kW continuous wave Nd:YAG laser. For this study, laser cutting has been carried out in a tight room of 35 m<sup>3</sup> connected to a particle sampling pipe. Isokinetic samplers allowed the measurement of the aerosol concentration. A diffusional and inertial spectrometer (SDI 2001) — an Andersen impinger coupled to a diffusion battery — provided the size distribution. An electrostatic filter used upstream a HEPA filter, itself placed before the extractor fan, collected the majority of the emitted aerosol. Its efficiency was measured and controlled throughout the experiments. The results show the influence of the cutting conditions on the characteristics of the aerosol, and allow a comparison with other cutting tools.

## RESUME

Dans le cadre des études effectuées sur les outils de découpe utilisables sur les chantiers de démantèlement d'équipements nucléaires, les lasers de puissance, avec transport de la puissance laser par fibre optique, apparaissent comme une solution alternative crédible aux procédés classiques (torche à plasma, scie, disqueuse, etc.). L'utilisation des fibres optiques présente un avantage certain dans le cas de ces chantiers confinés. Une étude financée par COGEMA Marcoule, sous mandat du Commissariat à l'Energie Atomique, a été menée par l'IRSN/SERAC en collaboration avec le Groupement d'Etudes et de Recherche pour les Applications Industrielles des Lasers de Puissance, dans le but de caractériser les aérosols émis lors de la découpe d'éléments d'évaporateurs par un laser Nd:YAG de 4 kW fonctionnant en continu. Pour cette étude, la découpe laser est effectuée dans une cellule étanche de 35 m<sup>3</sup> reliée à une veine de prélèvement de l'aérosol émis lors de cette découpe. Des sondes de prélèvement isocinétique permettent la mesure de la concentration en particules, la distribution granulométrique étant caractérisée à l'aide d'un spectromètre diffusif et inertiel, impacteur Andersen couplé à une batterie de diffusion (SDI 2001). Un filtre électrostatique utilisé comme préfiltre d'un filtre à très haute efficacité, lui-même placé avant le ventilateur d'extraction, recueille la majorité de l'aérosol émis. Son efficacité est mesurée et suivie au cours des essais. Les résultats présentés montrent l'influence des conditions de découpe sur les caractéristiques de l'aérosol, et permettent une comparaison avec celui qui est émis lors des découpes avec d'autres outils.

## INTRODUCTION

Lorsqu'un équipement nucléaire arrive en fin de vie, il est vidé de ses matières nucléaires puis démantelé. Le démantèlement consiste à découper l'installation morceau par morceau, afin d'effectuer un tri des déchets selon leur niveau de contamination ou d'activation et de les évacuer dans la filière correspondante, pour remettre l'infrastructure et/ou les sols à un niveau d'activité compatible avec une réutilisation éventuelle ou un retour dans le domaine public. Cet assainissement, bénéfique en termes de sûreté et de gestion des déchets, s'accompagne localement, du fait de la découpe, d'une production de particules potentiellement dangereuses pour la santé des opérateurs, et dont il convient d'éviter le rejet dans l'environnement. Les études effectuées sur les outils de découpe utilisables sur les chantiers de démantèlement d'équipements nucléaires ont pour but de tester les performances de ces outils dans les configurations propres à chaque installation, et de caractériser les émissions particulières induites par ces découpes, afin de prendre les mesures de protection appropriées, tant pour les opérateurs que pour l'environnement.

Les lasers de puissance, apparaissent de plus en plus comme une solution alternative crédible aux procédés classiques de découpe tels que la torche à plasma, la scie ou la disqueuse. Le transport de la puissance laser par fibre optique, permettant la mise en œuvre d'une découpe avec télé opérateurs, présente un avantage certain pour la protection des travailleurs dans le cas de ces chantiers confinés. Dans le but de démanteler les évaporateurs présents sur le site de Marcoule, COGEMA a donc suscité et financé une démarche visant à qualifier un procédé de découpe par laser en télé opération. Dans ce cadre, une étude a été menée par l'IRSN/SERAC en collaboration avec le Groupement d'Etudes et de Recherche pour les Applications Industrielles des Lasers de Puissance, basé à Arcueil, afin de caractériser les aérosols émis lors de la découpe d'éléments d'évaporateurs par un laser Nd:YAG de 4 kW fonctionnant en continu, avec gaz d'assistance. Ces aérosols sont formés par vaporisation du métal suivie d'une condensation. Une autre partie du métal est simplement fondue, et sous la pression du gaz d'assistance, est éjectée de la pièce pour former des scories qui sédimentent, ou reste attachée à la pièce au bord de la saignée.

Une installation expérimentale a été construite à Arcueil, permettant de déterminer l'influence des conditions de découpe sur la concentration et la granulométrie des aérosols émis. Cet article présente les résultats de la campagne d'essais réalisée.

## DESCRIPTION DE L'INSTALLATION

L'installation est constituée d'une cellule de découpe et d'un circuit d'extraction permettant le prélèvement et la caractérisation des aérosols entraînés dans cette veine. La cellule est un volume étanche d'environ 35 m<sup>3</sup>, composé de panneaux double peau en acier galvanisé avec une âme rigide en polyuréthane. Les dimensions intérieures sont les suivantes : L = 3,3 m ; l = 3,0 m ; h = 3,6 m, soit une surface interne des parois d'environ 45 m<sup>2</sup>. Elle est équipée d'une entrée d'air avec un filtre de Très Haute Efficacité (THE) assurant que l'air introduit dans l'installation est exempt de particules, et d'une sortie vers le circuit d'extraction. A l'intérieur se trouve le banc de découpe, représenté figure n°1.

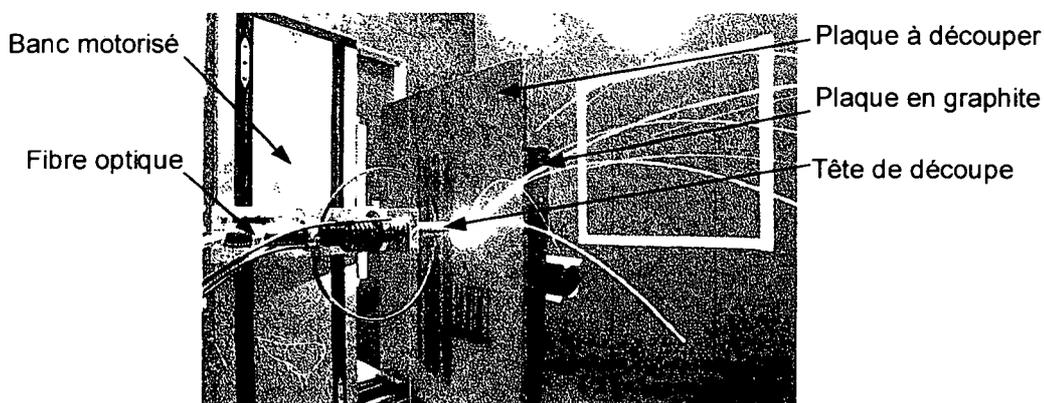


Figure n°1 - Vue de la découpe laser.

Le banc de découpe, motorisé suivant un axe vertical, est piloté depuis l'extérieur de la cellule par une console de commande et la découpe est filmée et visualisée sur un moniteur. Le matériau à découper est fixe et l'outil de découpe se déplace de bas en haut. Pour protéger la paroi de la cellule, une plaque en graphite est positionnée à 150 mm derrière la plaque à découper. Sous le banc de mesure, un bac de récupération des scories sédimentées a été installé afin de déterminer leur masse.

Les pièces représentatives des éléments d'évaporateurs, en acier inoxydable austénitique Uranus 65, à forte proportion de chrome et de nickel, sont de 2 types : une paroi double épaisseur (12,8 mm + 3,5 mm), et une plaque d'épaisseur 13,8 mm. Deux autres types d'acier ont également été découpés pour permettre la comparaison avec les autres outils de découpe.

Le laser de puissance utilisé est un Nd:YAG à barreaux pompés par lampes flashes (HL 4006 D) fabriqué par la Société TRUMPF. La puissance restituée est de 4 kW, transportée par une fibre optique de 600  $\mu\text{m}$  sur une longueur de 50 m jusqu'à la tête de découpe (une buse de 3 mm de diamètre), positionnée sur le banc de découpe. Le débit d'air d'assistance à 4 bar est de 120 l/min, la distance entre la buse et la plaque à découper variant entre 15 et 50 mm.

Le circuit d'extraction, représenté figure n°2, est constitué d'une veine en acier inoxydable de 125 mm de diamètre intérieur. Il comprend successivement : un spectromètre SDI 2001 pour caractériser la granulométrie des aérosols prélevés, des prélèvements isocinétiques pour la mesure de leur concentration, un filtre électrostatique utilisé comme préfiltre d'un filtre THE, un organe déprimogène régulateur du débit de ventilation assuré par un ventilateur rejetant l'air à l'extérieur.

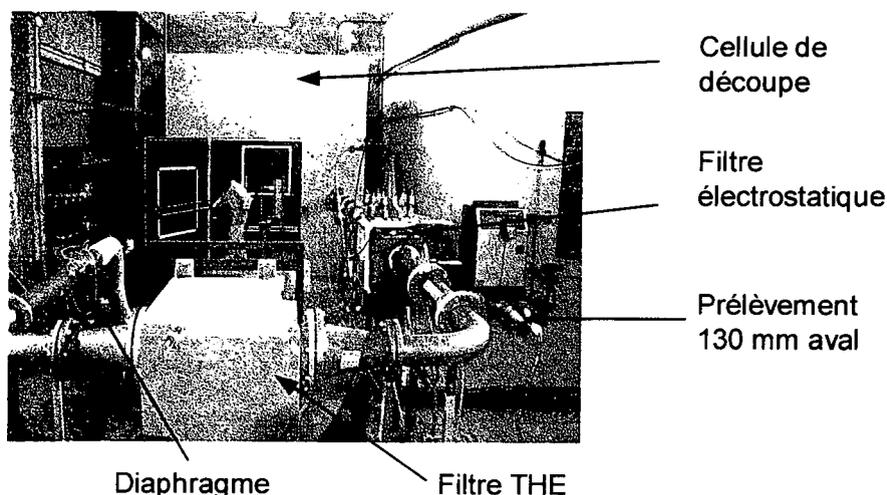


Figure n°2 - Vue de la cellule de découpe et du circuit d'extraction associé.

Le SDI 2001 (Boulaud et al., 1988), spectromètre inertiel et diffusionnel, est l'association d'un impacteur (collecte par précipitation inertielle) et d'une batterie de diffusion (collecte par diffusion brownienne). La précipitation inertielle est réalisée par un impacteur en cascade Andersen Mark II dont les diamètres aérodynamiques de coupure, déterminés expérimentalement, s'échelonnent entre 0,35  $\mu\text{m}$  et 7,5  $\mu\text{m}$ . La fraction de l'aérosol non impactée sur les filtres recouvrant les plaques de collecte, (soit la moitié des particules de 0,35  $\mu\text{m}$  de diamètre, une fraction croissante des particules de 0,35 à 0,2  $\mu\text{m}$  et toutes celles inférieures à 0,2  $\mu\text{m}$ ), est recueillie dans la batterie de diffusion. Cette batterie est constituée de 6 tubes de 20 cm de longueur et de 4 cm de diamètre, disposés en parallèle, dans lesquels sont placés des lits de billes de 1 mm à 5 mm de diamètre. Le sixième tube est vide et sert de référence. En aval de chaque canal de diffusion, 6 filtres THE permettent la collecte des particules qui ont réussi à traverser la partie impaction et la batterie de diffusion. Le débit d'air traversant l'appareil est de 28 l/min et cet air est prélevé de manière isocinétique dans le circuit d'extraction. Les 14 filtres de collecte sont pesés, et la distribution massique est obtenue avec l'aide de l'algorithme de déconvolution EVE (Paatero, 1990).

La mesure de la concentration de l'aérosol dans le conduit de ventilation est réalisée par quatre prélèvements isocinétiques. Deux sont placés en amont du filtre électrostatique et deux en aval, ce qui permet ainsi de déterminer son efficacité. Sur chaque prélèvement, le débit de gaz filtré est contrôlé par un rotamètre à bille et le volume total est mesuré par un compteur volumétrique étalonné.

Ce volume est ensuite ramené aux conditions de pression et de température standards, afin de permettre la comparaison entre tous les essais.

Le débit général de la ventilation est mesuré par la chute de pression aux bornes d'un orifice calibré préétalonné et qui est situé entre le filtre THE et le ventilateur. Pour une perte de charge maintenue constante en bridant plus ou moins le ventilateur, le débit de ventilation au niveau de ce diaphragme est constant.

Le filtre électrostatique, de marque AAF ELOSTA (1250 m<sup>3</sup>/h), joue le rôle de préfiltre. Le premier élément du filtre électrostatique utilisé est un maillage en métal déployé prévu pour arrêter les plus gros aérosols. Le deuxième élément est un ioniseur dans lequel les fils de tungstène, soumis à une tension d'environ 11 kV, engendrent un champ électrique et permettent de produire des ions. En traversant ce champ, les particules contenues dans l'air sont chargées électriquement et vont se déposer sur le troisième élément, le collecteur, dans lequel des plaques en aluminium, disposées parallèlement, sont alternativement chargées à 6 kV et mises à la masse.

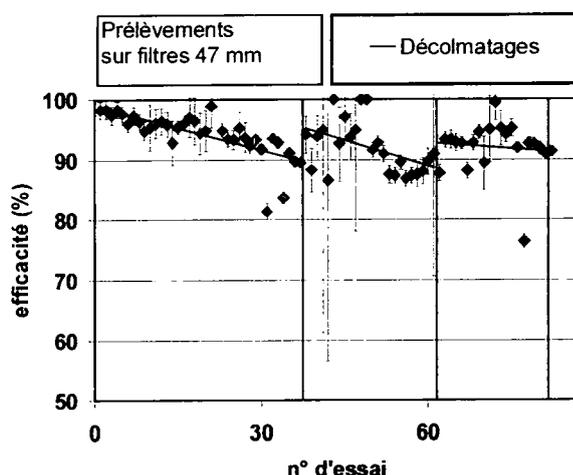


Figure n°3 - Evolution de l'efficacité du filtre électrostatique au cours des 81 essais. Les points expérimentaux sont présentés avec leur intervalle de confiance à 95 %.

Un autre maillage en métal déployé se situe en aval du collecteur pour stopper d'éventuelles remises en suspension. Au fur et à mesure des découpes, des aérosols sont captés par le filtre électrostatique et font baisser son efficacité de filtration. Pour nettoyer le filtre électrostatique et lui restituer son efficacité d'origine, un procédé de décolmatage acoustique sans rupture de confinement est utilisé. La figure n°3 représente la variation de l'efficacité du filtre électrostatique au cours de l'ensemble des essais. Le préfiltre électrostatique est suivi d'un filtre THE 1 000 m<sup>3</sup>/h de marque CAMFIL référence 1505. Ce filtre a une efficacité supérieure à 99,95 % pour des aérosols dont le diamètre médian massique est de 0,15 µm.

## METHODE EXPERIMENTALE

La cellule de découpe possède un temps caractéristique de mise en équilibre qui est le rapport de son volume au débit de la ventilation. Lorsqu'un polluant gazeux inerte est injecté à l'intérieur de la cellule et que l'on stoppe cette production, il faut 3 renouvellements pour atteindre 95 % de l'état du régime initial. L'existence de cette constante de temps a permis de définir une méthode pour la mesure des aérosols produits. La ventilation, les découpes et les prélèvements sont démarrés en même temps et les prélèvements sont maintenus après l'arrêt de la découpe pendant le temps nécessaire à la récupération quasi-complète de tous les aérosols produits.

Pendant les essais, la longueur et la largeur de saignée, la masse enlevée à la pièce découpée ainsi que les dépôts sur les parois de la cellule sont également mesurés. Toutes les grandeurs mesurées permettent de calculer : la vitesse moyenne de découpe, la largeur moyenne de saignée théorique, la masse supposée des scories attachées, la masse totale des dépôts sur les parois de la cellule, la masse des aérosols produits par la découpe et entraînés dans le circuit d'extraction, l'efficacité du préfiltre, le spectre granulométrique en masse des particules dans le circuit d'extraction.

## RESULTATS ET DISCUSSION

Les paramètres dont l'influence est étudiée sont les suivants : vitesse de découpe, distance pièce-buse, éloignement de la plaque de graphite, nature et pression du gaz d'assistance, puissance du laser, débit de ventilation, nature et la position de la plaque. Chaque essai a été réalisé trois fois. Un test de khi deux, appliqué sur chaque série de trois essais, a montré l'égalité des mesures de concentration massique d'aérosols entraînés, (pour un niveau de probabilité choisi de 95 %), pour 93% des essais. L'ensemble de ces essais a permis de mettre en évidence plusieurs points.

Les découpes ont été perforantes sur toute la longueur concernée hormis lors des essais dans lesquels la pression de l'air a été abaissée à 2 bar, cette pression n'étant pas suffisante pour évacuer la totalité du métal en fusion. Si l'on s'intéresse à la masse totale collectée, les scories sédimentées en représentent la majorité, entre 93 et 99 % ; les dépôts sur les parois sont faibles, entre 0,01 et 0,25 % et les aérosols entraînés en représentent entre 0,8 et 7,5 %. L'estimation des scories attachées est très variable suivant les configurations. Les valeurs moyennes de largeur de saignée varient de 2 mm à 7 mm. La masse enlevée à la pièce varie en fonction de la vitesse de découpe, de la distance pièce-buse, de la nature et de la pression du gaz d'assistance, de la puissance du laser, de la nature et de la position de la plaque mais ne varie pas avec le débit de ventilation. Elle n'est pas corrélée avec la masse d'aérosols entraînés dans le circuit.

Pour nos conditions d'essais, le filtre électrostatique a un rendement de filtration supérieur à 95 % lorsqu'il est propre et le décolmatage acoustique s'est montré performant pour recouvrer le rendement d'origine lorsque celui-ci était en baisse.

Les essais de comparaison de découpes avec d'autres outils étudiés antérieurement (scie alternative, torche plasma 50 A, torche plasma 200 A, tronçonneuse, laser 1 kW sans gaz d'assistance, arc-air et scie à arc) (Bernard et al., 1998 ; Pilot et al., 1999), réalisés avec une épaisseur de plaque de 10 mm, montrent que le laser Nd :YAG 4 kW continu produit moins d'aérosols que les autres outils, la scie alternative exceptée (figure n°4).

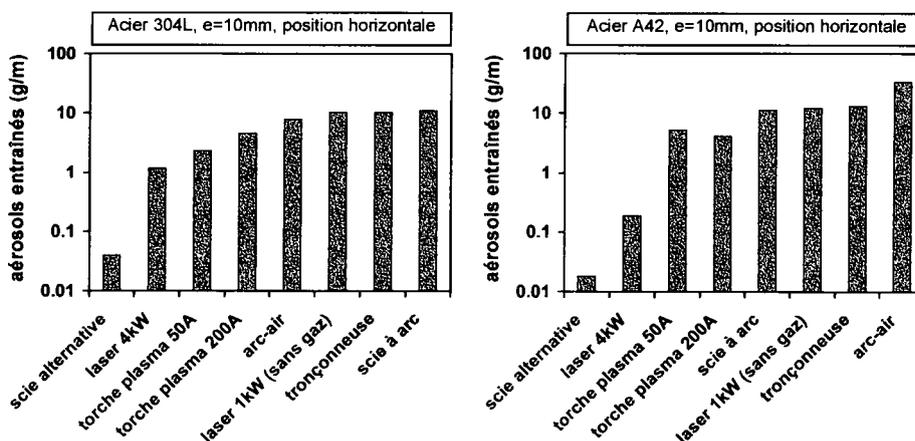


Figure n°4 - Comparaison pour différents outils de découpe de la quantité d'aérosols entraînés pour deux plaques d'acier inoxydable 304 L et d'acier doux A 42.

### Masse linéique d'aérosol entraîné

Les paramètres influant la masse d'aérosol entraîné par unité de longueur découpée sont : la vitesse de découpe, la nature du gaz, la puissance du laser (testée uniquement avec la plaque) et, très légèrement, la distance plaque-graphite (testée uniquement avec la paroi), comme on peut le voir figure n°5. On constate que la masse d'aérosol diminue lorsque la vitesse de découpe augmente : la vaporisation du métal est donc corrélée avec la puissance reçue. Ceci est confirmé par le fait que la masse d'aérosol croît avec la puissance du laser. Celle-ci doit être suffisante pour découper entièrement la pièce.

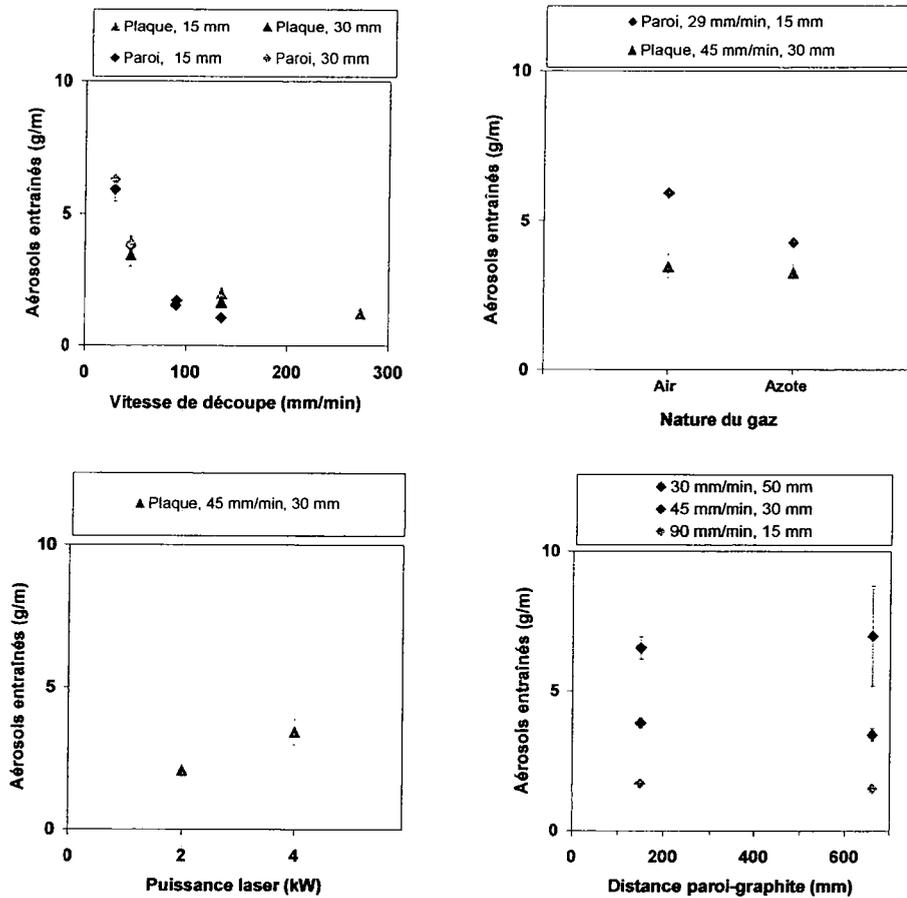


Figure n°5 - Influence de la vitesse de découpe, de la nature du gaz, de la puissance laser et de la distance pièce-graphite sur la masse des aérosols entraînés dans la gaine d'extraction. Résultats présentés avec leur intervalle de confiance à 95%.

Par contre, la largeur de saignée ne varie pas en fonction de la vitesse de découpe, cette largeur étant liée au diamètre de la tache focale, comme le confirme le fait que la largeur de saignée augmente avec la distance pièce-buse. La masse d'aérosol diminue lorsqu'on utilise de l'azote au lieu de l'air comme gaz d'assistance. Le fait d'éloigner la plaque de graphite de la pièce à découper diminue la masse d'aérosol pour une distance pièce-buse inférieure ou égale à 30 mm, ce qui semble indiquer une faible production d'aérosol à partir du graphite. En revanche, la distance pièce-buse, la pression du gaz d'assistance et le débit de ventilation n'influencent pas la masse linéique d'aérosol entraîné dans la veine. La largeur de saignée dépendant essentiellement de la distance pièce-buse, on constate que pour une vitesse de découpe donnée, la masse d'aérosols entraînés ne varie pas avec cette largeur de saignée. Ceci confirme le fait que la production d'aérosols est fonction de la puissance reçue.

### Distributions granulométriques

Les distributions granulométriques des aérosols, mesurées dans la gaine d'extraction à l'aide du SDI 2001, sont multimodales et se répartissent très souvent suivant 3 modes : en-dessous de  $0,1 \mu\text{m}$ , vers  $0,4 - 0,5 \mu\text{m}$  et vers  $4 \mu\text{m}$ . Le mode prépondérant est celui situé vers  $0,45 \mu\text{m}$ . Bien que les spectres obtenus pour les différentes configurations étudiées présentent des variations (un exemple en est donné par la figure n°6 qui montre les spectres obtenus pour les trois vitesses de découpe), on n'observe pas d'influence significative des paramètres de découpe sur la granulométrie.

Ainsi, une analyse simplifiée des masses collectées, en considérant en première approximation la batterie de diffusion comme un ensemble collectant uniquement les particules de taille inférieure à  $0,2 \mu\text{m}$ , conduit aux résultats suivants :

- 85% à 95% des particules sont de taille inférieure à  $1 \mu\text{m}$ , si on regarde les moyennes des séries de trois essais, 80% à 98% si on prend en compte tous les essais,

- 70% à 90 % des particules sont plus petites que 0,6  $\mu\text{m}$  (70% à 95% sur tous les essais),
- 60% à 76 % des particules sont de taille inférieure à 0,35  $\mu\text{m}$  en moyenne, à l'exception notable de deux séries d'essais, dont 45 % pour l'essai à faible débit de ventilation.

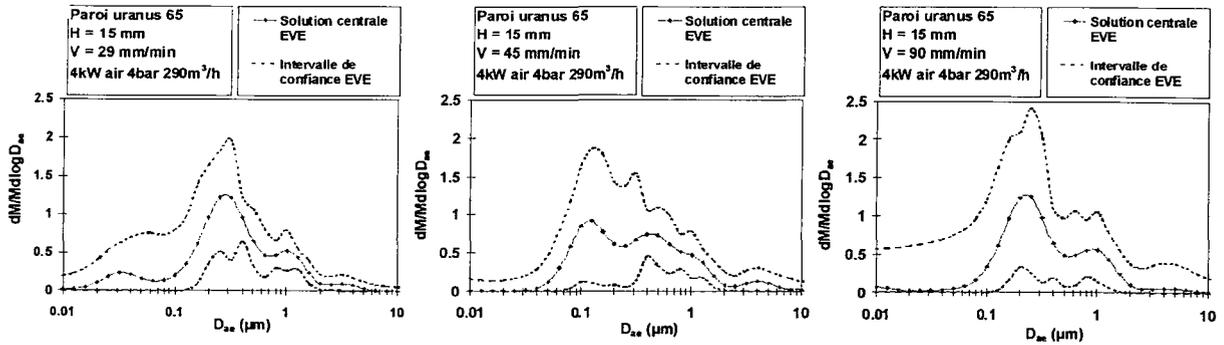


Figure n°6 - Influence de la vitesse de découpe sur la distribution granulométrique, obtenue avec le SDI 2001, des aérosols entraînés dans la gaine d'extraction.

Le tableau n°1 présente les données (minimum, maximum, moyenne et écart-type), relatives aux fractions massiques recueillies sur les huit étages de l'impacteur et dans la batterie de diffusion, pour l'ensemble des séries d'essais réalisés.

Tableau n°1 : Fractions massiques recueillies sur les étages de l'impacteur et dans la batterie de diffusion, pour l'ensemble des essais réalisés.

$D_{50}(\mu\text{m})$	7,5	5,8	4,5	3,1	1,75	1,0	0,6	0,35	<0,2
Moyenne	0.6%	0.7%	1.2%	3.0%	4.1%	9.0%	16.8%	24.0%	40.5%
Ecart-type	0.8%	1.0%	0.8%	1.4%	1.6%	2.5%	3.7%	4.5%	10.4%
Minimum	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	0.0%	3.5%	1.3%	13.7%	11.6%
Maximum	3.4%	4.3%	3.4%	6.9%	6.8%	16.1%	25.5%	32.9%	59.0%

A partir de la moyenne des distributions cumulées sur les huit étages de l'impacteur, on peut tracer la droite de Henry relative à l'ensemble des essais, représentée figure n°7. La distribution granulométrique moyenne est centrée sur 0,4  $\mu\text{m}$ , l'écart type géométrique étant égal à 3,3.

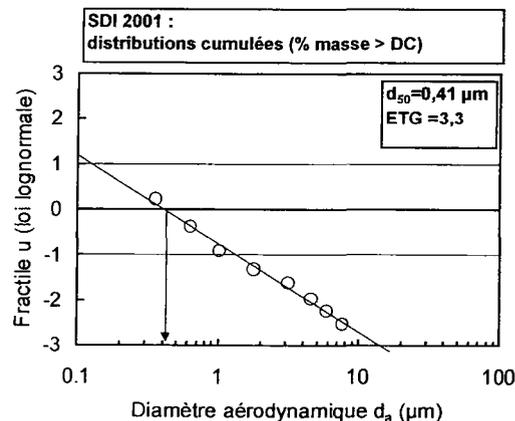


Figure n°7 - SDI 2001 — Distributions cumulées en masse (% > Diamètre de coupe). Fractile de u en fonction du diamètre aérodynamique (résultats des moyennes de toutes les séries d'essais).

## CONCLUSION IET PERSPECTIVES

Les résultats de cette étude ont permis de quantifier et de caractériser les émissions secondaires, (aérosols, scories et dépôts sur les parois), produites par la découpe, à l'aide d'un laser Nd :YAG continu (4 kW), de pièces représentatives d'éléments d'évaporateurs en acier Uranus 65, dans différentes configurations, de qualifier les performances d'un préfiltre électrostatique, et de comparer cet outil aux autres outils testés dans les mêmes conditions d'environnement.

Le laser Nd:YAG 4 kW continu enlève moins de masse que tous les autres outils, et produit également moins d'aérosols que ceux-ci, mis à part la scie alternative. La comparaison qui a été faite avec une épaisseur de plaque de 10 mm pourrait être élargie ultérieurement aux autres épaisseurs déjà testées pour les autres outils.

La masse d'aérosols entraînés, qui peut représenter entre 1 et 8 % de la masse totale collectée, est fonction de la puissance reçue. Elle diminue donc avec la puissance du laser et l'augmentation de la vitesse de découpe. Elle diminue aussi si le gaz d'assistance est de l'azote, et est légèrement influencée par la position de la plaque de graphite située derrière la pièce à découper. Elle est fortement dépendante de la nature de l'acier (acier doux, acier inoxyuable). Elle est indépendante de la distance pièce-buse, de la pression du gaz d'assistance et du débit de ventilation, de la position de la plaque (horizontale ou verticale) et ne varie pas avec la largeur de saignée.

Les distributions granulométriques des aérosols, mesurées dans la gaine d'extraction à l'aide du SDI 2001, sont multimodales, en dessous de 0,1  $\mu\text{m}$ , vers 0,4 – 0,5  $\mu\text{m}$  et vers 4  $\mu\text{m}$ , la distribution moyenne étant centrée sur 0,4  $\mu\text{m}$ . 90 % des particules formées sont submicroniques. Les configurations de découpe étudiées ont peu d'influence sur cette granulométrie.

Le filtre électrostatique a un rendement de filtration qui est supérieur à 95 % dans les conditions rencontrées, et le décolmatage acoustique permet de recouvrer le rendement d'origine lorsque celui-ci décroît.

## RÉFÉRENCES

Bernard, J., Pilot, G., Grandjean, J.P. (1998) Evaluation of various cutting techniques suitable for the dismantling of nuclear components. Rapport EUR 17919.

Boulaud, D., Diouri, M. (1988) A new inertial and diffusional device (SDI 2000) *J. Aerosol Sci.*, 19, pp 927-930.

Paatero, P., (1990). The Extreme Value Estimation deconvolution method with application to aerosol research, University of Helsinki, *Report series in Physics*, HU-P-250.

Pilot, G., Alfille, J.P., Grandjean, J.P (1999) Remote cutting of steel plates by a pulsed laser without assistant gas. *Euradwaste 1999. "Radioactive waste management strategies and issues" Fifth European Commission Conference on Radioactive Waste Management and Disposal and Decommissioning. Luxembourg, 15 -18 november 1999.* Rapport EUR 19143, pp 509-512.

# ETUDE EXPERIMENTALE ET NUMERIQUE D'UNE SONDE DE PRELEVEMENT ISOCINETIQUE EN ECOULEMENT DIPHASIQUE DENSE

R. Friemel, G. Lavergne

Office National d'Etudes et Recherches Aéronautiques.  
Département des Modèles pour l'Aérodynamique et l'Energétique.  
Centre de Toulouse, BP 4025, 31055 Toulouse Cedex 4.

friemel@free.fr

## TITLE

Experimental and numerical study of an isokinetic sampler in a dense two phase flow.

## ABSTRACT

In order to understand the isokinetic sampling of two phase combustion products of solid rocket motors, we study the effect of high particle concentration on the aspiration efficiency of a sampler. Our experimental facility produces a dense two phase flow made of air and powder (mass ratio between 0,1 and 1). A numerical model describes the local phenomenon at the entrance of the sampler. The results show that in a super-isokinetic configuration, the particles which have bounced on the front edge of the sampler are collected and increase the measured concentration. This effect is lowered by the increase of particle concentration, because of two phase couplings that reduce the ability of particles to follow the fluid: momentum transfer between particles and the fluid, inter-particle collisions, wake effect between neighbouring particles..

## RESUME

Pour comprendre les mécanismes du prélèvement isocinétique des produits de combustion (diphases) des moteurs spatiaux à propergol solide, nous étudions l'effet de la forte concentration des particules sur l'efficacité d'aspiration d'une sonde. Le banc expérimental produit des rafales brèves d'un mélange dense d'air et de poudre (rapport massique entre 0,1 et 1), échantillonné par une sonde de test et une sonde de référence parfaitement isocinétique. En complément, un modèle numérique de l'entrée de la sonde permet de discerner les phénomènes locaux. Il apparaît qu'en configuration super-isocinétique, les particules ayant rebondi sur le bord d'attaque de la sonde sont aspirées dans la sonde et provoquent un excès de concentration mesurée. Cet effet est atténué par l'augmentation de la concentration en particules, en raison de l'augmentation des couplages diphasiques qui réduisent progressivement la capacité des particules à suivre le fluide porteur: transfert de quantité de mouvement des particules vers le fluide, collisions entre particules, effet de sillage entre particules voisines.

## Nomenclature

A Efficacité d'aspiration des particules par une sonde  
 $A = C/C_0$   
C Concentration volumique des particules dans la sonde  
 $C_0$  Concentration volumique des particules dans l'écoulement incident  
D (m) Diamètre extérieur de la sonde  
d(m) Diamètre intérieur de la sonde  
 $d_p$ (m) Diamètre d'une particule sphérique  
 $m_p$  (kg) Masse des particules  
 $m_a$ (kg) Masse de l'air  
Stk Nombre de Stokes d'une particule relatif au diamètre d'une sonde de prélèvement

$Stk_e$  Nombre de Stokes d'une particule relatif à l'épaisseur d'un obstacle  
U (m/s) Vitesse débitante d'aspiration dans une sonde  
 $U_0$  (m/s) Vitesse de l'écoulement incident  
 $u_f$  (m/s) Vitesse du fluide  
 $u_p$  (m/s) Vitesse des particules  
 $v_r$  (m/s) Vitesse relative des particules entre elles  
Z Rapport massique des particules dans le fluide  $Z = m_p/m_a$   
 $\delta$  paramètre de distance moyenne entre deux particules  
 $\mu$  (Pa.s) Viscosité dynamique du fluide  
 $\rho_p$  (kg/m<sup>3</sup>) Masse volumique d'une particule  
 $\rho_f$  (kg/m<sup>3</sup>) Masse volumique du fluide  
 $\sigma$  (m/s) Vitesse turbulente du fluide

## 1. Besoin de granulométrie pour les moteurs spatiaux

Dans les moteurs latéraux de la fusée Ariane 5, l'aluminium en poudre, mélangé au propergol solide à hauteur de 18% en masse, améliore la performance par les réactions énergétiques de sa combustion. Le produit de cette combustion est de l'alumine sous forme de gouttes liquides. En fonction de leur taille et de leur concentration, ces gouttes ont une influence notable sur les **oscillations de poussée** du moteur, qui font parfois vibrer dangereusement les satellites transportés, et compliquent le pilotage de la fusée. Pour améliorer la compréhension et l'analyse de ces phénomènes complexes, la simulation numérique est souvent utilisée. La modélisation d'un tel écoulement diphasique demande une connaissance précise des conditions initiales de la phase dispersée en terme de distribution de tailles (*granulométrie des gouttes d'alumine au cœur de la chambre de combustion*).

Une telle mesure est très délicate car la forte pression (45 bar), la haute température (3400 K) et la forte luminosité de la flamme rendent très difficile l'adaptation des techniques classiques de granulométrie optique. De plus, la forte **concentration** des particules confère aux produits de combustion l'**opacité** d'une fumée dense. En effet, les gouttes d'alumine représentent 1/1000 du volume et 32% de la masse des produits de combustion. Les études expérimentales sur la combustion de l'aluminium à la surface du propergol solide ont mis en évidence les mécanismes qui conduisent à deux tailles de particules : 1 $\mu$ m et 60 $\mu$ m environ. Le problème persistant depuis de nombreuses années est de déterminer la proportion de chacune de ces deux classes à l'issue de la combustion complète de l'aluminium.

Les tentatives antérieures d'une telle mesure ayant abouti à des résultats contradictoires<sup>2</sup>, l'ONERA est sur le point d'acquiescer un nouveau montage d'origine russe, conçu pour la mesure granulométrique des produits de combustion des propergols solides métallisés. Ce petit moteur (1,4 kg de propergol) est pourvu d'une sonde isocinétique qui, en quelques secondes, prélève à l'intérieur de la chambre un échantillon des produits de combustion. Les parois internes de la sonde sont tapissées de plexiglas. La sublimation de celui-ci refroidit les gouttes d'alumine jusqu'à leur solidification. Elles sont alors recueillies puis mesurées après refroidissement complet.

En vue d'une exploitation efficace de ce montage, notre étude consiste à analyser la représentativité de l'échantillon de mélange diphasique prélevé par la sonde.

## 2. Montage expérimental pour sonde isocinétique à bord mince en écoulement diphasique concentré

Les mécanismes de prélèvement par la sonde isocinétique ont déjà été étudiés<sup>1,3</sup> pour des écoulements peu concentrés (0,03g/m<sup>3</sup> d'air). La présente étude s'intéresse à des conditions similaires au montage russe, c'est à dire à forte concentration de particules (400 g/m<sup>3</sup>). Afin d'établir une banque de données expérimentales détaillée sur ce sujet, nous avons développé une expérience de simulation en gaz froid. La similitude<sup>2,4</sup> porte sur la conservation du nombre de Stokes des particules relatif à la sonde, du nombre de Reynolds de la sonde, et du rapport des masses volumiques entre les particules et le fluide porteur. Ainsi, l'air aux conditions ambiantes remplace les gaz de combustion, et des particules solides représentent les gouttes d'alumine. Pour aborder le problème par étapes de complexité croissante, nous étudions en premier lieu une sonde à bords minces (D = 8,5 mm, d = 8 mm), bien que la sonde du montage russe soit épaisse (D = 50 mm, d = 7 mm).

Le montage appelé PIC (Prélèvement Isocinétique Concentré) a pour principales caractéristiques :

- un fonctionnement par rafales (de 4 à 8 s) pour des écoulements à grande vitesse (8 à 36m/s),
- une forte concentration en particules (de 0,1 à 1kg/m<sup>3</sup>) grâce à un injecteur haute pression,
- une technique d'aspiration par vérin pneumatique qui permet un échantillonnage très bref (2 à 4 s) et une mesure simple de la vitesse d'aspiration (par mesure du déplacement du vérin),
- une paroi de la veine d'essai transparente autour des sondes pour visualiser les mécanismes de prélèvement.

La poudre utilisée est constituée de microbilles de verre creuses de masse volumique 600 kg/m<sup>3</sup> et de diamètre moyen 27  $\mu$ m. Son comportement est quasi monomodal, c'est-à-dire que la sonde non isocinétique prélève une distribution granulométrique identique à celle prélevée par la sonde

isocinétique de référence. Il n'est donc pas nécessaire de la mesurer à chaque essai. On varie le nombre de Stokes par la vitesse de l'écoulement, mais il est aussi possible d'utiliser des particules différentes.

$$Stk = \frac{\rho_p d_p^2 U_0}{18 \mu d}$$

Voici le principe de fonctionnement : une rafale d'air de quelques secondes est générée par une électrovanne à partir d'un réseau d'air sous pression. La vitesse de l'écoulement est maintenue constante par un détendeur. L'air passe dans l'injecteur de particules, où il emporte une certaine proportion de poudre. Après stabilisation dans une conduite rectiligne, le mélange rencontre deux sondes de prélèvement placées en parallèle face à l'écoulement. L'une est parfaitement isocinétique et sert de référence. D'un essai à l'autre, on fait varier la vitesse d'aspiration de la seconde sonde pour mesurer son erreur d'échantillonnage par comparaison.

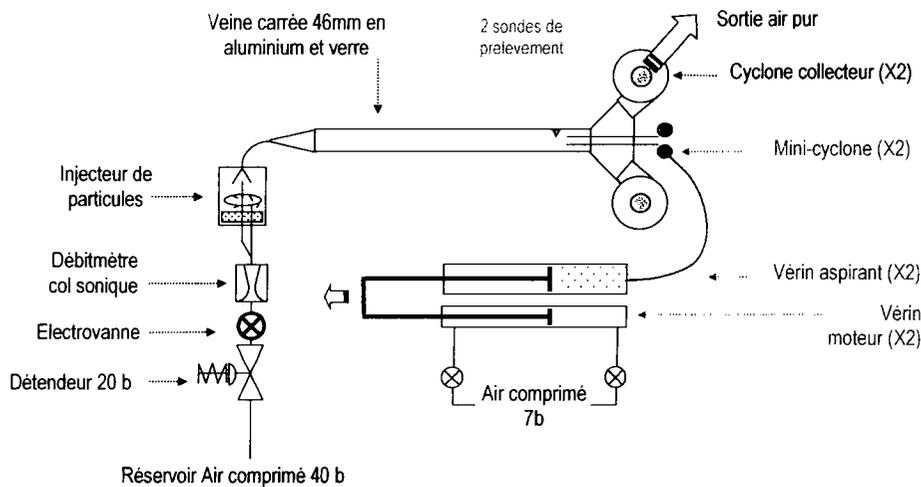


Figure 1 : Banc d'essai pour sonde de Prélèvement Isocinétique en écoulement diphasique Concentré (PIC)

Pendant deux secondes de régime transitoire, les sondes soufflent de l'air de manière à ne pas être polluées. Ce débit sortant est produit par deux vérins de grand volume agissant comme des seringues.

Lorsque la vitesse et la concentration du mélange sont stabilisées, les vérins inversent leur course et chaque sonde aspire un échantillon de mélange d'air et de poudre. A la sortie de chaque sonde, la poudre est collectée par un cyclone miniature. Après la rafale on compare les masses collectées par les deux sondes.

La poudre de l'écoulement principal est récupérée en sortie par des cyclones, et réintroduite dans l'injecteur de particules pour la rafale suivante.

### 3. Résultats expérimentaux et numériques

En configuration **sub-isocinétique**, sur toute la gamme de concentration en particules, nos mesures correspondent à 5% près à la corrélation de Belyaev et Levin<sup>3</sup> (validée par de nombreuses publications). La forte concentration en particules ne modifie donc pas l'efficacité d'aspiration de la sonde. Ces résultats sont confirmés par notre étude numérique<sup>4</sup>, à l'aide du code CEDRE. Sur un modèle axisymétrique de l'entrée de la sonde, nous calculons de manière Lagrangienne les trajectoires de particules dans un fluide porteur en régime permanent, en prenant en compte l'effet des particules sur le fluide en cas de forte concentration, ainsi que la dispersion turbulente des particules.

#### 3.1. Effet du rebond sur le bord d'attaque en aspiration super-isocinétique

En revanche, dans le cas **super-isocinétique**, on observe un excès d'efficacité d'aspiration (jusqu'à 13%) par rapport à la prévision de Belyaev et Levin (voir Figure 5). Notre étude numérique montre que cet excès provient du rebond des particules sur le bord d'attaque (malgré sa faible épaisseur, il représente 13% de la section d'entrée de la sonde) qui sont ensuite aspirées à l'intérieur de la sonde par les lignes de courant convergentes, comme le montre la figure suivante. Malgré la dispersion turbulente des particules, le champ de concentration montre les particules qui ont rebondi.

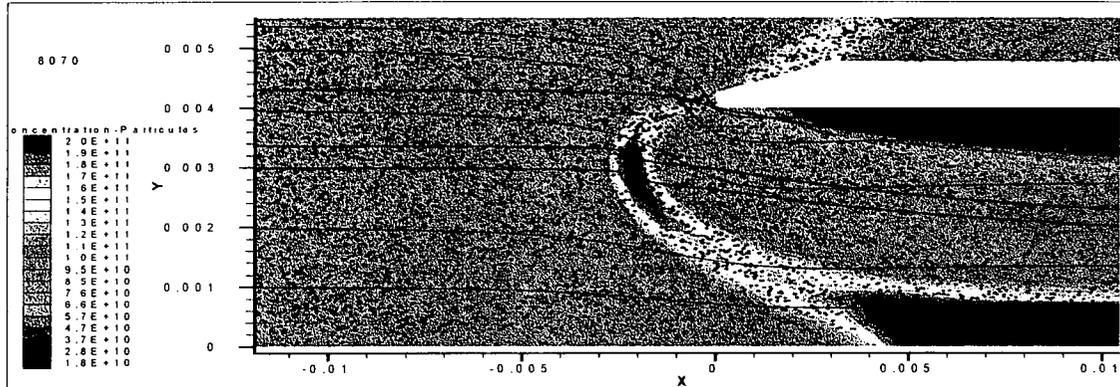


Figure 2 : Rebond des particules de 27  $\mu\text{m}$  ( $\text{Stk}=2,9$ ) sur le bord d'attaque. Concentration numérique des particules en  $\text{m}^{-3}$ . Lignes de courant du fluide et lignes moyennes d'émission des particules. Echelle réduite en X.

Pour corriger la corrélation de Belyaev et Levin ( $A_{\text{Bel}}$ ) de manière à prendre en compte ce phénomène de rebond, nous avons établi une corrélation analytique qui prend en compte la taille des particules.

$$A_{\text{Coreb}} = A_{\text{Bel}} + \frac{U_0}{U} J_i J_s \left( \left( \frac{D}{d} \right)^2 - 1 \right)$$

où  $J_s$  est le coefficient de section efficace défini empiriquement par  $J_s = \left( 1 - \frac{0,33}{1 + 10^5 d_p} \right)$

et  $J_i$  est le coefficient d'impact sur le bord d'attaque d'épaisseur  $e$ , déterminé par interpolation des mesures expérimentales de May et Clifford<sup>5</sup> :

Pour  $\text{Stk}_e < 0,15$  :  $J_i = 0$

Pour  $0,15 < \text{Stk}_e < 40$  :  $J_i = -0,103 x^5 + 0,793 x^4 - 2,227 x^3 + 2,585 x^2 - 0,520x + 0,023$

Pour  $\text{Stk}_e > 40$  :  $J_i = 1$

Où  $x = \log(\text{Stk}_e) + 1$

La figure suivante montre une bonne correspondance entre cette nouvelle expression de l'efficacité d'aspiration ('Coreb') et nos calculs numériques par éléments finis (CEDRE) pour deux valeurs super-isocinétiques du rapport d'isocinétisme  $U_0/U$ .

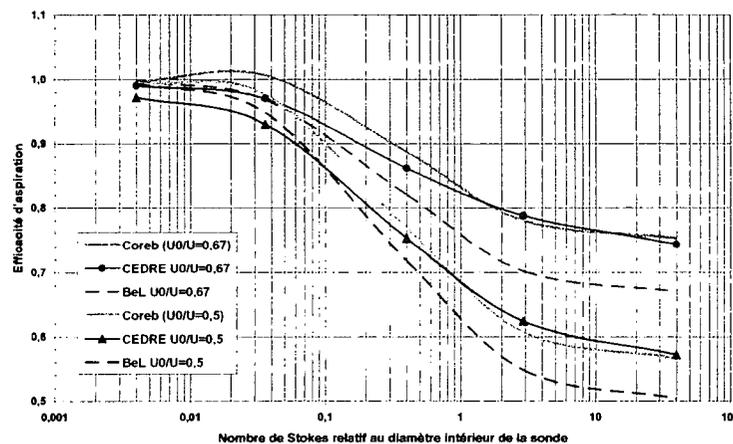


Figure 3 : Prélèvement super-isocinétique, estimation analytique ('Coreb') de l'effet du rebond sur le bord d'attaque pour le calcul de l'efficacité totale

Nous constatons ici la complémentarité de l'approche numérique par rapport aux mesures expérimentales : elle permet de mettre en évidence des phénomènes locaux impossibles à observer à cause de l'opacité du mélange. Notre montage expérimental permet en retour de valider le code numérique, qui sera alors utilisable dans d'autres configurations géométriques de la sonde, et avec des particules de tailles différentes<sup>4</sup>. Ainsi, la figure suivante illustre la bonne correspondance entre nos mesures et nos calculs, pour un rapport massique fixé à  $Z = 0,47$ .

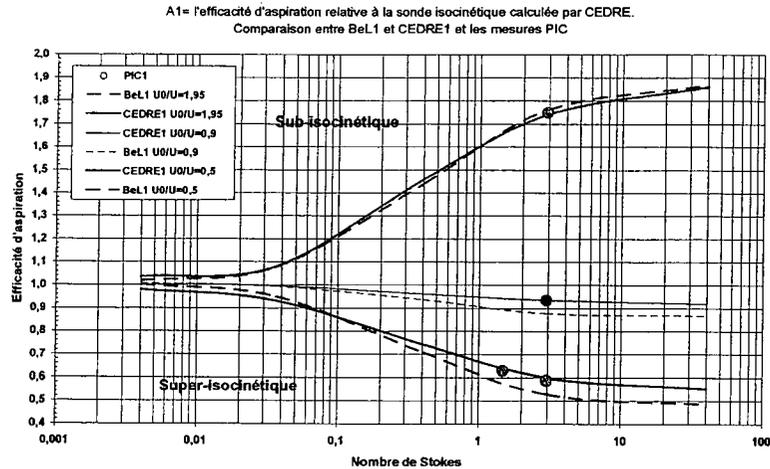


Figure 4 : Comparaison expérience- numérique - littérature (BeL = Belyaev et Levin, 1974)

Le paramètre important de notre étude expérimentale est la concentration des particules. Nous avons étudié son influence sur l'efficacité d'aspiration.

### 3.2. Effet de la concentration des particules sur l'efficacité d'aspiration

La figure suivante compare l'efficacité d'aspiration mesurée à l'estimation de Belyaev et Levin, pour deux valeurs du nombre de Stokes, en configuration super-isocinétique.

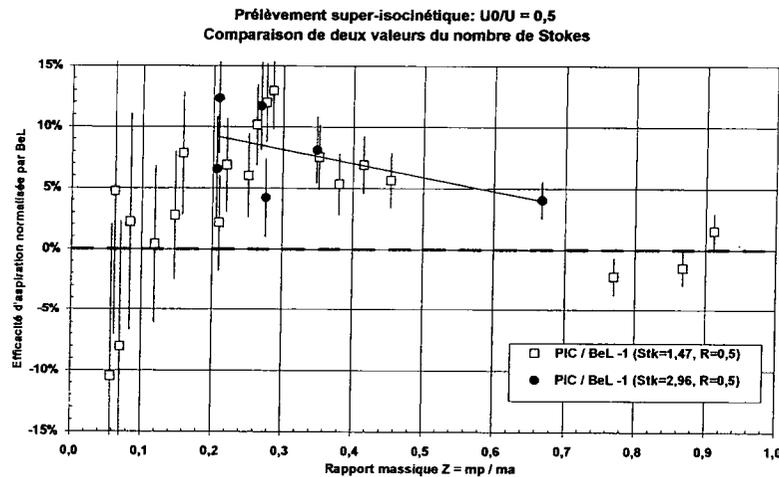


Figure 5 : Effet de la concentration des particules sur l'efficacité d'aspiration

Pour les faibles valeurs de rapport massique de particules ( $Z < 0,2$ ), les incertitudes de mesure liées à la faible masse de l'échantillon ne nous permettent pas une analyse physique.

Dans la gamme  $0,2 < Z < 0,9$ , l'effet enrichissant du rebond des particules sur le bord d'attaque est progressivement atténué. Pour l'expliquer, la figure suivante représente pour l'un des deux cas précédents, l'évolution avec le rapport massique des particules, de trois **facteurs de couplage** entre le fluide et les particules :

- P est le paramètre de couplage réciproque, il compare la quantité de mouvement transférée des particules vers le fluide à la quantité de mouvement propre du fluide<sup>6</sup>.

$$P = \frac{Z}{Stk} \left( 1 - \frac{u_p}{u_f} \right)$$

- T est le taux de réponse visqueuse entre deux collisions, il estime la part de quantité de mouvement effectivement transférée entre le fluide et les particules<sup>4</sup> (à forte concentration, ce transfert n'a pas le

temps de se réaliser totalement car il est interrompu par les collisions très fréquentes dues à la turbulence).

$$T = \frac{u_p}{u_f} = 1 - e^{-\frac{\tau_v}{\tau_c}} \quad \text{où} \quad \frac{\tau_v}{\tau_c} = \frac{4}{3\sqrt{\pi}} \frac{\rho_f}{\mu_f} v_r d_p Z \quad \text{et} \quad v_r = \sigma \sqrt{\frac{4}{\pi} \frac{Stk_{t1} + Stk_{t2}}{(1 + Stk_{t1})(1 + Stk_{t2})}}$$

Les indices 1 et 2 correspondent aux deux particules en collision.

-  $f$  est le facteur de réduction de traînée par effet de sillage entre particules voisines<sup>7</sup>.

$$f = 1 - 0,86e^{-0,053\delta} \quad \text{où} \quad \delta = \left(\frac{\pi}{6C}\right)^{\frac{1}{3}} \quad \text{est le paramètre de distance entre particules.}$$

La figure suivante montre que lorsque la concentration augmente, ces trois facteurs contribuent conjointement à réduire la **capacité des particules à suivre les changements de direction et de vitesse du fluide**. Donc en configuration super-isocinétique ils réduisent progressivement l'efficacité d'aspiration. Cela explique nos résultats expérimentaux.

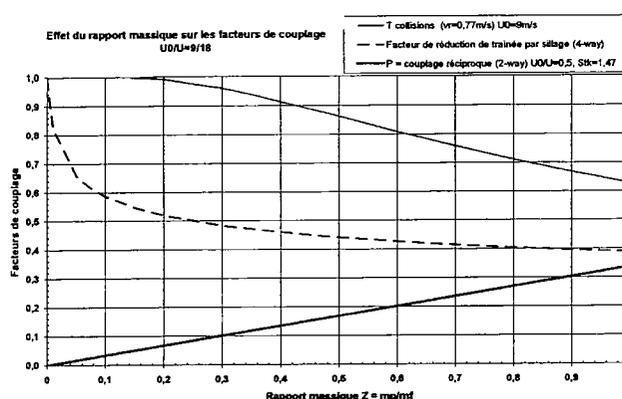


Figure 6 : Facteurs de couplage en fonction du rapport massique.  $U0/U = 0,5 - Stk = 1,47$

Cette étude expérimentale et numérique a permis de mettre en lumière les mécanismes essentiels du prélèvement isocinétique en milieu diphasique concentré. Elle ouvre la voie vers la détermination quantitative de l'influence de la concentration sur l'efficacité d'aspiration. Elle a également validé un code de calcul numérique, à partir duquel il est possible de changer la géométrie de la sonde et de calculer son efficacité d'aspiration. Le cas de la sonde épaisse du montage du Keldysh Research Center peut ainsi être étudié<sup>4</sup>.

## REFERENCES

- <sup>1</sup> Witschger, Wrobel, Fabriès, Görner, Renoux. A new experimental wind tunnel facility for aerosol sampling investigations. *Journal of Aerosol Science*, vol 28, n°5, p833-851, 1997.
- <sup>2</sup> Friemel, Prévot, Prévost, Platet, Lavergne. Techniques de granulométrie appliquées à la propulsion solide. 19<sup>ème</sup> Congrès Français sur les Aérosols, Paris (France), 10-11 décembre 2003.
- <sup>3</sup> Belyaev, Levin. Techniques for collection of representative aerosol sampling. *Aerosol Science*, 1974, Vol.5, pp.325 to 338
- <sup>4</sup> Friemel. Etude expérimentale et numérique d'une sonde de prélèvement isocinétique en écoulement diphasique dense. Application à la granulométrie des produits de combustion des moteurs à propergol solide. *Ecole Nationale Supérieure de l'Aéronautique et de l'Espace, Thèse de Doctorat*, 2005
- <sup>5</sup> May, Clifford. The impaction of aerosol particles on cylinders, spheres, ribbons and discs. *Annual Occupational Hygiene*, Vol 10 pp83-95, 1967
- <sup>6</sup> Crowe, Sommerfeld, Tsuji. Multiphase flows with droplets and particles. *CRC Press LLC*
- <sup>7</sup> Virepinte. Etude du comportement dynamique et thermique de gouttes en régime d'interaction dans le cas de jets rectilignes. *Ecole Nationale Supérieure de l'Aéronautique et de l'Espace, Thèse de Doctorat*, 1999

# Measurement of nucleation mode particles using an ultrafine water-based condensation particle counter

E. Filimundi<sup>a</sup>, O.F. Bischof<sup>b</sup>, I.P. Bennett<sup>c</sup>

<sup>a</sup>TSI France, Europarc, Bât. D., 13453 Marseille Cedex 13, France.

<sup>b</sup>TSI GmbH, Neuköllner Str. 4, 52068 Aachen, Germany.

<sup>c</sup>TSI Instruments Ltd., 1, Beach Road West, Portishead, Bristol, BS20 7HR, Great Britain.

*Keywords:* Nucleation; Ultrafines; Water-based condensation particle counter; Aerosol instrumentation

---

## 1. Introduction

Atmospheric nucleation is a process of environmental importance. It has both a direct and an indirect effect on the climate influencing the albedo and leading to optical extinction. The direct effect is due to the presence of newly formed particles and their interaction with sun light while the indirect effect is caused by the particles acting as cloud condensation nuclei. Additionally, newly generated nucleation particles in the nanometer range are said to have adverse effects on human health as they deeply penetrate into the lung where a fraction of them is deposited. The measurement of such nanoparticles generated by nucleation is a measurement challenge for conventional aerosol instruments. We describe a newly developed ultrafine water-based condensation particle counter (UWCPC), the TSI 3786, that is well suited for such measurements by extending the range of ultrafine particle detection techniques. We evaluated the performance of the instrument in the laboratory and describe its use in two experiments.

## 2. Atmospheric Nucleation

Nucleation is the formation of new, secondary particles from the gas phase. Nucleation has been frequently observed in the atmosphere. A review of observations published by Kulmala *et al.* (2004) lists more than 100 publications where nucleation has been observed since 1990. Nucleation has been observed almost everywhere, from clean remote environments to rural and polluted continental environments but also in exhaust emissions. Nucleation mechanisms include homogeneous condensation by both homomolecular and heteromolecular nucleation as well as heterogeneous condensation by homo/heteromolecular nucleation (Kulmala 2003). A special case is the so-called ion-induced or ion-mediated nucleation, e.g. when water condenses on an ion. The measurement of atmospheric nucleation has always been a measurement challenge for aerosol instruments. Until very recently nucleation has been experimentally observed only from 3 nm on with no information what happened below that size. Ideally, a measurement range from below 3 nm up to 30 nm needs to be covered to observe the formation and growth of nucleation mode particles. Also a wide concentration range is necessary for the instrument to being able to detect nanoparticles in clean environments, e.g. on mountaintop observatories, as well as high concentration nucleation bursts, e.g. at costal locations.

## 3. Instrumentation to observe nucleation

Condensation particle counters (CPCs) are used to measure the number concentration of nucleation particles. Until recently the ultrafine condensation particle counter (UCPC) developed by Stolzenburg and McMurry (1991) and subsequently commercialized by TSI (model 3025) was the only commercial CPC that could detect particles as small as 3 nm (Sem, 2002). In addition, the TSI 3025A was used as part of electrical mobility spectrometers such as the scanning mobility particle sizer (SMPS<sup>TM</sup>) to measure the

size distribution of nucleation particles. However, its low aerosol flow rate of 30 cm<sup>3</sup>/min affected the counting statistics for clean atmospheric concentrations and its performance as a detector after a differential mobility analyzer (DMA). Recently a new ultrafine water-based CPC (UWCPC), the TSI 3786, was developed to improve on the performance of the 3025A and add several state-of-the-art features.

In operation the UWCPC draws in the aerosol sample to count the number of particles. The aerosol enters the sample inlet and immediately half of the 600 cm<sup>3</sup>/min inlet flow is extracted, filtered and then combined with the remaining sample flow as clean sheath air. The combined flow enters a region surrounded with wetted media. The UWCPC utilizes a new patented technology (Hering *et al.*, 2005) that allows water to be used as the working fluid without the requirement of mixing or adiabatic expansion techniques. A single wick, comprised of hydrophilic porous media, lines the inner walls of the conditioner and growth tube. In the conditioner the aerosol stream is saturated to near 100% RH with water vapor and is temperature equilibrated. In the subsequent growth section the walls are heated to provide the warm, wetted walls required for water condensational growth. The high diffusivity of water vapor allows the vapor to reach the center of the sample stream at a faster rate than the thermal diffusivity of the vapor can equilibrate to the higher temperatures near the walls. This results in a supersaturated condition along the radius of the flow stream. The sheath-air-flow design is used to keep the aerosol sample flow in the center of the growth tube where supersaturation is the highest. Particles in the flow stream act as nuclei for condensation and water continues to condense on the particles as it passes up the growth tube. The enlarged particles are then passed through a viewing volume illuminated by a laser. A silicon photodetector is used to detect light scattered from the particles (TSI Inc., 2005).

The new sheath-air-flow design allowed raising the detected aerosol flow to 300 cm<sup>3</sup>/min. This improvement results in ten times better counting statistics particularly at low, atmospheric conditions. It also improves the use after a DMA to measure high-resolution particle size distributions. In addition, the sheath-air-flow design produces a sharp counting efficiency curve by exposing particles to the highest level of supersaturation at the centerline of the condenser. The instrument's smallest-particle-size detection limit was lowered. Several new features were added including continuous live-time coincidence correction up to 100,000 particles/cm<sup>3</sup>, a removable single wick for easy maintenance, USB port for instrument control and data transfer, and ethernet capability. The UWCPC also offers a high data rate of 10 readings/sec and fast response to a concentration step change making it suitable to measure dynamic nucleation events. When used as a detector in the nano-SMPS the UWCPC offers high size resolution down to 2.5 nm with 64 channels resolution below 20 nm.

#### **4. Instrument evaluation in the laboratory**

We characterized the UWCPC for a number of key parameters such as its counting efficiency curve, smallest-particle-size detection limit, and response time to a concentration step change. We made measurements for the counting efficiency and smallest-particle-size detection limit characterization with outdoor ambient air and residue particles from ammonium acetate buffer. The ammonium acetate particles were generated by an electrospray aerosol generator 3480 and subsequently size selected by an electrostatic classifier with a nano-DMA 3085. The monodisperse aerosol from the nano-DMA outlet was mixed with HEPA-filtered air. A flow splitter was used to run a concentration reference and the UWCPC in parallel with the classified test aerosol. We used a UCPC 3025A as the reference initially due to electrometer noise issues at low concentrations. Down to about 5 nm both the UWCPC and the 3025A gave similar results. Below that size the UWCPC detected significantly more particles than the 3025A. For the smallest particle detection measurements, the UWCPC was compared with a custom WCPC which offered 100% detection efficiency for particles down to about 1.5 nm. The counting efficiency curve we determined shows a very steep slope. The particle size where the UWCPC has 50% counting efficiency ( $D_{50}$ ) was determined to be 2.5 nm, making it the most sensitive ultrafine particle counter available. In addition we found that it still detected about 30% of the 2 nm particles. We also performed concentration step response tests to determine the UWCPC's response time for rapid changes. The 3786

showed a very fast response of < 2 seconds to 95% in response to the step change ( $T_{95}$ ) for both increasing and decreasing concentrations.

## 5. Experiments

### 5.1. Measurements at nucleation flow tube at IfT Leipzig

In early 2005 we made laboratory experiments to investigate the rapid formation of new particles at near-atmospheric conditions at the Leibniz Institute for Tropospheric Research (IfT) in Leipzig, Germany. We used the UWCPC and a nano-SMPS at IfT's flow tube. In the flow tube  $H_2SO_4$  particles can be produced in situ through reaction of OH radicals with  $SO_2$ . Newly formed particles are observed for  $H_2SO_4$  concentrations above  $7 \times 10^6$  molecules/cm<sup>3</sup>. The nucleation rate is estimated to be 0.3 to 0.4 particles/cm<sup>3</sup> per second at atmospheric  $H_2SO_4$  concentration levels (Berndt *et al.*, 2005). Integral measurements of the freshly formed  $H_2SO_4$  particles with UWCPC and UCPC 3025A in parallel showed a very similar response down to concentrations of 10 particles/cm<sup>3</sup>. Below that concentration the 3025A was no longer able to make meaningful measurements. The UWCPC with its 10 times higher detected aerosol flow, however, measured reproducibly down to concentrations as low as 2 particles/cm<sup>3</sup>. With the UWCPC we were able to measure the number of freshly generated particles down to  $H_2SO_4$  concentrations of  $1 \times 10^7$  molecules/cm<sup>3</sup>, which is close to the threshold at which new particle formation has been observed. In addition to measurements with the CPCs stand-alone we also used the UWCPC in a nano-SMPS to determine the size distribution of the freshly produced particles. Due to the low aerosol flow in the 3025A this has not been possible before at the very low concentrations after a DMA. Even with the UWCPC we measured less than 50 raw counts over one hour but were able to determine the nucleation particle size distribution. The mode of the distribution measured with the UWCPC in the nano-SMPS was found to be 2.64 nm, thus below the 3025A's smallest-particle-size detection limit.

### 5.2. Nucleation event at mountaintop observatory of Mt. Jungfraujoch

We participated in field measurements as part of the Cloud and Aerosol Characterization Experiments (CLACE-4) campaign in March 2005. The campaign goals were to investigate the chemical composition of aerosol particles and their interaction with clouds. A special focus was new particle formation mechanisms by homogenous nucleation. The campaign site was the Sphinx laboratory at the high Alpine research station on Mt. Jungfraujoch in Switzerland. The laboratory is located at 3,580 meters above sea level. Ambient conditions were outdoor air temperatures of -20°C and air pressures of 640 to 650 mbar on average. One of the UWCPC's benefits under these conditions is that it measures the inlet absolute pressure to make a continuous compensation of inlet and sheath flows. Prior to the measurements we matched the UWCPC's absolute pressure sensor to the high-precision pressure measurement of the Sphinx laboratory by a scale factor that can be entered as terminal command. Initially we observed very clean atmosphere over many hours. The total number concentration of the clean background aerosol measured by the UWCPC was very low with typically only a few hundred particles/cm<sup>3</sup>. During nucleation events the concentration increased by a factor of four, which is still a low concentration for conventional electrical mobility spectrometers. An SMPS equipped with a long DMA and a 3025A was used in parallel with a nano-SMPS configured with the 3786 UWCPC. Although the conventional SMPS showed a very similar size distribution, only the nano-SMPS with the UWCPC was able to measure a smooth distribution with good counting statistics (Verheggen *et al.*, 2005). The nano-SMPS detected the formation and growth of the nucleation particles and showed a stable peak at 13 nm for several hours of measurements. The nucleation events lasted for up to 9 hours before the concentration dropped back to clean background levels with concentrations below 300 particles/cm<sup>3</sup>.

## 6. Summary

A new ultrafine water-based condensation particle counter, the model 3786, has been tested under laboratory and experimental conditions. The instrument uses water as its working fluid, which is odor-free and has no cross sensitivity with measurements of gaseous compounds. The UWPC has a detected aerosol flow of 300 cm<sup>3</sup>/min which results in good counting statistics even at very low concentrations. The 3786's detected flow is ten times higher than in the UCPC 3025A, making the UWPC ideally suited for nucleation measurements at clean atmospheres. Our laboratory performance evaluation has shown that the 3786 has a steep counting efficiency curve and a 50% counting efficiency at 2.5 nm. The UWPC demonstrated a fast response to rapid changes in aerosol concentration ( $T_{95} < 2$  seconds). The instrument also worked reliably during two experiments. Our measurements at IfT's nucleation flow tube showed that the UWPC can make meaningful measurements down to the threshold at which formation of particles from H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> has been observed. The field measurements on Mt. Jungfrauoch demonstrated that the UWPC is useful as detector in the nano-SMPS to measure low concentration nucleation events with good counting statistics.

## Acknowledgements

The authors would like to thank Dr. Bart Verheggen and Dr. Ernest Weingartner (Paul Scherrer Institute, LAC, Villigen) for the opportunity to measure on Mt. Jungfrauoch during CLACE-4 and Dr. Torsten Berndt for the joint measurements at IfT Leipzig. We are also grateful to Dr. Wei Liu at TSI Incorporated who carried out most of the UWPC performance tests.

## References

- Berndt, T., Böge, O., Stratmann, F., Heintzenberg, J. and Kulmala, M. (2005) Rapid formation of sulfuric acid particles at near-atmospheric conditions. *Science*, 307, pp. 698.
- Hering, S.V., Stolzenburg, M.R., Quant, F.R., Oberreit, D.R., and Keady P.B. (2005) A Laminar-Flow, Water-Based Condensation Particle Counter (WCPC). *Aerosol Sci. Technol.* **39**, pp. 659–672.
- Kulmala, M. (2003) How Particles Nucleate and Grow. *Science*, **302**: pp. 1000-1001.
- Kulmala, M., Vehkamäki, H., Petäjä, T., Dal Maso, M., Lauri, A., Kerminen, V.-M., Birmili, W., and McMurry, P.H. (2004) Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations. *J. Aerosol Sci.* **35**: pp. 143-176.
- Sem, G.J. (2002) Design and performance characteristics of three continuous-flow condensation particle counters: a summary. *Atmospheric Research* **62**: pp. 267-294.
- Stolzenburg, M.R. and McMurry, P.H. (1991) An ultrafine aerosol condensation nucleus counter. *Aerosol Sci. Technol.* **14**, pp. 48-65.
- TSI, Inc. (2005). Model 3786 Ultrafine Water-based Condensation Particle Counter Operation and Service Manual. P/N 1930072, Revision A (January 2005).
- Verheggen, B., Cozic, J., Weingartner, E., Mertes, S., Flynn, M., Connolly, P., Bower, K.N., Gallagher, M. and Baltensperger, U. (2005). Nucleation and activation of aerosol particles during CLACE Campaigns (Jungfrauoch, 3580 metres a.s.l., Switzerland). *Abstracts of the European Aerosol Conference 2005*, Ghent-Belgium.

# COMPARAISON DE DIFFERENTES METHODES DE DETERMINATION DES CARACTERISTIQUES FRACTALES D'AGREGATS DE SUIE

F.X. Ouf (1), C. Coursil (1,2), E. Géhin (2), J. Vendel (1)

(1) Institut de Radioprotection et de Sécurité 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 Recherche en Thermique, Environnement et Système, Université Paris XII, 61 av. du Général De Gaulle, 94010 Créteil Cedex, France

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

Comparison of different methods for the determination of fractal characteristics of soot aggregates.

## ABSTRACT

Morphology of particles generated during hydrocarbons or biomass combustion is fundamental as data for characterizing the optical and aerodynamic behaviour of these particles. The fractal nature of soot particles is well known since the works of Jullien and Botet (1987). Nevertheless, the determination of the fractal morphology of these aggregates is based on direct analysis of transmission electronic microscopy (TEM) micrograph (Köylü *et al.*, 1995; Sorensen and Feke, 1996; Brasil *et al.*, 2000) which represents a long and tiresome work.

We propose in this work to use the method introduced by Kelly and McMurry (1992) and based on serial analysis of electrical mobility and aerodynamic diameters of soot aggregates. This method has been recently used by VanGulijk *et al.* (2004) and Park *et al.* (2004), and seems to bring morphological information systematically higher than the TEM analysis. In this study we will detail the TEM analysis method and the theoretical approach associated to the serial method of Kelly and McMurry (1992). We will also present the experimental setup used and the results obtained for aggregates generated during the combustion of acetylene ( $C_2H_2$ ), toluene ( $C_7H_8$ ) and PolyMethyl Methacrylate (PMMA,  $C_5H_8O_2$ ). These results will be compared to TEM analysis results, and discrepancies will be analysed and explained in detail.

We will finally conclude on advantages and disadvantages of each method and also on potential of these approaches. The link will be thus established out with the determination of the effective density of the soot aggregates, which is presented in work of Ouf *et al.* (2005a).

## RESUME

La morphologie des particules émises lors de la combustion d'hydrocarbures ou de biomasse est une donnée fondamentale pour caractériser le comportement optique ou aérodynamique de ces particules. La nature fractale des particules de suie est connue depuis les travaux de Jullien et Botet (1987). Cependant, la détermination de la morphologie fractale de ces agrégats repose sur une analyse directe de clichés de microscopie électronique (Köylü *et al.*, 1995 ; Sorensen and Feke, 1996 ; Brasil *et al.*, 2000), qui représente un travail long et fastidieux.

Nous proposons dans ce travail d'utiliser la méthode introduite par Kelly and McMurry (1992) et fondée sur l'analyse en série du diamètre de mobilité électrique et aérodynamique d'agrégats de suie. Cette méthode a été récemment reprise par VanGulijk *et al.* (2004) et Park *et al.* (2004) ; elle semble apporter des informations morphologiques systématiquement supérieures aux informations issues de l'analyse par microscopie électronique. Dans la présente étude, nous détaillons la méthode d'analyse des clichés de microscopie électronique ainsi que l'approche théorique associée à la méthode en série de Kelly and McMurry (1992). Nous présentons, de plus, le dispositif expérimental employé dans la présente étude ainsi que les résultats obtenus pour des agrégats de suie issue de la combustion d'acétylène ( $C_2H_2$ ), de toluène ( $C_7H_8$ ) et de PolyMethyl Methacrylate (PMMA,  $C_5H_8O_2$ ). Ces résultats sont alors comparés aux résultats de l'analyse de clichés de microscopie électronique et les différences observées sont analysées et expliquées en détail.

Nous concluons ensuite par l'exposé des avantages et inconvénients de chaque méthode, ainsi que des perspectives envisageables pour ces approches. Le lien sera ainsi effectué avec la détermination de la masse volumique effective des agrégats de suie, qui est présentée dans les travaux de Ouf *et al.* (2005a).

# 1. Détermination de la morphologie des particules de suie par analyse MET

Une particule de suie est en réalité un agrégat de particules primaires dont le diamètre, variant selon le combustible, est compris entre 10 et 100 nm. La Figure 1 présente un cliché de microscopie électronique d'un agrégat de suie d'acétylène ainsi que les différents diamètres utilisés afin de le caractériser. On retrouve la relation fractale définissant la morphologie d'un tel agrégat et faisant intervenir le nombre de particules primaires composant l'agrégat  $N_p$ , le diamètre des particules primaires  $D_p$ , le diamètre de giration  $D_g$  ainsi que le préfacteur fractal  $k_f$  et la dimension fractale  $D_f$ .

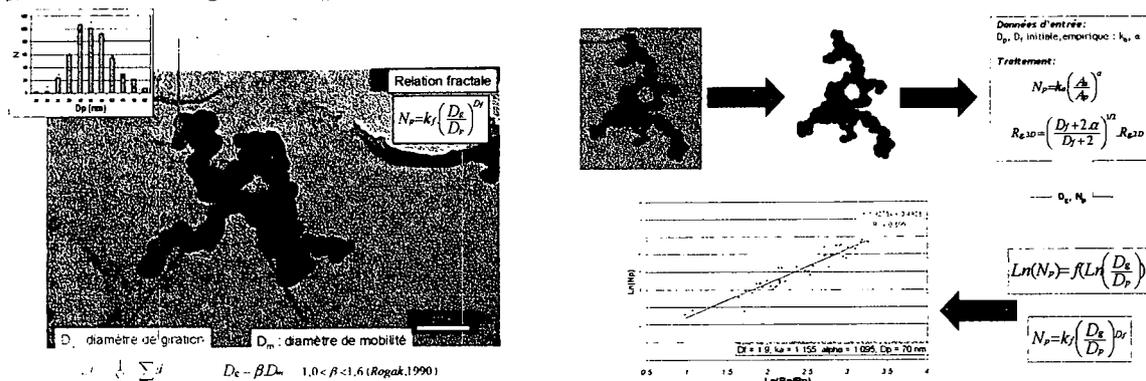


Figure 1 : Description de la morphologie fractale des agrégats et principe de l'analyse des clichés MET

La morphologie d'une telle particule se définit donc à partir de deux informations : le préfacteur et la dimension fractale. La détermination de ces deux paramètres passe par l'analyse approfondie des clichés de microscopie électronique par transmission (MET). Nous présentons, sur la Figure 1, le principe de détermination de ces paramètres ; on détermine tout d'abord le diamètre des particules primaires, qui nous donne la surface correspondante  $S_p$ , et ce par mesure directe sur les clichés MET. On numérise ensuite les images, le logiciel détermine la surface projetée de l'agrégat  $S_a$  en comptant les pixels le composant, et on détermine alors le nombre de particules primaires constituant l'agrégat. On utilise enfin les relations introduites par Köylü *et al.* (1995) qui permettent de relier ces surfaces projetées, correspondant à une information bi-dimensionnelle, à un nombre de particules primaires  $N_p$ , qui est une donnée tri-dimensionnelle. On a ainsi :

$$N_p = k_a \left( \frac{S_a}{S_p} \right)^\alpha \tag{1}$$

où  $k_a$  et  $\alpha$  sont des constantes déterminées au cours des travaux de Köylü *et al.* (1995). On détermine ensuite le centre de masse de l'agrégat et on établit ainsi le rayon de giration  $R_{g,2D}$  bi-dimensionnel de l'agrégat, qui est tel que :

$$R_{g,2D}^2 = \frac{1}{N_p} \cdot \sum_i r_i^2 \tag{2}$$

où  $r_i$  est la distance entre le centre de masse et la particule primaire  $i$ . On définit la relation liant le rayon de giration  $R_{g,2D}$  bi-dimensionnel au rayon de giration  $R_{g,3D}$  tri-dimensionnel (Sorensen and Fekke, 1996) :

$$R_{g,3D} = \left( \frac{D_f + 2\alpha}{D_f + 2} \right)^{1/2} \cdot R_{g,2D} \tag{3}$$

Cette analyse est effectuée pour un nombre d'agrégats assez important (dans notre étude environ 50) et on trace la relation fractale sous la forme logarithmique :

$$\ln(N_p) = f\left(\ln\left(\frac{D_g}{D_p}\right)\right) \tag{4}$$

On applique une régression linéaire aux données expérimentales, la pente de cette régression n'est autre que la dimension fractale  $D_f$  et l'ordonnée à l'origine le logarithme du préfacteur  $k_f$ . On voit, à travers ces différentes étapes, toute la difficulté de la détermination de la morphologie à partir de cette approche. On peut, de plus, souligner les incertitudes induites par cette méthode et par la régression appliquée aux données expérimentales. Ainsi, la dimension fractale, pente de la régression linéaire, présente une incertitude assez faible et inférieure à 10 %. Le préfacteur, en revanche, représenté par l'ordonnée à l'origine de la régression, est un paramètre beaucoup plus sensible et présente une incertitude de plus de 50 % dans certains cas. On peut cependant remarquer que cette approche est la seule à permettre la détermination directe à la fois de la dimension fractale  $D_f$  et du préfacteur  $k_f$ .

## 2. Détermination de la dimension fractale par mesure en série du diamètre de mobilité et du diamètre aérodynamique

L'approche, introduite par Kelly and McMurry (1992), repose sur la sélection d'un diamètre de mobilité électrique  $D_m$  et sur la détermination du diamètre aérodynamique correspondant  $D_a$ . L'hypothèse de base repose sur la relation linéaire entre le diamètre de giration et le diamètre de mobilité électrique ( $D_g = \beta \cdot D_m$ ), ainsi d'après Schmidt-Ott *et al.* (1990) :

$$N_p = k_f \left( \frac{D_g}{D_p} \right)^{D_f} = A_0 \cdot \left( \frac{D_m}{D_p} \right)^{D_f} \quad (5)$$

Dans le cas d'un agrégat, la définition du diamètre aérodynamique impose l'égalité entre le temps de relaxation de l'agrégat  $\tau$  et celui de la sphère équivalente  $a$  :

$$m_{fr} \cdot B_{fr} = m_a \cdot B_a \quad (6)$$

Pour le diamètre aérodynamique qui, rappelons-le, correspond à une sphère de masse volumique unitaire  $\rho_0$ , la masse de la particule est telle que :

$$m_a = \rho_0 \cdot \frac{\pi}{6} \cdot D_a^3 \quad (7)$$

La masse de l'agrégat, quant à elle, est définie à partir du diamètre  $D_p$ , de la masse volumique  $\rho_{pp}$  et du nombre  $N_p$  de particules primaires dans l'agrégat :

$$m_{fr} = \rho_{pp} \cdot \frac{\pi}{6} \cdot D_p^3 \cdot N_p \quad (8)$$

La mobilité dynamique d'un agrégat de morphologie fractale peut être définie à partir du diamètre de mobilité électrique de l'agrégat :

$$B_{fr} = \frac{C_c(D_m)}{3\pi \mu_g D_m} \quad (9)$$

Dans le cas d'une sphère de masse volumique unitaire, le diamètre aérodynamique  $D_a$  est équivalent au diamètre de mobilité électrique  $D_m$ . La mobilité dynamique aérodynamique est donc de la forme :

$$B_a = \frac{C_c(D_a)}{3\pi \mu_g D_a} \quad (10)$$

En utilisant les relations (7-10) dans la relation (6), nous obtenons la relation suivante :

$$\rho_{pp} \cdot N_p \cdot D_p^3 \cdot \frac{C_c(D_m)}{D_m} = \rho_0 \cdot C_c(D_a) \cdot D_a^2 \quad (11)$$

Afin de simplifier cette expression nous avons représenté le facteur de correction de Cunningham sous la forme :

$$C_c(D_m) = A_1 \cdot D_m^{(1-\alpha)} \quad (12)$$

avec le paramètre  $\alpha$  égal à 1 dans le régime continu, à 2 dans le régime moléculaire et compris entre 1 et 2 pour le régime transitoire. Pour la gamme de diamètres de mobilité électrique considérée dans l'étude, le paramètre  $\alpha$  est déterminé par "lissage" du facteur de correction de Cunningham.

En intégrant les relations (11-12) dans la relation (5), on peut alors lier le diamètre aérodynamique au diamètre de mobilité électrique :

$$\frac{D_a}{D_p} \propto \left( \frac{D_m}{D_p} \right)^{\frac{(D_f-\alpha)}{(3-\alpha)}} \quad (13)$$

Le dispositif expérimental associé à la détermination de la dimension fractale des particules de suie est présenté sur la Figure 2.

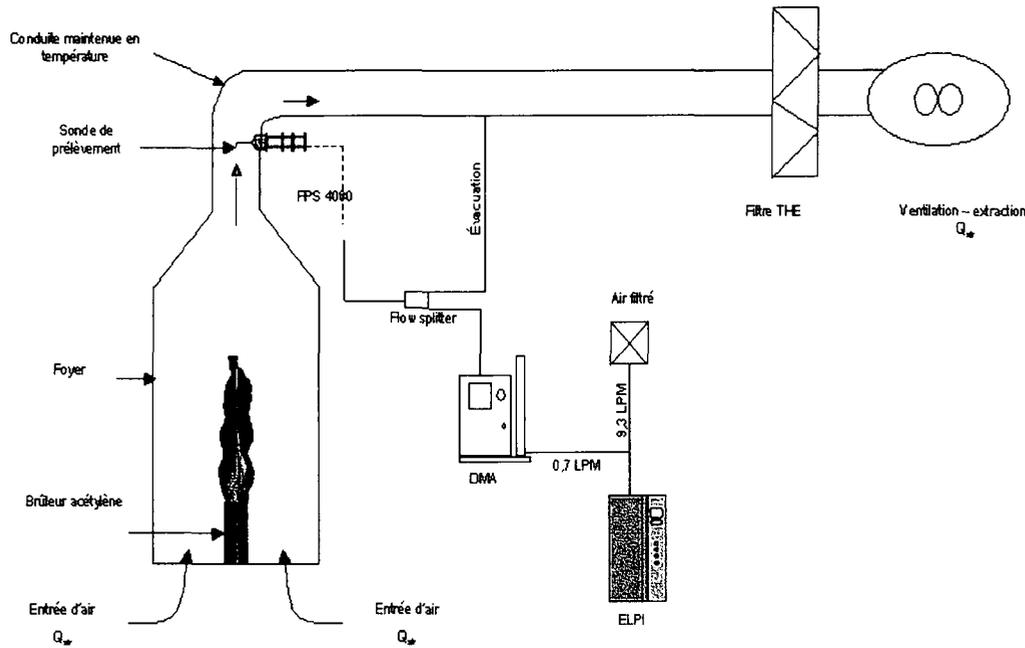


Figure 2 : Dispositif expérimental de détermination de la dimension fractale

Il se compose d'un foyer d'environ  $1 \text{ m}^3$  dans lequel les particules de suie sont produites à partir de différents combustibles. L'alimentation en air du foyer est imposée par un système de ventilation et le débit correspondant est compris entre  $50$  et  $500 \text{ m}^3/\text{h}$ . Les agrégats de suie sont prélevés à l'aide d'une sonde isocinétique et d'un système de dilution à deux étages (DEKATI FPS 4000). On sélectionne un diamètre de mobilité électrique à l'aide d'un analyseur de mobilité (TSI DMA 3080L) et on mesure en sortie le diamètre aérodynamique médian correspondant à l'aide d'un impacteur électrique basse pression ELPI (DEKATI).

### 3. Résultats de l'étude expérimentale : détermination de la dimension fractale

Nous présentons sur la Figure 3 les résultats expérimentaux liant le diamètre aérodynamique  $D_a$  au diamètre de mobilité électrique  $D_m$  et dans le Tableau 1 les valeurs des paramètres de "lissage" du facteur de Cunningham. Le Tableau 2 présente les valeurs de dimensions fractales obtenues à partir de l'analyse en série DMA-ELPI comparées aux dimensions fractales déterminées par analyse de clichés MET.

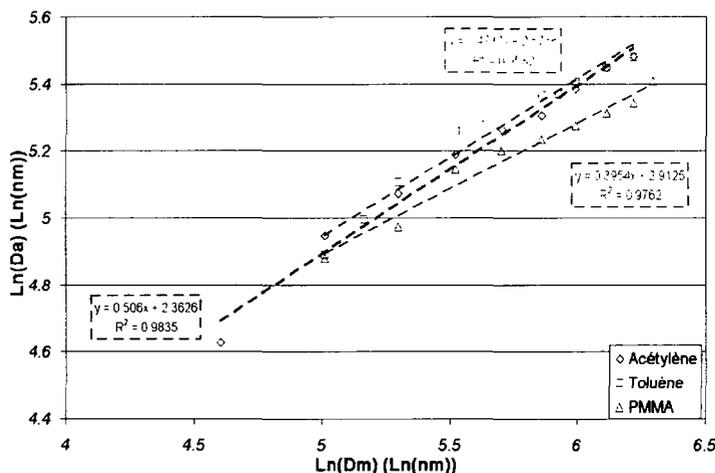


Tableau 1 : Paramètres du "lissage" du facteur de Cunningham

Combustible	$A_1$	$\alpha$
Acétylène	2,33	1,47
Toluène	2,19	1,41
PMMA	2,19	1,41

Tableau 2 : Résultats expérimentaux de  $D_f$

Combustible	$D_f$ MET	$D_f$ DMA-ELPI
Acétylène	1,93	2,25
Toluène	1,81	2,16
PMMA	1,72	2,04

Figure 3: Diamètre aérodynamique en fonction du diamètre de mobilité

On voit, à travers le Tableau 2, que la dimension fractale issue de cette méthode en série est supérieure à la dimension fractale déterminée à l'aide de l'analyse de clichés MET. Cette méthode reposant essentiellement sur l'hypothèse de linéarité entre le diamètre de mobilité et le diamètre de giration, énoncée dans la relation (5), nous nous sommes intéressés à la validité de cette hypothèse. Nous avons donc déterminé le rapport  $\beta$  qui lie ces deux diamètres, et ce, sur toute la gamme de diamètre de mobilité électrique de notre étude. Pour cela, il convient de déterminer le rapport  $\beta$  qui vérifie la relation (5), mais cette fois-ci en intégrant deux dimensions fractales différentes, une pour le diamètre de giration  $D_g$  ( $D_f$  MET) et une pour le diamètre de mobilité électrique  $D_m$  ( $D_f$  DMA-ELPI) :

$$N_p = k_f \left( \frac{D_g}{D_p} \right)^{D_{fMET}} = A_0 \cdot \left( \frac{D_m}{D_p} \right)^{D_{fDMA-ELPI}} \quad (14)$$

On représente sur la

Figure 4 l'évolution de ce rapport  $\beta$  en fonction du diamètre de mobilité électrique  $D_m$  et du nombre de particules primaires  $N_p$  composant l'agrégat.

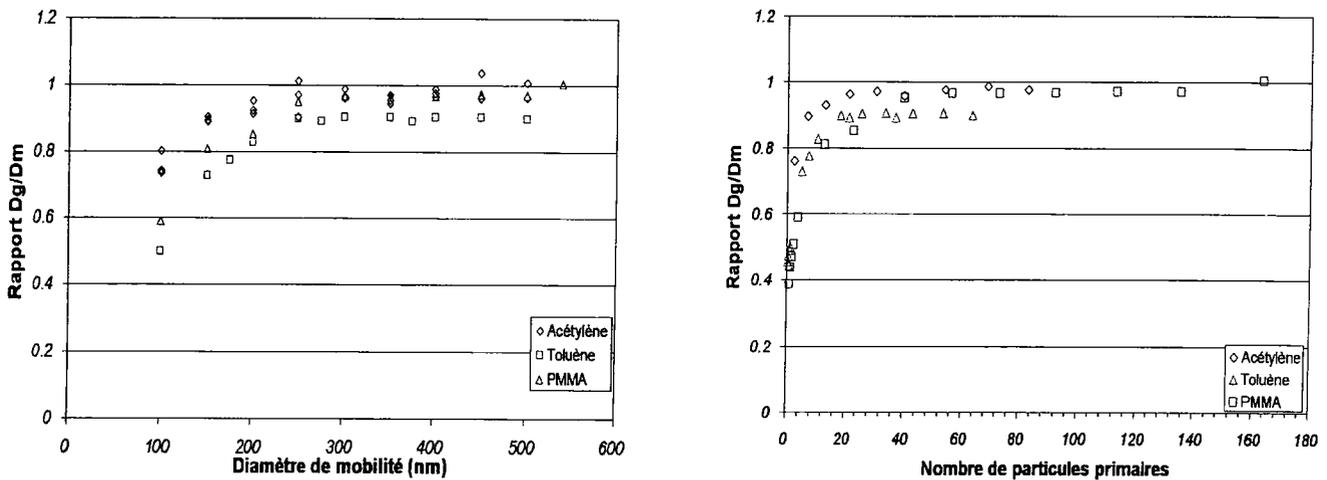


Figure 4 : Evolution du rapport  $\beta$  en fonction du diamètre de mobilité et du nombre de particules primaires

L'hypothèse de linéarité entre le diamètre de giration et le diamètre de mobilité électrique est uniquement valable pour un nombre de particules primaires supérieur à 20 correspondant à un diamètre de mobilité de l'ordre de 250 nm. Nous avons donc traité les données expérimentales mais en ne considérant que les particules de diamètre de mobilité supérieur à 250 nm. Les résultats de cette analyse sont présentés dans le Tableau 3. On y retrouve la dimension fractale DMA-ELPI globale, en intégrant toutes les particules, ainsi que la dimension fractale DMA-ELPI corrigée (250 – 500 nm) et comparée à la dimension fractale MET.

Tableau 3 : Résultats expérimentaux globaux et corrigés de la dimension fractale

Combustible	$D_f$ MET (incertitude en %)	$D_f$ DMA-ELPI globale (écart avec MET en %)	$D_f$ DMA-ELPI corrigée (écart avec MET en %)
Acétylène	1,93 (5%)	2,25 (17%)	1,99 (3%)
Toluène	1,81 (5%)	2,16 (19%)	1,82 (1%)
PMMA	1,72 (7%)	2,04 (19%)	1,79 (4%)

La dimension fractale ainsi déterminée s'avère particulièrement proche de la dimension fractale déterminée par microscopie électronique. L'écart entre les deux méthodes, ici de l'ordre de 5%, est alors inférieur à l'incertitude sur la dimension fractale déterminée par analyse de clichés de microscopie électronique par transmission (10%). La détermination de la dimension fractale par analyse en série du diamètre de mobilité électrique et du diamètre aérodynamique apporte donc des informations cohérentes en termes de dimension fractale, mais nécessite la connaissance de la taille des particules primaires afin d'estimer la gamme de validité de l'hypothèse de constance du rapport  $\beta$ .

## Conclusions et perspectives

Une méthode de détermination de la dimension fractale a été mise en œuvre dans ce travail et a été comparée à une méthode de référence. Nous avons ainsi souligné la robustesse de cette méthode qui repose cependant sur l'hypothèse d'un rapport  $\beta$  constant entre le diamètre de giration et le diamètre de mobilité électrique. Ainsi, la détermination du diamètre des particules primaires par analyse de clichés MET est tout de même nécessaire afin de déterminer la gamme d'agrégats où cette hypothèse de base est valable. La méthode en série DMA-ELPI est donc particulièrement prometteuse mais nécessite de plus profondes analyses, particulièrement sur la possibilité de déterminer directement la taille des particules primaires, et ce, à l'aide de la masse volumique effective des agrégats. Ce dernier point représente indéniablement l'intérêt principal de cette méthode, et les résultats obtenus pour des agrégats de suie d'acétylène, de toluène et de PMMA sont cohérents avec les données rencontrées dans la littérature. Cette méthode présente cependant un inconvénient majeur par rapport à l'analyse directe de clichés de microscopie électronique : la détermination du préfacteur fractal  $k_f$ . En effet, ce paramètre est particulièrement utile si l'on souhaite modéliser la diffusion de la lumière par des agrégats (Ouf *et al.*, 2005b) et à ce jour, seule la méthode MET permet la détermination de ce paramètre. Les perspectives de ce travail consistent en l'établissement réel de la fonction d'évolution du rapport  $\beta$ , cette fois-ci, non pas en utilisant les informations issues de l'analyse de clichés de microscopie électronique (incertitude sur le préfacteur) qui ne permettent pas d'obtenir une information qualitative sur ce rapport, mais plutôt en prélevant à la sortie du DMA des agrégats de diamètre de mobilité électrique sélectionné et en déterminant par analyse de clichés MET le diamètre de giration correspondant. L'établissement de cette fonction d'évolution du rapport  $\beta$  pour des tailles de particules primaires, des dimensions fractales et des tailles d'agrégats couvrant une large gamme s'avère être un travail très prometteur et particulièrement riche en informations sur le comportement physique des agrégats de particules de suie.

## Références bibliographiques

- Brasil, A.M., Farias, T.L. and Carvalho, M.G. (2000). A recipe for image characterization of fractal-like aggregates, *J. Aerosol Sci.*, 30, 1379-1389
- Jullien, R. and Botet, R. (1987). *Aggregation and fractal aggregates*, ISBN 9971-50-248-8
- Kelly, W.P. and McMurry, P.H. (1992). Measurement of particle density by inertial classification of differential mobility analyzer-generated monodisperse aerosols, *Aerosol Sci. Technol.*, 17, 199-212
- Köylü, Ü. Ö, Faeth, G.M., Farias, T.L. and Carvalho, M.G. (1995). Fractal and projected structure properties of soot aggregates. *Combust. Flame*, 100, 621-633
- Ouf, F.X., Coursil, C., Coppalle, A., Vendel, J. et Weill, M.E. (2005a). Détermination de la masse volumique de particules primaires et de la masse volumique effective des agrégats de suie, 21<sup>ème</sup> Congrès Français sur les Aérosols
- Ouf, F.X., Coppalle, A., Vendel, J., Weill, M.E. et Yon, J. (2005b). Détermination expérimentale de l'indice de réfraction de particules de suie dans l'infrarouge, 21<sup>ème</sup> Congrès Français sur les Aérosols
- Park, K., Kittelson, D.B. and McMurry, P.H. (2004). Structural properties of diesel exhaust particles measured by transmission electron microscopy (TEM): relationships to particle mass and mobility, *Aerosol Sci. Technol.*, 38, 881-889
- Sorensen, C. M. and Feke, G.D. (1996). The morphology of macroscopic soot, *Aerosol Sci. Technol.*, 25, 328-337
- Schmidt-ott, A., Baltensperger, U., Gaggeler, H.W. and Jost, D.T. (1990). Scaling behaviour of physical parameters describing agglomerates, *J. Aerosol Sci.*, 21, 711-717
- Van Gulijk C., Marijnissen, J.C.M., Makee, M., Mouljin, J.A. and Schmidt-ott, A. (2004). Measuring diesel soot with a scanning mobility particle sizer and an electrical low-pressure impactor: performance assessment with a model for fractal-like agglomerates. *J. Aerosol Sci.*, 35, 633-655

# COMPARAISON DE DIAGNOSTICS OPTIQUES GRANULOMETRIQUES : IMAGERIE EN DEFAUT DE MISE AU POINT – ANEMOMETRIE PHASE DOPPLER

P. Lemaitre, E. Porcheron, D. Marchand, A. Nuboer,  
L. Bouilloux et J. Vendel

IRSN/DSU/SERAC  
BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette cedex.  
E-mail: [Pascal.Lemaitre@irsn.fr](mailto:Pascal.Lemaitre@irsn.fr)

## TITLE

Development and application of out-of-focus imaging in order to characterize heat and mass exchanges in two-phase flows.

## ABSTRACT

The aim of this paper is to present the capacity of the out-of-focus imaging in order to measure droplets size in presence of heat and mass exchanges. It is supported with optical simulations first based on geometrical optics, and then with the Lorenz-Mie theory. Finally, this technique is applied in presence of heat and mass transfers in the TOSQAN experiment.

## RESUME

Le but de cet article est de présenter la capacité de l'imagerie en défaut de mise au point à mesurer la taille de gouttes en présence de transferts massique et thermique. Les conclusions de cet article sont étayées par des simulations optiques tout d'abord basées sur l'optique géométrique puis sur la théorie de Lorenz-Mie. Enfin nous présentons des résultats expérimentaux dans l'expérience TOSQAN en présence de transferts massique et thermique.

## Introduction

Afin d'analyser les mécanismes de transfert de masse et de chaleur entre un spray d'eau et une atmosphère pour des conditions thermo-hydrauliques représentatives de celles d'un accident grave dans une enceinte de confinement de réacteur nucléaire, l'IRSN a développé le programme expérimental TOSQAN. Cette expérience est finement instrumentée, en particulier à l'aide de diagnostics optiques permettant de caractériser les phases liquides et gazeuses en termes de température, vitesse et fraction volumique.

Le but de ce travail est de présenter la technique d'imagerie en défaut de mise au point, implantée sur l'enceinte de confinement expérimentale (environ 7 m<sup>3</sup>) afin d'y mesurer la taille de gouttes. Ce travail est divisé en trois parties.

La première partie est dédiée à la présentation du principe de cette technique, qui est basée sur l'analyse des interférences entre les rayons subissant une réflexion à l'intérieur de la goutte et ceux subissant une réflexion externe. Puis, nous présentons le dispositif optique et enfin les mesures réalisées dans TOSQAN en conditions normales de température et de pression et pendant un essai d'aspersion.

## Principe de la mesure

### Principe général et simulations

La technique d'imagerie en défaut de mise au point a été introduite par Glover *et al.* (1995). Elle permet de mesurer la taille de gouttes dans des sprays poly-dispersés. Le principe de la mesure est

basé sur l'analyse des interférences entre les rayons subissant une réflexion interne et une réflexion externe, respectivement d'ordre  $P = 0$  et  $P = 1$  (Figure 1).

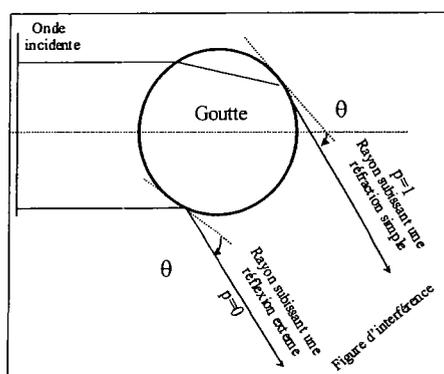


Figure 1. Principe de l'imagerie en défaut de mise au point

Afin d'avoir la meilleure visibilité des franges, pour des gouttes d'eau (indice de réfraction  $m = 1,335$ ), c'est à dire, avoir la plus grande amplitude d'intensité des franges  $\left( \frac{I_{\text{frange lumi}}}{I_{\text{frange sombre}}} \right)$ , nous cherchons la

bande angulaire pour laquelle l'intensité des rayons subissant une réflexion interne ( $P = 0$ ) est la plus proche de celle des rayons subissant une réflexion simple ( $P = 1$ ). Ainsi, nous utilisons le modèle de van de Hulst (1981), basé sur l'optique géométrique, afin de calculer les intensités des différents modes de diffusions ( $P < 7$ ), pour une onde incidente polarisée parallèlement puis perpendiculairement au plan de diffusion.

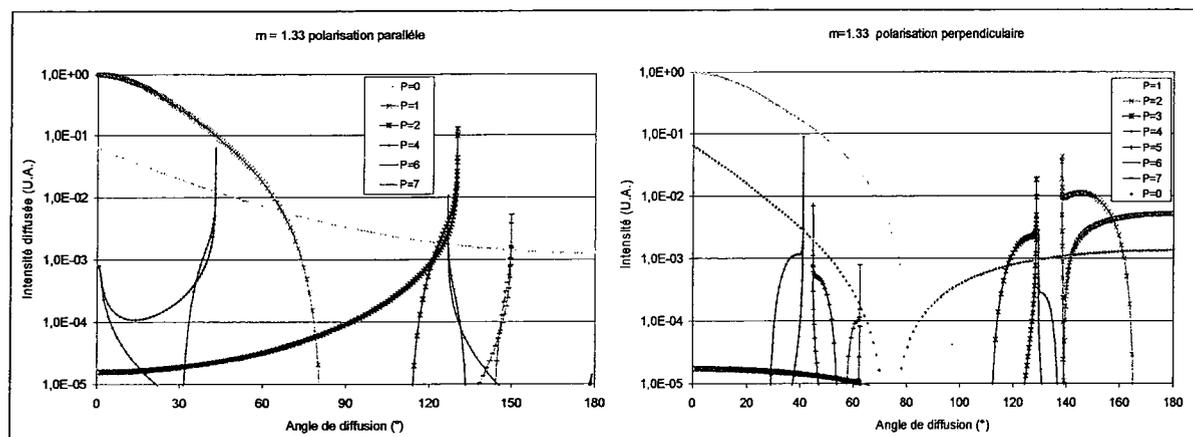


Figure 2. Diagrammes de diffusion pour des gouttes d'eau et des ondes incidentes polarisées parallèlement puis perpendiculairement au plan de diffusion

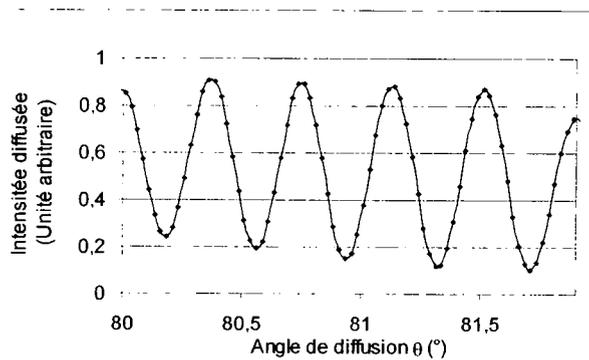
Sur ces deux simulations, nous retrouvons les arcs-en-ciel géométriques, pour les ordres de diffusion supérieurs ou égaux à 2. Ceux-ci sont définis du point de vue de l'optique géométrique comme les angles limites d'existence d'un ordre de diffusion ( $138^\circ$  pour l'ordre de diffusion  $P = 2$  et une polarisation perpendiculaire).

De plus, nous observons que les intensités des rayons subissant une réflexion externe ( $P = 0$ ) et celle des rayons subissant une réflexion simple ( $P = 1$ ) s'égalisent respectivement aux angles de diffusion  $\theta = 80^\circ$  et  $\theta = 67^\circ$  pour des ondes incidentes polarisées respectivement parallèlement puis perpendiculairement. En outre, à ces angles, la réflexion simple et la réflexion simple sont prédominantes vis-à-vis des autres modes de diffusion.

Or, pour notre configuration expérimentale, nous ne disposons sur TOSQAN que de hublots positionnés à  $90^\circ$ : ainsi nous choisissons, pour la suite, une onde incidente polarisée perpendiculairement.

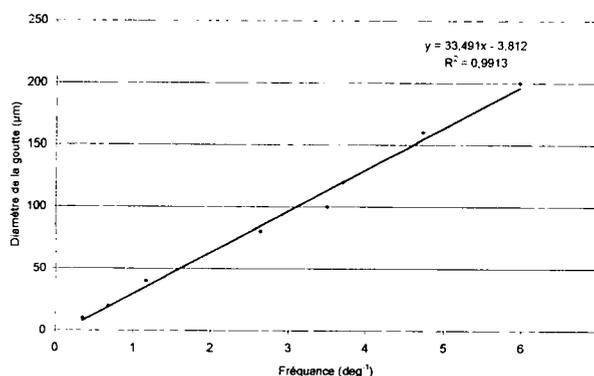
A l'aide d'un code de calcul en théorie de Lorenz-Mie (Mèès *et al.*, 2003), nous simulons la diffusion d'une onde incidente de longueur d'onde  $\lambda = 532$  nm et polarisée perpendiculairement par une goutte d'eau à 20°C ( $m \approx 1,335$ ).

Ces simulations sont effectuées autour de l'angle de 80° car, comme vu précédemment à cet angle, les rayons d'ordre  $P = 0$  et  $P = 1$  ont même intensité.



**Figure 3. Diffusion de la lumière par une goutte ( $d = 100 \mu\text{m}$ )**

Différentes simulations ont été réalisées pour différentes tailles de gouttes. Le résultat de ces simulations est présenté sur la Figure 4.



**Figure 4. Relation théorique entre le diamètre des gouttes et la fréquence angulaire des oscillations**

Ainsi, la fréquence angulaire des franges d'interférence est linéairement dépendante de la taille des gouttes.

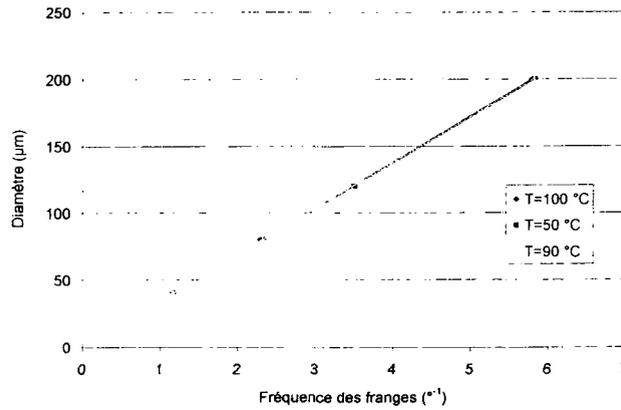
#### Influence de la température des gouttes

Lors de mesures en présence de transferts thermique et/ou massique, la température des gouttes que nous cherchons à caractériser n'est pas connue précisément. Ainsi, nous nous intéressons à la sensibilité de la relation entre la fréquence des franges d'interférences et le diamètre des gouttes en fonction de leur température et donc de leur indice de réfraction. Pour cela, nous réalisons le même type de simulations que précédemment (Figure 4), mais en faisant varier l'indice de réfraction des gouttes (par l'intermédiaire de leur température, Figure 5).

Le Tableau 1 récapitule la variation d'indice de réfraction de l'eau en fonction de la température.

**Tableau 1. Relation entre l'indice de réfraction de l'eau et la température ( $\lambda = 532$  nm)**

T (°C)	m
50	1,3309
90	1,3223
100	1,3196

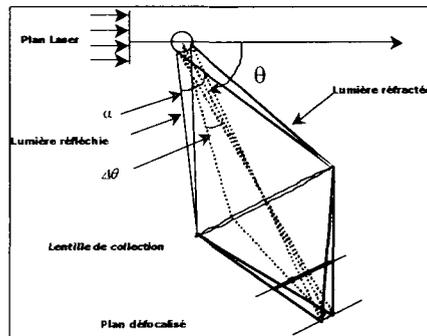


**Figure 5. Influence de l'indice de réfraction des gouttes sur la relation théorique reliant la fréquence des franges au diamètre des gouttes**

Ainsi, nous observons que les variations d'indice de réfraction induites par le réchauffement des gouttes (variations sur la deuxième décimale) ne perturbent pas la relation entre la fréquence des franges et le diamètre des gouttes. Donc, grâce à cette technique, nous sommes en mesure de caractériser des gouttes sans connaître préalablement leur température.

### Description du montage optique

La Figure 6 illustre le montage optique dédié à la technique d'imagerie en défaut de mise au point.



**Figure 6. Montage optique réalisé**

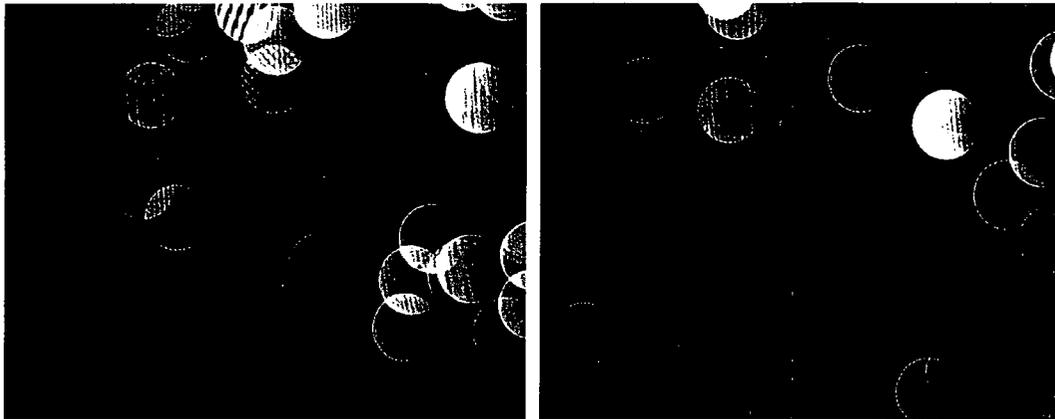
Le dispositif optique dédié à ce diagnostic est identique à celui utilisé pour la vélocimétrie par image de particule (P.I.V.). La source de lumière utilisée est un laser Nd : YAG pulsé dont chaque pulse a une énergie de 50 mJ, à la longueur d'onde  $\lambda = 532 \text{ nm}$ . Une lentille cylindrique est utilisée afin de créer une nappe laser dont l'épaisseur est approximativement  $2000 \mu\text{m}$ . Côté réception, nous utilisons un objectif Nikon commercial de 60 mm. Au plan focal de ce dispositif optique, nous observons dans chaque goutte deux spots lumineux : ceux-ci sont appelés points de gloire (van de Hulst, 1981, et Figure 7).



**Figure 7. Image de la goutte dans le plan focal (observation des points de gloire sur un goutte d'environ 1 mm)**

Ces points de gloire correspondent aux rayons réfractés ( $P = 1$ ) et aux rayons réfléchis ( $P = 0$ ). La distance qui les sépare dépend de la taille de la goutte. En revanche, pour avoir une bonne résolution sur cette mesure, un zoom important est nécessaire.

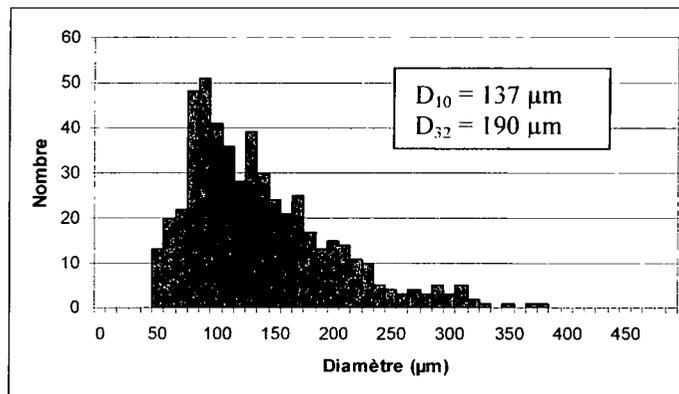
Si nous observons hors du plan focal (Figure 6), les rayons réfléchis et réfractés forment une figure d'interférence.



**Figure 8. Figures d'interférence observées au plan de défocalisation**

Ainsi, la mesure de la fréquence des franges permet de déduire le diamètre et la position de chaque goutte du champ considéré.

A l'aide de ce montage optique, nous avons mesuré la granulométrie du spray généré par la buse TG\_3.5, alimentée à un débit de  $30 \text{ g.s}^{-1}$ , pour des conditions normales de température et de pression ( $P_{\text{TOSQ}} = 1 \text{ bar}$  ;  $T_{\text{gaz}} = 293 \text{ K}$  ;  $T_{\text{inj}} = 293 \text{ K}$ ).



**Figure 9. Granulométrie du spray mesuré à 1 m de l'injection par imagerie en défaut de mise au point**

Des mesures à l'aide d'un Anémomètre Phase Doppler (P.D.A.) commercial Dantec ont été réalisées sur le même injecteur, pour les mêmes conditions de température, pression et débit d'alimentation. Le diamètre arithmétique moyen ( $d_{10}$ ) ainsi mesuré est de  $115 \mu\text{m}$ . Cette mesure diffère de celle réalisée par imagerie en défaut point (16 %), mais cet écart peut s'expliquer par deux effets. Premièrement, pour des raisons liées à nos contraintes expérimentales, les mesures PDA ont été réalisées beaucoup plus près de l'injecteur (20 cm). De plus, la dynamique de mesure d'un anémomètre phase Doppler est limitée. Ainsi, il est difficile de mesurer simultanément des petites et des grosses particules. Ceci peut expliquer le fait que le diamètre mesuré par le PDA est légèrement plus faible (la mesure des grosses gouttes n'étant pas validée).

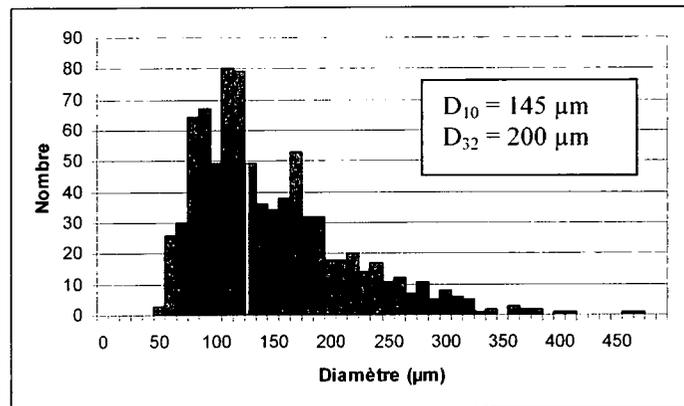
### Mesures dans l'enceinte TOSQAN en présence de transferts massique et thermique

L'implantation de cette technique sur l'expérience TOSQAN, n'a pas posé de problème particulier, du fait de la similitude entre celle-ci et la technique PIV, déjà implantée sur l'expérience (Porcheron *et al.*, 2002). Seule la contrainte sur l'angle de diffusion diffère par rapport à un montage P.I.V. classique.

Ainsi, nous avons réalisé des mesures lors d'un essai d'aspersion dans TOSQAN. Cet essai est dédié à l'analyse des transferts de masse et de chaleur entre un spray et son environnement, pour des conditions thermo-hydrauliques représentatives de celles d'un accident grave dans une enceinte de confinement de réacteur nucléaire. Les conditions thermo-hydrauliques pendant la mesure sont récapitulées dans le Tableau 2.

**Tableau 2. Conditions thermo-hydrauliques lors de la mesure**

$T_{\text{gaz}}$ (K)	$P_{\text{vap}}$ (bar)	$P_{\text{air}}$ (bar)	$Q_{\text{asp}}$ (g.s <sup>-1</sup> )
378,5	1,15	1	30



**Figure 10. Granulométrie mesurée pendant un essai d'aspersion**

## Conclusion

La technique d'imagerie en défaut de mise au point est une technique optique très utile pour le diagnostic des sprays. Cette technique a été appliquée pour caractériser le spray généré par une buse lors de nos essais d'aspersion dans TOSQAN, mais elle peut être appliquée à différents types d'écoulements tels que les écoulements à bulles, la caractérisation de l'injection diesel, l'impaction de jets liquides et les sècheurs de spray. Du fait de son grand champ de mesure, cette technique peut se révéler particulièrement intéressante pour caractériser la morphologie globale d'écoulement diphasique. Dans le futur, nous tenterons d'appliquer cette technique pour caractériser l'impaction d'un jet liquide sur une surface sèche (étude en cours au SERAC). Ainsi, nous pourrions mesurer simultanément les vitesses et taille des gouttes avant et après l'impaction.

## Références bibliographiques

Glover, A.R., Skippon, S.M, Boyle, R.D. (1995) Interferometric laser imaging for droplet sizing: a method for droplet-size measurement in sparse spray systems, Applied Optics, Vol. 34, No. 36.

Méès, L., Lebrun, D. et Gréhan, G. (2003). Réfractométrie d'arc-en-ciel et imagerie en défaut de mise au point, Rapport LESP 06-03, Contrat IRSN-CORIA. DA 23275/CA 31000203..

Porcheron, E., Thause, L., Malet, J., Cornet, P., Brun, P. and Vendel, J. (2002). Simultaneous application of Spontaneous Raman Scattering and LDV / PIV for steam / air flow characterization. 10<sup>th</sup> International Symposium on Flow Visualization, Kyoto, Japan, 26-29 august,

van de Hulst, H.C. (1981) Light scattering by small particles, Dover Publications, Inc., N .Y, pp.13-249, originally published (1957) by John Wiley, & Sons, Inc., N .Y.

# MISE EN ŒUVRE DE DIAGNOSTICS COUPLES POUR L'ETUDE DE LA CAPTATION D'AEROSOLS PAR UN SPRAY D'EAU

D. Marchand\*<sup>1,2</sup>, E. Porcheron<sup>1</sup>, P. Lemaitre<sup>1</sup>, A. Nuboer<sup>1</sup>, J. Vendel<sup>1</sup>, L. Bouilloux<sup>1</sup> et G. Grehan<sup>2</sup>

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

Laboratoire d'Expérimentations en Confinement, Épuration et Ventilation  
BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex

(2) CNRS UMR 6614 CORIA, Laboratoire Énergétique des Systèmes et Procédés  
Site Universitaire du Madrillet. Avenue de l'université BP 12

76 801 Saint Etienne du Rouvray Cedex

Coordonnées de l'auteur : téléphone : +33 (0)1 69 08 20 46, Fax : +33 (0)1 69 08 91 36

E-mail : denis.marchand@irsn.fr

## TITLE

**Implementation of coupled diagnostics for experimental study of aerosols washout by water spray**

## ABSTRACT

This work lies within the general framework of the studies and research on the security of Pressurized Water Reactors (PWR). In order to study the physical phenomena involved in the washout of aerosols by spraying water for thermal hydraulic conditions representative of a severe accident, the Institute for Radiological Protection and Nuclear Safety (IRSN) has developed the TOSQAN facility. This article presents a bibliographical review exposing the phenomenology of the severe accident and characteristics of aerosols produced by the PWR core degradation. The basic phenomena controlling the collection of aerosols and the feasibility of the implementation of coupled diagnostics use for aerosols washout characterization are also presented in this paper.

## RESUME

Cette étude s'inscrit dans le cadre général des études et recherches sur la sûreté des Réacteurs nucléaires à Eau Pressurisée (REP). Afin d'étudier les phénomènes physiques mis en jeu dans la captation des aérosols par les gouttes d'eau dues à l'aspersion, pour des conditions thermohydrauliques représentatives de celles d'un accident grave de REP, l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) a développé l'expérience TOSQAN. Cet article présente une revue bibliographique exposant la phénoménologie des accidents graves et les caractéristiques des aérosols produits par la dégradation du cœur d'un REP en situation accidentelle, ainsi que les phénomènes de base gouvernant la captation des aérosols. Ensuite, la faisabilité de la mise en œuvre de diagnostics couplés pour la caractérisation expérimentale de la captation d'aérosols par un spray d'eau est étudiée.

## 1. Introduction

Lors d'un hypothétique accident grave de REP, l'enceinte de confinement peut être pressurisée par de la vapeur d'eau libérée à haute pression par une brèche du circuit primaire. La perte du refroidissement conduirait alors à la dégradation du cœur du réacteur, ce qui entraînerait un relâchement de produits de fission (PF), sous la forme d'aérosols et d'espèces gazeuses. Afin de préserver l'intégrité du bâtiment réacteur, un système d'aspersion permet, par l'injection de sprays d'eau froide, de diminuer la pression de l'enceinte de confinement et de refroidir le mélange gazeux. D'autre part, l'aspersion permet de piéger les produits de fission mis en suspension dans l'enceinte de confinement et de les rabattre vers le puisard (Grist, 1982).

La modélisation des phénomènes mis en jeu dans le rabattement des produits de fission par l'aspersion présente un intérêt primordial pour l'évaluation du terme source présent dans l'enceinte de confinement en situation accidentelle. De nombreuses expériences menées à grande échelle sur le

thème du relâchement des produits de fission sont décrites dans la littérature (DEMONA, VANAM et KAEVER (Fischer and Kanzleiter, 1999), NSPP (Adams et al., 1986) et CSE (Hilliard and Postma, 1981)), mais peu s'intéressent à ces phénomènes dans des conditions thermodynamiques bien maîtrisées. Afin d'étudier les paramètres pilotant la captation d'aérosols par un spray représentatif d'un système d'aspersion de REP, dans des conditions thermohydrauliques représentatives de celles d'un accident grave, l'IRSN a développé l'expérience TOSQAN (Zavaleta and Landesman, 1997). TOSQAN possède un haut niveau d'instrumentation qui permet, notamment, de caractériser localement les écoulements en conditions monophasique ou diphasique (Porcheron et al., 2003).

## 2. Etat de l'art bibliographique

### 2.1. Conditions représentatives d'accident grave de REP et aspersion

Au cours d'un accident grave, les différents phénomènes physiques successifs, susceptibles de se produire et de conduire au relâchement de PF du cœur dans l'enceinte de confinement formant ce que l'on appelle le « Terme Source » sont :

- le dénoyage du cœur,
- l'échauffement et la dégradation des gaines de combustible,
- l'entraînement des PF dans le circuit primaire, sous forme gazeuse et aérosol, par les gaz chauds issus du cœur, puis le dépôt dans ce circuit et le relâchement dans l'enceinte de confinement,
- la rupture de la cuve de protection et l'érosion du radier.

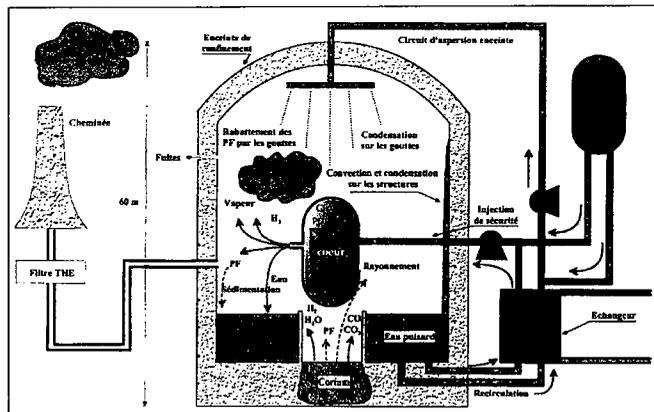


Fig. 1 Accident grave.

Lors d'un hypothétique accident grave (comme une brèche dans le circuit primaire), de la vapeur d'eau, des produits de fission et des matériaux de structures sont libérés dans l'enceinte de confinement. La libération de cette vapeur va entraîner une élévation de la pression et de la température dans l'enceinte. Typiquement, les conditions thermodynamiques de l'atmosphère sont : une pression de 5 bars, une température de 413 K et une atmosphère saturée en vapeur d'eau, constituée d'un mélange air-vapeur-gaz incondensables (H<sub>2</sub>, CO, CO<sub>2</sub>, etc.). De nombreuses variétés d'aérosols sont également produites. Afin de préserver le confinement, dès lors que la pression dans l'enceinte dépasse la pression critique de 2,4 bars (pour des REP de 1300 MW), l'aspersion (le système EAS<sup>1</sup>) est automatiquement déclenchée. Les rampes du circuit EAS pulvérisent de l'eau additionnée de soude dans l'enceinte, afin de diminuer la pression qui y règne et de rabattre au sol les éléments radioactifs éventuellement disséminés.

### 2.2. Relâchements des PF

Le relâchement des produits de fission hors du combustible d'un REP lors d'un régime transitoire accidentel est fonction de la température atteinte par ce combustible (seuil compris entre 1350°C et 1800°C) et de la durée d'un tel échauffement. Ceci nécessite la prise en compte de la température dans les modèles d'émission des PF. Lors de la fusion du cœur, des aérosols sont émis en abondance : notamment, la plus grande partie des PF est produite sous la forme particulaire (taille voisine de 1 µm). Elle sera mélangée à des aérosols issus des matériaux de structure, des barres de contrôle, des gaines, etc. La granulométrie de ces aérosols est inférieure à 100 µm, avec une densité moyenne matérielle de 3 g.cm<sup>-3</sup> ; seule une fraction des aérosols formés migrera du circuit primaire vers l'enceinte de confinement. Des essais analytiques PITEAS (CEA-PSN/EDF), HEVA-VERCORS (IPSN-EDF) (Ducros et al., 2001), et plus récemment, depuis 1996, le programme VERCORS-HT et RT, étudient le relâchement des PF faiblement et fortement volatils. Un important programme de recherche PHEBUS-PF (IRSN) est en cours d'achèvement sur le réacteur PHEBUS, pour pallier, en

<sup>1</sup>Système d'Aspersion dans l'Enceinte et de recirculation de l'eau d'aspersion

particulier, l'insuffisance de données relatives aux aérosols (nature, quantité et comportement) libérés dans une situation de fusion de cœur.

### 2.3. Captation des aérosols

#### □ Rabattement des PF et aspersion

Le rabattement des PF par l'aspersion est un phénomène complexe puisqu'il nécessite à la fois une bonne connaissance de l'évolution des caractéristiques des gouttelettes d'eau au cours de leur chute dans l'enceinte, ainsi que la compréhension des mécanismes de collecte des aérosols par ces gouttes. En effet, la distribution granulométrique des gouttes issues de la pulvérisation évolue (au cours de leur chute) du fait de la condensation de la vapeur d'eau présente lors de l'accident, par évaporation ou par coalescence des gouttes (Lemaitre, 2004). De plus, ce phénomène de rabattement peut être dépendant de la dynamique des écoulements du mélange gazeux qui se développent dans l'enceinte, eux-mêmes influencés par le mécanisme d'entraînement induit par le déclenchement de l'aspersion.

#### □ Modèles de captation - Notion caractéristique

L'efficacité élémentaire de captation (ou pouvoir de captation) est définie comme le rapport du nombre d'aérosols collectés sur le nombre d'aérosols présents dans le volume balayé par la gouttelette. Comme pour la vitesse de dépôt, ce concept sous-entend une concentration homogène d'aérosols loin de la gouttelette. Initialement, la notion d'efficacité de captation a été introduite pour rendre compte des effets liés à l'inertie des particules, notamment par Langmuir (Langmuir, 1948) dans ses travaux concernant la météorologie. De nombreux travaux concernant la mesure et la formulation théorique de l'efficacité de captation sont publiés dans la littérature. Une synthèse de ces travaux a été faite par Rimberg et Peng (Rimberg and Peng 1977). Le rabattement des aérosols par des gouttes d'eau en chute libre résulte de différents mécanismes de collecte dont l'efficacité varie suivant les conditions opératoires.

La captation des aérosols par l'eau d'aspersion est due à des *interactions mécaniques* et *phorétiques* :

- les interactions mécaniques sont liées au champ de vitesse de l'écoulement autour de la gouttelette et à des vitesses de glissement des aérosols par rapport au fluide (on distingue l'impaction inertielle, l'interception et la diffusion),
- les interactions phorétiques sont liées à un gradient de concentration de la vapeur (diffusiophorèse) ou un gradient de température (thermophorèse) localisé autour de la gouttelette.

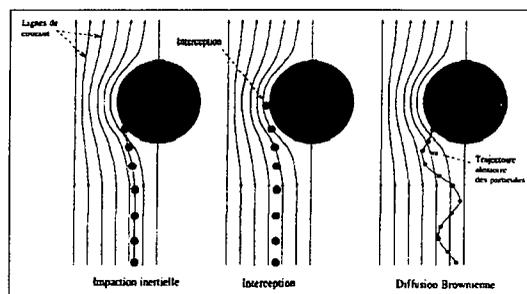


Fig. 2 Interactions mécaniques.

Les modèles de capture des aérosols sont basés sur des corrélations semi-empiriques afin de calculer l'efficacité de captation par ces différents phénomènes. L'efficacité est calculée pour chaque classe de tailles de particule et est supposée être la somme de ces cinq effets élémentaires.

### 3. Résultats expérimentaux

#### 3.1. Description du dispositif expérimental DECAPE (Dispositif pour l'Etude de la Captation des Aérosols par une Pulvérisation d'Eau)

Les expériences réalisées à partir du dispositif DECAPE (Fig. 3) (en conditions atmosphériques :  $P_{atm}$  et  $T_{ambiant}$ ) visent à étudier la faisabilité de la mise en œuvre de diagnostics couplés pour la caractérisation de la captation par un spray d'eau, d'aérosols présents dans une enceinte

### ➤ Enceinte expérimentale

Les essais sont réalisés dans une enceinte expérimentale étanche réalisée en PMMA, de forme parallélépipédique avec une hauteur de 1,40 m et une base carrée de 0,8 m<sup>2</sup>, soit un volume interne de 1,1 m<sup>3</sup>.

### ➤ Système de production des aérosols

L'enceinte est équipée de plusieurs piquages (2 sur le couvercle et 2 sur les cotés) pour l'introduction des aérosols. Un disperseur de poudre (RBG 1000, PALAS), à brosse rotative, génère les aérosols solides dont le diamètre peut être compris entre 1 µm et 50 µm.

### ➤ Système d'aspersion

L'enceinte est équipée d'un piquage (Fig. 3.(b)) au centre du couvercle pour le passage de la buse d'aspersion et de deux évacuations d'eau en partie basse. La buse d'aspersion est mobile suivant l'axe vertical. Elle génère un spray type cône plein.

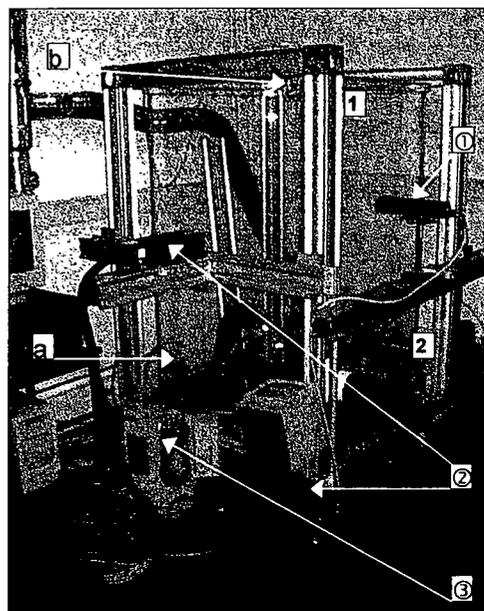


Fig. 3 Enceinte expérimentale DECAPE.

① CCD ; ② LASER ; ③ Générateur d'aérosols

Pour ces essais, la caractérisation de la distribution granulométrique des gouttes du spray est effectuée à l'aide de la technique d'Anémométrie Phase Doppler (PDA) exposée au §3.2 ainsi qu'une caméra rapide XS-4 (IDT) qui permet des visualisations du spray et des aérosols éclairés par un plan laser. Des mesures de granulométrie et de concentration d'aérosols (granulomètre WELAS de PALAS, §3.3) sont réalisées conjointement dans DECAPE.

### 3.2. Caractérisation du spray

L'Anémométrie Phase Doppler (DANTEC) a pour objectif de mesurer le couple vitesse/diamètre d'une particule sphérique individuelle traversant un volume de mesure créé par l'intersection de deux faisceaux laser focalisés concourants. L'intérêt de cette technique est la mesure des corrélations taille/vitesse dans un spray. La distribution granulométrique des gouttes d'eau issues de la buse D1-35 de Spraying Systems (angle de spray de 19°), avec un débit de 10 g.s<sup>-1</sup> est présentée sur la Fig. 4.

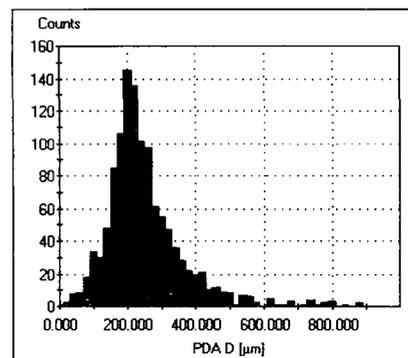


Fig. 4 Granulométrie des gouttes d'eau issues de la buse D1-35, mesurée sur l'axe.

### 3.3. Caractérisation initiale des aérosols utilisés

Une analyse de la distribution en taille des particules de carbure de silicium (SiC) est réalisée avec l'AEROSIZER de TSI. Les particules ont au préalable été placées en étuve (105°C) afin de minimiser leur agglomération.

Une autre analyse est réalisée avec un granulomètre Welas de PALAS utilisant le principe de la diffusion de la lumière blanche pour mesurer la concentration et le diamètre des particules (0,18 µm à 40 µm) en suspension dans l'air. Les principales applications de ce dispositif à notre étude concernent le comptage des particules dans l'enceinte et la mesure de l'évolution du diamètre des aérosols au cours d'un essai.

Une comparaison des mesures de granulométrie réalisées avec ces deux techniques est effectuée. Le diamètre géométrique mesuré avec l'AEROSIZER (1,06 µm) est du même ordre de grandeur que celui mesuré avec le granulomètre WELAS (1,02 µm) (2 µm théorique). Le granulomètre WELAS pourra donc être utilisé pour déterminer la granulométrie des particules au sein de DECAPE.

### 3.4. Caractérisation du rabatement des aérosols par l'aspersion

#### Résultats expérimentaux :

Pour l'étude, les aérosols sont des particules de SiC caractérisées au §3.3. L'injection des aérosols dans DECAPE est réalisée par le piquage bas (Fig. 3,(a)), à 11 cm du fond de l'enceinte. La buse d'aspersion est positionnée à 23 cm du haut de l'enceinte (Fig. 3,(b)). Trois essais ont été réalisés, un sans aspersion (Essai 0), puis deux (Essai 4 et Essai 5) avec une aspersion qui débute à 870 s par rapport au début de chaque essai. Les mesures des diamètres des aérosols, effectuées avec le granulomètre WELAS, se font pour l'essai 0 et l'essai 4 en bas de l'enceinte (bord de spray) et pour l'essai 5 en haut de l'enceinte (au-dessus du spray).

La Fig. 5 présente l'évolution temporelle du nombre de particules normalisés ( $N/N_0$ ) (avec  $N_0$  le nombre initial de particules et  $N$  le nombre de particules à l'instant  $t$ ), au cours des essais 4 et 5.

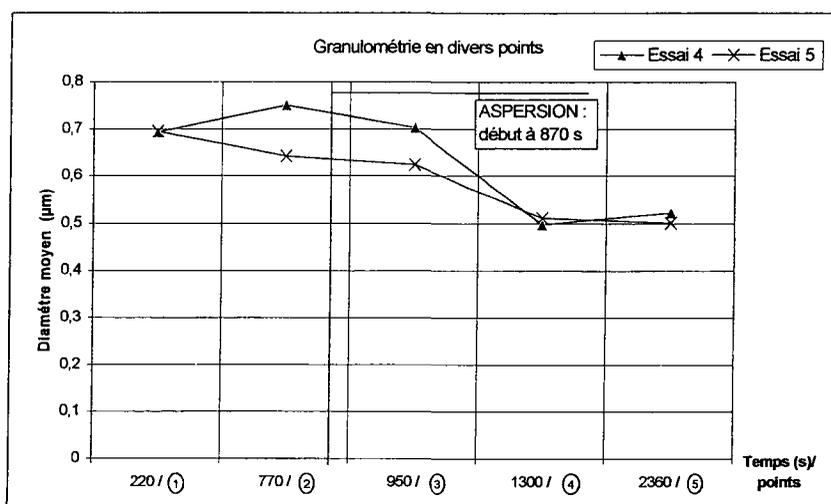


Fig. 5 Evolution temporelle du nombre de particules normalisé.

Sur la Fig. 5, avant l'aspersion (déclenchée à 870 s), le phénomène de sédimentation se traduit par une diminution du nombre de particules en suspension au cours du temps. Le taux de sédimentation est plus important pour l'essai 5 par rapport à l'essai 4, car en point bas de l'enceinte, la sédimentation des particules est couplée à l'apport de particules issues de la sédimentation des particules qui s'opère en partie haute de l'enceinte. Le effet de l'aspersion est mis en évidence pendant les essais 4 et 5 par le brusque changement de pente de ( $N/N_0$ ). La cinétique du dépôt des aérosols est pilotée par l'aspersion et les écoulements associés. Notons que le temps nécessaire pour que 95% de ces aérosols soient rabattus est au minimum de 4000 s pour un essai avec aspersion alors qu'il est de plus de 10000 s sans aspersion (voir Tab. 1). Au cours de l'aspersion, ( $N/N_0$ ) reste toujours supérieur en partie haute de l'enceinte par rapport à la partie basse. En effet, en partie basse de l'enceinte, les particules sont rabattues par le spray alors qu'en partie haute, exempt de spray, elles sont transportées via les écoulements générés le spray.

Type	Injection Aérosols		Aspersion		Point de mesure	Temps nécessaire pour rabattre 95% des aérosols
	Début	Fin	Début	Fin		
Essai 0	10 s	130 s	Sans	Sans	Bas (Fig. 3,(2))	> 10000 s
Essai 4	225 s	240 s	870 s	5400 s	Bas (Fig. 3,(2))	2000 s
Essai 5	225 s	240 s	870 s	6800 s	Haut (Fig. 3,(1))	4000 s

Tab. 1 Récapitulatif des essais.

La Fig. 6 présente l'évolution temporelle du diamètre des aérosols de SiC au cours des essais 4 et 5, à différents temps caractéristiques notés ① à ⑤ sur la Fig. 5, décrits ci-après.

① Après l'injection d'aérosols, la granulométrie des particules en suspension est identique entre les mesures effectuées en haut (essai 5) et en bas (essai 4) de l'enceinte.

② Avant l'aspersion, une augmentation du diamètre moyen des particules est observée en zone basse, liée à l'apport de particules par sédimentation venant de la zone haute de l'enceinte. Ceci se traduit conjointement par une décroissance du diamètre moyen des aérosols en partie haute l'enceinte.

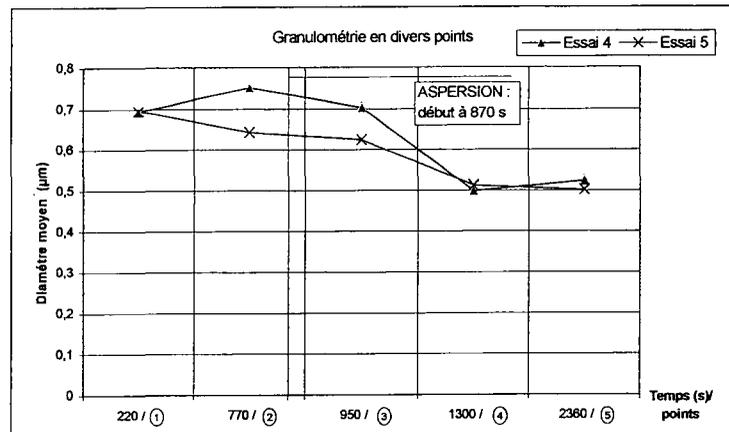


Fig. 6 Evolution temporelle du diamètre des aérosols.

③ - ④ Au cours de l'aspersion, le diamètre moyen des aérosols diminue par rapport au diamètre initial mesuré en ①.

⑤ Il n'y a plus d'effet notable de l'aspersion en termes de (N/N0) et de granulométrie des particules en suspension. Le diamètre moyen des aérosols en suspension n'évolue plus.

L'aspersion a diminué le nombre d'aérosols en suspension dans l'enceinte ainsi que le diamètre moyen de ceux-ci. Signalons que les gouttelettes d'eau ne semblent pas perturber la mesure du diamètre des aérosols par le granulomètre WELAS.

#### 4. Conclusion et perspectives

L'objectif de ce travail a d'abord consisté en une étude bibliographique sur la phénoménologie des accidents graves et sur les expériences analytiques et à grande échelle menées dans le domaine nucléaire, à propos de la captation de produits de fission par un spray. Ensuite, l'étude a montré la faisabilité de mesures de granulométrie et de concentration en particules au cours du temps en utilisant le granulomètre optique WELAS de PALAS. Ces mesures ont été réalisées dans une enceinte confinée en présence d'aspersion en conditions atmosphériques. Les perspectives de l'étude sont de poursuivre des essais dans l'installation TOSQAN pour des conditions thermohydrauliques d'accident grave de REP.

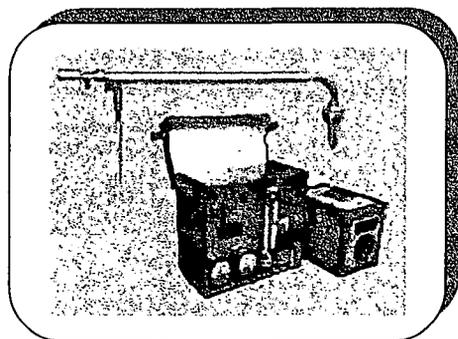
#### Références

- [1] Adams, R. E., Longest, A. W. and Tobias, M. L. Influence of steam-air environments on the behavior of aerosols in containment. 1078-1081.
- [2] Ducros, G., Malgouyres, P. P., Kissane, M., Boulaud, D. and Durin, M. (2001) Fission product release under severe accidental conditions: general presentation of the program and synthesis of VERCORS 1-6 results. *Nuclear Engineering and Design*, **208**(2), 191-203.
- [3] Fischer, K. and Kanzleiter, T. (1999) Experiments and computational models for aerosol behaviour in the containment. *Nuclear Engineering and Design*, **191**(1), 53.
- [4] Grist, D. R. (1982) Spray removal of fission products in PWR containments. *SRD-R-267*
- [5] Hilliard, R. K. and Postma, A. K. (1981) Large-scale fission product containment tests. *Nuclear Technology*, **53**(2), 163-175.
- [6] Langmuir, I. (1948) The production of rain by a chain reaction in cumulus clouds at temperatures above freezing. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **5**(5), 175-192.
- [7] Lemaître, P. (2004) "Développement et application de la réfractométrie arc-en-ciel global pour l'étude des transferts massique et thermique dans un spray." Thèse, INSA de Rouen, Rouen.
- [8] Porcheron, E., Brun, P., Cornet, P., Malet, J. and Vendel, J. (2003) Optical diagnostics applied for single and multi-phase flow characterization in the tosqa facility dedicated for thermal hydraulic containment studies *The 10th International Topical Meeting on Nuclear Thermal Hydraulics (NURETH-10)*, Seoul, Korea.
- [9] Rimberg, D. and Peng, Y. (1977). Aerosol collection by falling droplets. *Air Pollution Control and Design Handbook*, P. N. Cheremisinoff and R. A. Young, eds., Marcel Dekker, New York, p 747-777.
- [10] Zavaleta, P. and Landesman, C. (1997) Expérience TOSQAN - dimensionnement et description de l'installation expérimentale. *Rapport d'étude SERAC/LPMC/97-02, IRSN/DPEA/SERAC, Saclay.*

## QUALITE DE L'AIR

### *Prélèvements et Mesures à l'Emission*

*Prélèvement manuel de poussières, gaz, métaux lourds, dioxines, ...*



La gamme d'appareils *METLAB* présente un ensemble complet d'éléments pour les prélèvements manuels en cheminées.

Cette gamme robuste et fiable propose différentes tailles de cannes de prélèvement, différents matériaux inox, verre, etc., et différentes technologies : filtres in situ, ex situ, chauffés, doigt de gant.

Une version spéciale permet de prélever isocinétiquement les dioxines, HAP, etc.

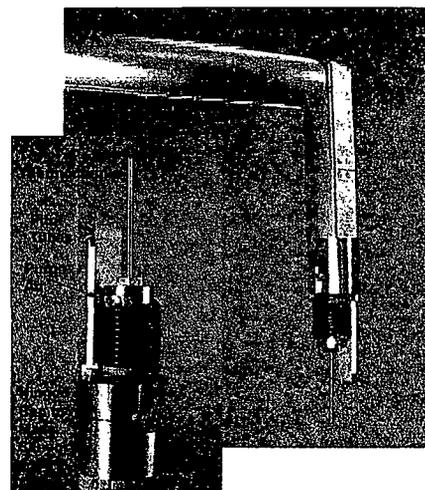
Le matériel est conforme aux normes Européennes en vigueur.

### *Analyseur de poussières en temps réel à l'émission*

Equipé d'une microbalance interne, le TEOM 7000 calcule en temps réel la masse de poussières prélevée pendant une traverse réglementaire de cheminée. Le réglage de l'isocinétisme est automatique.

Dès la fin du prélèvement, le TEOM 7000 calcule instantanément la concentration massique en poussières (totale, PM-10 ou PM-2,5) dans la cheminée.

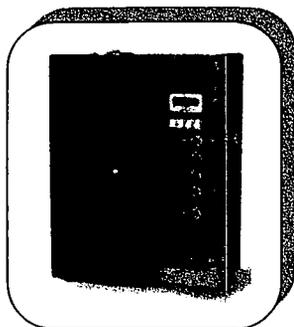
Idéal pour les mesures réglementaires et pour la recalibration d'analyseurs de poussières en continu le modèle 7000 termine en quelques heures une prestation de plusieurs jours avec un préleveur isocinétique traditionnel.



#### ECOMESURE

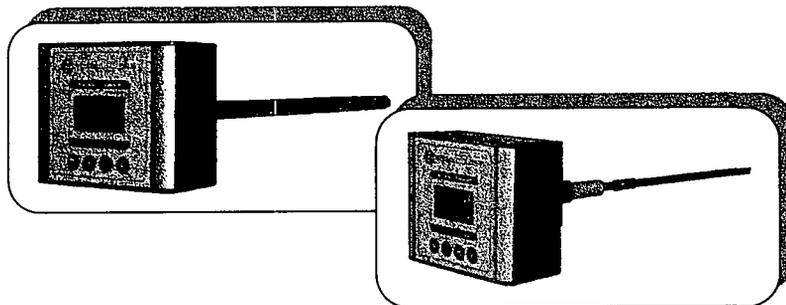
B.P. 13 - 3. rue du Grand Cèdre - F 91640 JANVRY  
Tél. : (+33) 01 64 90 55 55 - Fax : (+33) 01 64 90 55 66  
E-mail : [contact@ecomasure.com](mailto:contact@ecomasure.com) - [www.ecomasure.com](http://www.ecomasure.com)

## Analyseur granulométrique de poussières en temps réel ELPI



- ◆ Principe de mesure : séparation aérodynamique des poussières par impaction en cascade couplée à un système de détection en temps réel du nombre de poussières impactées sur chacun des 12 étages.
- ◆ Mesure de la concentration en nombre et en masse par classe de taille, de  $0,007 \mu\text{m}$  à  $10 \mu\text{m}$ .

## Mesure de poussières et de vitesse en continu



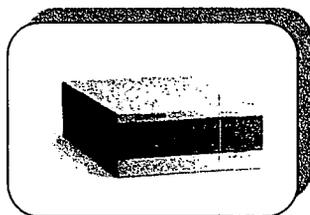
Mesure en continu de la concentration massique des poussières par principe triboélectrique.

Gamme très étendue d'analyseurs y compris pour les applications difficiles (gaz saturé en humidité par exemple).

Mesure de vitesse à l'aide d'un tube de pitot moyenné.

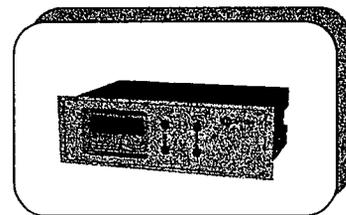
## Analyseurs de gaz

### Analyseurs de gaz par dilution MONITOR EUROPE



Mesure par méthodes spécifiques :  $\text{SO}_2$  par fluorescence UV,  $\text{NO}_x$  par chimiluminescence,  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$  par infra rouge, analyseur  $\text{NO-NO}_x$  haute concentration.

### Analyseur de gaz Dr FÖDISCH



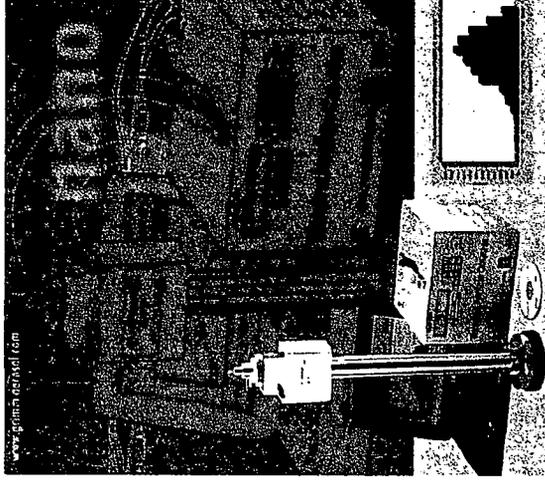
Analyseur infra rouge multigaz jusqu'à quatre gaz simultanément  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{NO}$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{O}_2$  (cellule électrochimique) MGA 23.

## ECOMESURE

# CONCENTRATION ET GRANULOMETRIE D'UN AEROSOL FIN ET ULTRA FIN

SMPS + C

**GRIMM AEROSOL** Technologie GmbH & Co. KG



- Système portable; fonctionnement sur batterie
- Mesure de concentration jusqu'à  $10^7$  part/cm<sup>3</sup>
- DMA pour une granulométrie entre 0,005 et 1,1  $\mu$ m sur 256 canaux
- Pilotage à distance via un modem

### ECOMESURE

B.P. 13 - 3, rue du Grand Cèdre 91640 JANVRY  
Tel : (+33) 01 64 90 55 55 - Fax : (+33) 01 64 90 55 66  
E-mail : [contact@ecomasure.com](mailto:contact@ecomasure.com) - [www.ecomasure.com](http://www.ecomasure.com)

### Principe de fonctionnement d'un CPC

Notre gamme de compteurs de condensation (CPC) consiste en des analyseurs capables de détecter en continu et en temps réel des particules de 3 à 3000 nanomètres de diamètre.

Ces compteurs peuvent mesurer des concentrations jusqu'à  $10^7$  part/l et même  $10^{10}$  part/l. Tous nos modèles sont compacts, portables et répondent rapidement à un changement de concentration.

Trois modèles différents sont disponibles :

- Le 5401 pour les applications salles propres
  - Le 5402 pour les applications environnementales
  - Le 5403 pour des mesures à haute concentration
- Ces compteurs peuvent fonctionner à 2 débits d'échantillonnages différents : 0,3 ou 1,5 l/min. Une fois l'unité activée, l'aérosol ambiant passe à travers un étage d'impaction optionnel, puis l'échantillon entre dans le saturateur chauffé à 35°C où il est exposé à une vapeur de butanol. Le flux de particules et de vapeur passe ensuite à travers le condenseur à 10°C, où la vapeur de butanol condense sur toutes les particules (voir figure 1). Ce phénomène augmente la taille initiale des particules. Ces gouttelettes de tailles plus importantes traversent ensuite un faisceau laser et chaque gouttelette diffuse de la lumière. Ces pics d'intensité de lumière diffusée sont comptés en continu et exprimés en particules/cm<sup>3</sup> chaque seconde sur un écran LCD. Ces informations sont ensuite enregistrées et transmises via un port série RS 232 à un système d'acquisition des données externes.

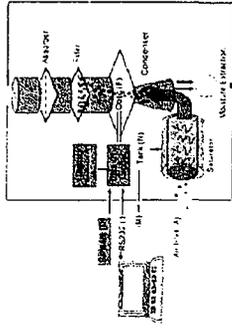


Figure 1

Nos compteurs de noyaux de condensation (CPC) et classificateurs(DMA) ont les caractéristiques suivantes :

- L'air de rejet est filtré par un absorbeur. Ainsi, les particules et les vapeurs d'alcool sont fortement réduites (voir figure 1).
- Le réservoir de butanol est intégré dans le CPC évitant les problèmes de manipulations. Le réservoir dispose d'un indicateur de niveau de remplissage et un capteur interne prévient une utilisation sans alcool.
- Nos CPC sont portables, compacts et peuvent fonctionner sur batterie (voir figure 2).
- Nos CPC n'ont pas besoin d'être reliés en permanence à un PC. Les données sont stockées sur une carte mémoire. Le transfert des données peut être fait ultérieurement sur le PC via le port RS 232. Ceci est aussi vrai pour l'utilisation du système complet SMPS+C.
- Un système unique de drainage de l'humidité condensée permet une utilisation prolongée même dans un environnement extérieur humide. Ce système empêche l'eau contenue dans le prélèvement d'aérosols de venir polluer la vapeur de butanol et donc de fausser la mesure finale.
- Trois entrées analogiques permettent de connecter jusqu'à trois capteurs externes au CPC (sonde de température, hygrométrie ou vitesse du vent). Ces données sont lues et enregistrées par le logiciel du CPC.

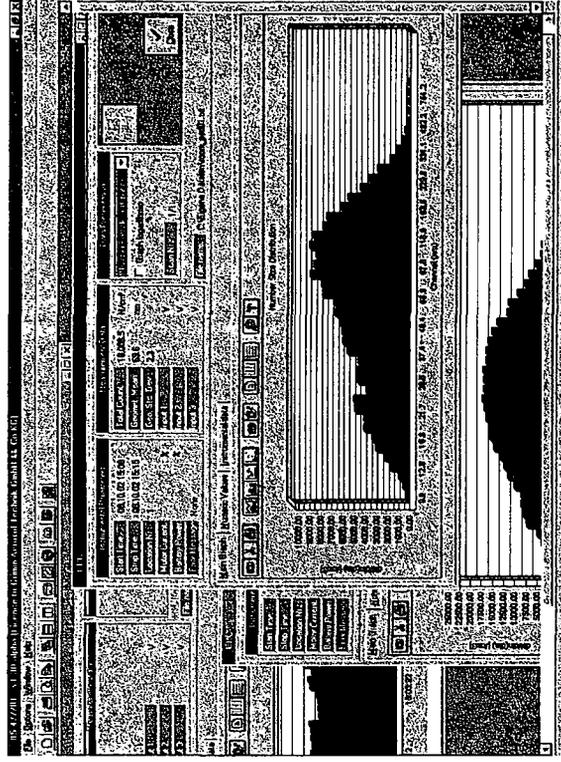
Une synchronisation pour une utilisation en tandem est intégrée. De plus, il est possible de combiner notre SMPS+C avec le compteur optique GRIMM afin de mesurer les aérosols jusqu'à 20 µm.

Le programme diffère :  
- l'utilisation du compteur  
- l'utilisation du SMPS+C

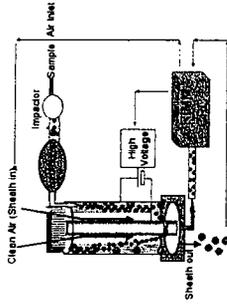
Le logiciel alimente en premier le DMA avec de l'air propre (sheath air) pour le nettoyer puis réalise un test de fuite automatiquement. Le système est alors prêt à fonctionner en mode manuel ou automatique.

Les données présentées par le logiciel sont :

- Valeurs moyennes de tous les spectres obtenus numériquement et graphiquement.
- Distribution granulométrique en nombre, en surface, en volume et en masse
- Présentation du comptage en temps réel
- Présentation des différentes données : concentration totale, moyenne, géométrique, écart type, valeur moyenne
- Résultats imprimables
- Données enregistrées compatibles Excel



L'électrode centrale balaye dans le temps une gamme de tension électrique. A chaque valeur de tension correspond une certaine mobilité électrique de particules et donc un certain diamètre. On peut donc prélever par un orifice calibré une taille de particules unique correspondant à une tension donnée de l'électrode centrale. Il ne reste plus qu'à mesurer la concentration de particules d'une même taille avec un CPC.



### Spécifications techniques DMA

- Modèle : DMA universel
- Gamme en nm sur le même DMA : 5-350 et 10-1100
- Nombre de canaux : jusqu'à 255
- Vitesse de balayage minimum : 90 sec.
- Particules : solides et liquide non volatiles
- Concentration max :  $10^7$  particules /  $cm^3$
- Débit d'échantillonnage : 0.3 l/min
- Débit « sheath air » : 3 l/min
- Alimentation « sheath air » : directement du CPC
- Impacteur d'entrée : buse standard intégré
- Buses : 5 différentes tailles de buses sont disponibles
- Neutraliseur\* : Source Am-241 ou Kr-85 dans châssis en acier inoxydable
- DMA : Tout en acier inoxydable
- Diamètre du tube : 8 cm
- Poids : 4 et 7 kg
- Alimentation : signal 16 bit provenant du CPC
- Filtre de retour air : intégré dans la buse

\* Le neutraliseur est envoyé séparément par le fournisseur. Cependant, une licence est obligatoire pour l'utilisation d'une source radioactive.

### Logiciel SMPS+C

Ce logiciel de pilotage et d'acquisition des données 32 bit fonctionne sous Windows (Windows 95 ou plus haut) sur un PC fixe ou portable. La gamme de taille complète du DMA est couverte en 90 sec. dans le mode rapide et même en moins de 60 sec. en mode « presscan ».

• Une fonction « auto-start » qui permet une préselection de 30 différentes dates / heures définissant un « Start » et « Stop » de la mesure. Dans ce mode, le système débutera et s'arrêtera automatiquement et enregistrera les données sur la carte mémoire du CPC ou sur un PC connecté.

• Le CPC, ou même le système SMPS+C, peuvent être pilotés à distance via un téléphone portable ou fixe. Il suffit pour cela d'insérer une carte modem dans le CPC et de raccorder le CPC à une ligne téléphonique.

• Tous nos châssis de CPC ainsi que le DMA complet sont fabriqués en acier inoxydable afin de garantir une meilleure stabilité chimique, une durée de vie plus longue et une manipulation aisée.

• Les classificateurs (DMA) peuvent être connectés directement aux CPC (modèles 5402 et 5403) afin d'obtenir un SMPS+C complet (voir figure 3).

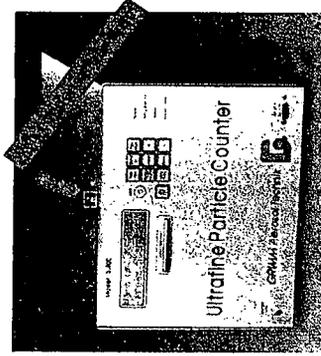


Figure 2

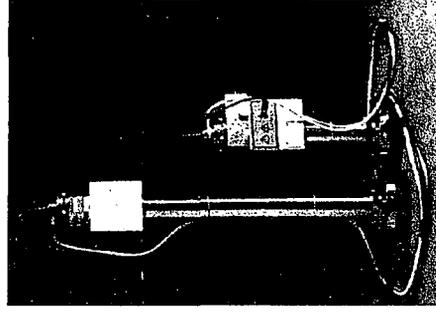
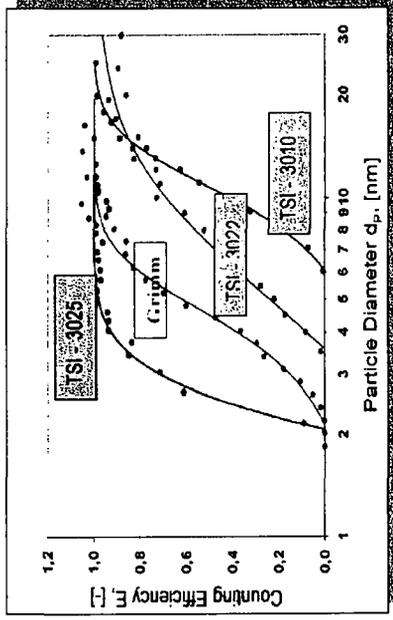


Figure 3

CPC	5401	5402	5403
D <sub>50</sub> minimum	4,5	4,5	4,5
D <sub>max</sub> en µm	3000	3000	3000
Concentration max (particules/cm <sup>3</sup> )	10 <sup>2</sup>	10 <sup>4</sup>	10 <sup>7</sup>
Concentration min (particules/cm <sup>3</sup> )	0,001	0,001	0,001
Mode de comptage (particules/cm <sup>3</sup> )	10 <sup>2</sup>	10 <sup>4</sup>	10 <sup>4</sup>
Sensibilité	0 particules pour toutes les unités		
Coincidence	Tous modèles < 2% à 10 <sup>4</sup> particules/cm <sup>3</sup>		
Temps de réponse haut	1 sec.	1 sec.	1 sec.
Temps de réponse bas	< 5 sec.	< 5 sec.	< 5 sec.
Affichage	Ecran LCD lumineux		
Heure, date, lieu	Intégré		
Démarrage automatique	Logiciel PC		
Classificateur (DMA)	Non	Oui	Oui
DMA « Sheet Air »	Non	Non	Pompe incluse
Alarme	Valeur à sélectionner par taille avec le logiciel		
Débit d'échantillonnage	Toutes les unités peuvent fonctionner à 0,3 ou 1,5 l/min		
Débit de « Sheet Air »	Ce débit est fixé et maintenu à 3 l/min		
Contrôle du débit interne	Capteurs de pression différentielle intégrés		
Pompe interne	Oui	Oui	Oui
Pompe interne pour DMA	Non	Oui	Oui
Réservoir de butanol	Réservoir de 1/2 l intégré		
Remplissage automatique en butanol	Raccord rapide sur toutes les unités		
Niveau de butanol	Fenêtre de visualisation du niveau de butanol		
Contrôle du niveau dans le saturateur	Avec un capteur intégré		
Température d'utilisation	10°C à 30°C		
Humidité	0 à 95% HR		
Drainage de l'eau	Micro-pompe intégrée		
Batterie interne	Non	Non	Oui
Chargeur batterie	Non	Non	Interne
Transfert de chaleur	Système Pelletier intégré		
Carte mémoire intégrée	1 Mo, carte optionnelle, 64 Mo disponibles		
Communication	RS-232		
Carte tel/modem	Option 56 K modem ou accès par carte téléphone GSM		
Autres ports	PCMCIA possible		
Connectivité BNC	3 entrées analogiques 0-10 Volts		
Alimentation	220 V / 50 Hz		
Poids	7,2 kg	8,9 kg	11,5 kg



Comparaison de l'efficacité de comptage de différents CPC

### Systèmes évolutifs

- L'utilisation de deux compteurs en tandem est possible avec le logiciel 32 bit. Démarrage et arrêt sont synchronisés, les résultats sont vus sur le même écran en même temps.
- La combinaison de nos CPC et de notre spectromètre laser 15 canaux est possible avec un même logiciel afin de mesurer la concentration et la taille de particules entre 0,003 µm et 20 µm.

### Classificateur électrostatique (DMA)

L'effet sur l'aérosol de l'association d'un DMA et d'un CPC pour obtenir un SMPS+C est :

- 1- Imposer un pré-impacteur sélectif
- 2- Neutraliser correctement l'aérosol
- 3- Classifier l'aérosol par taille dans le DMA
- 4- Compter finalement les particules par classes de tailles

### Principe du classificateur électrostatique (DMA)

L'échantillon d'aérosol prélevé à travers un impacteur passe tout d'abord par un neutraliseur afin d'obtenir un état de charge moyen nul et une distribution de charges de l'aérosol connue. L'aérosol pénètre ensuite dans le DMA, un débit d'air propre (sheath air) est ajouté afin d'assurer un flux laminaire et de protéger l'électrode sélective centrale. L'état de charge de chaque particule étant connu et dépendant directement de sa taille, on connaît donc la mobilité électrique de chaque particule qui dépend notamment de sa charge et de son diamètre.

**ANNONCE DES EXPOSANTS**

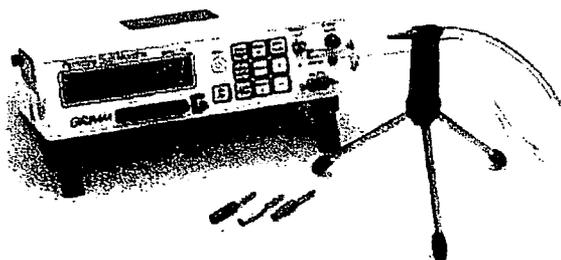
**ECOMESURE**

**INTERTEK / I.C.S.**

**T.S.I.**

**I.C.S.****Intertek**

# Compteur de Poussières GRIMM



- **Suivi de la concentration en poussières.**
- **Mesures à poste fixe ou cartographies.**
- **Plusieurs fractions de tailles en simultané : poussières inhalables, thoraciques, alvéolaires et PM10, PM2.5, PM1.**
- **Mesures en concentration massique ou en particules/litre (16 canaux de tailles).**
- **Portatif.**
- **Logiciel d'exploitation des données.**

Le compteur de poussières GRIMM permet la mesure instantanée et en continu de la concentration et de la granulométrie des poussières.

Le résultat est exprimé en nombre de particules par litre ou en masse ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ). L'air est échantillonné par l'intermédiaire d'une sonde isocinétique. Il est aspiré par une pompe de débit constant et ajusté (1,2 litres/minute), puis passe dans la cellule de mesure optique. Lorsqu'une particule entre dans la cellule de mesure, elle traverse le faisceau laser et produit une diffraction de la lumière qui est mesurée dans un angle de  $90^\circ$  par un photo détecteur. Un analyseur de pics permet ensuite de classifier les particules selon leurs tailles. L'ensemble de l'air échantillonné est récupéré par un filtre, permettant ainsi une analyse gravimétrique ou chimique de la poussière récoltée.

**LOGICIEL** sous Windows permettant de récupérer les mesures en temps réel ou à l'aide de la carte mémoire. Les résultats sont présentés sous forme numérique, graphique, statistique ou zooming.

15 canaux de tailles (en p/l ou en masse  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) ; convention hygiène industrielle (NF EN 481 : inhalable, thoracique, alvéolaire) ; ou EPA (PM10, PM2,5 et PM1).

Transfert rapide sous Excel.

## CARACTERISTIQUES

CAPTEUR	....	Diffraction lumineuse.
REPRODUCTIBILITE	....	$\pm 2\%$ .
GAMME DE MESURE	....	0,001 à 100 $\text{mg}/\text{m}^3$ , ou 0 à 2.000.000 particules/litre.
MESURE EN TEMPS REEL	....	Remise à jour toutes les 6sec, 1 min, ou plus.
TAILLE DES PARTICULES	....	0,3 ; 0,4 ; 0,5 ; 0,65 ; 0,8 ; 1 ; 1,6 ; 2 ; 3 ; 4 ; 5 ; 7,5 ; 10 ; 15 et 20 microns.
FRACTIONS DE TAILLE	....	Inhalable ; Thoracique ; Alvéolaire ; PM10 ; PM2,5 et PM1.
DEBIT	....	1,2 l/min, $\pm 5\%$ .
AFFICHAGE	....	2 x 16 caractères.
DONNEES SUPPLEMENTAIRES	....	Date, Heure, Identification, Moyenne, Alarme, Batterie.
CARTE MEMOIRE	....	De 16 K à 1 MB en option (de 1 jour à 1 an).
POIDS	....	1,5 kg avec batterie.
DIMENSIONS	....	12 x 10 x 6 cm.
FILTRE	....	Téflon diamètre 47mm, interchangeable.
SORTIE	....	RS-232.

**INTERTEK / I.C.S.**

91, rue du Général de Gaulle 27109 LE VAUDREUIL

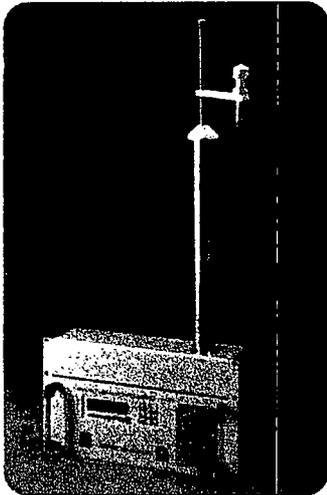
Tél : 02 32 09 36 26 Fax : 02 32 09 36 28

E-mail : [ics@intertek.com](mailto:ics@intertek.com) Site Web : [www.intertek-ics.com](http://www.intertek-ics.com)



**I.C.S.****Intertek**

# Compteur de Poussières Environnemental #180 PM10 ; PM2.5 ; PM1



- **Mesure en continu de la concentration en poussières dans l'Air Ambiant**
- **Station de mesure à Poste Fixe, montée sur rack 19 "**
- **3 fractions de tailles en simultané : PM10, PM2.5, PM1 (selon EN 12341).**
- **Mesures en concentration massique en  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .**
- **Données stockées sur mémoire interne ou carte mémoire amovible optionnelle.**

Le GRIMM #180 est le premier Compteur de Poussières Environnemental capable de mesurer simultanément et en continu les fractions **PM-10**, **PM-2.5** et **PM-1** dans l'air ambiant. Les résultats en concentration sont obtenus chaque minute, ainsi que les mesures de température, humidité relative, et pression atmosphériques.

Le système monté sur rack 19" est conçu pour une installation en Container Environnemental, armoire, ou à l'intérieur d'un bâtiment.

La conception est basée sur le principe de la diffraction lumineuse, permettant la mesure et la classification par taille de chaque particule individuellement. Cette distribution particulière en taille de l'ensemble des aérosols ambiants sur 31 canaux de tailles chaque minute est convertie en distribution massique. A partir de cette distribution en masse, les différentes fractions PM sont déduites selon les exigences de l'EPA.

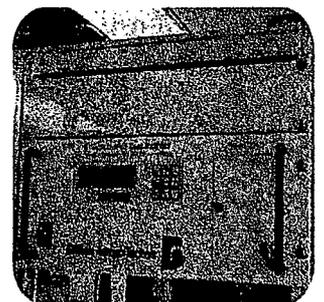
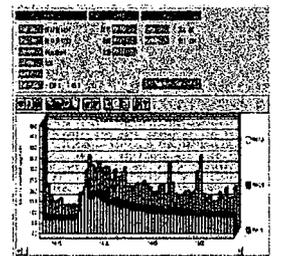
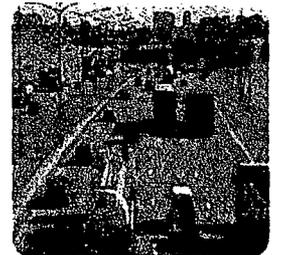
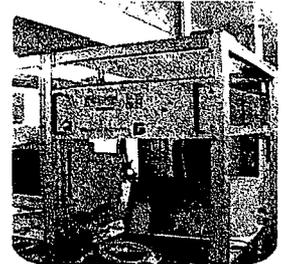
Ce nouveau compteur de poussières intègre un système spécifique de séchage de la sonde d'échantillonnage qui permet d'éviter de chauffer la tête de prélèvement. Ainsi, il n'y a pas de perte des composés semi-volatils présents dans l'atmosphère.

## APPLICATIONS

Selon la réglementation de nombreux pays, il est nécessaire de suivre en continu la qualité de l'air ambiant. Dans les pays de la Communauté Européenne, il y a la directive 96/62/EG et la directive associée 99/30/EG. Dans les autres pays, la norme de l'EPA est appliquée.

## CARACTERISTIQUES

Résolution en tailles:	31 canaux de tailles différents
Gamme de Concentration :	0,01 à 1500 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
Gamme EPA :	<b>PM10, PM2.5, PM1</b>
Gamme de taille:	0.25 ...30 $\mu\text{m}$
Résolution en temps:	De 6 sec à 1h, valeur moyenne pré-sélectionnable
Echantillonnage:	Débit contrôlé de 1.2 l/min
Acquisition des données:	Les données sont stockées en temps réel sur une carte mémoire amovible
Alimentation:	240 VAC 50Hz
Dimensions, poids	Rack 19"; poids approximatif : 19 kg



**INTERTEK / I.C.S.**

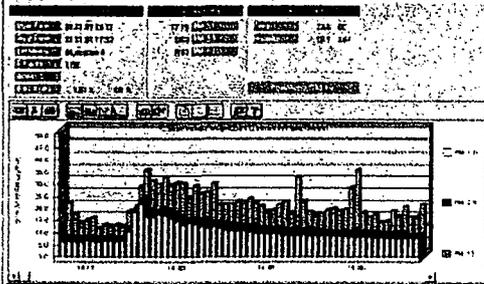
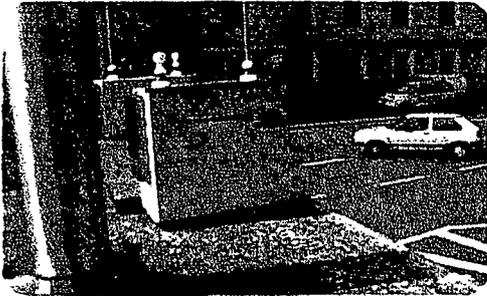
91, rue du Général de Gaulle 27109 LE VAUDREUIL

Tél : 02 32 09 36 26 Fax : 02 32 09 36 28

E-mail : [ics@intertek.com](mailto:ics@intertek.com) Site Web : [www.intertek-ics.com](http://www.intertek-ics.com)

**I.C.S.****Intertek**

# Compteur de Poussières ENVIRON-Check Version Mobile 1.107



- **Mesure en continu de la concentration en poussières dans l'Air Ambiant.**
- **Station de mesure Mobile, compacte et autonome.**
- **3 fractions de tailles en simultané : PM10, PM2.5, PM1 (selon EN 12341).**
- **Mesure des paramètres environnementaux : T°, HR, Pression atmosphérique, Vitesse et Direction du vent (options).**
- **Transmission des données via ligne téléphonique.**

Des inspections rapides, études ponctuelles et/ou incidents sur site nécessitent souvent l'utilisation d'un système mobile, pouvant être rapidement transporté par une personne sur le site.

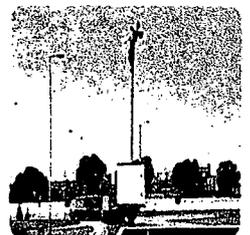
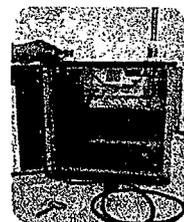
Le GRIMM ENVIRON-Check (#107) est un système mobile destiné au Monitoring Environnemental des Particules, capable de mesurer simultanément les fractions **PM-10**, **PM-2.5** et **PM-1**, et les conditions climatiques de l'air ambiant. Le système est compact (40 x 40 x 20 cm), autonome et est intégré dans un boîtier de protection destiné aux mesures en air extérieur.

Sa sonde de prélèvement spécifique ne nécessite aucun chauffage du prélèvement. Ainsi, ce système permet la mesure des composés semi-volatils des aérosols.

Ces analyseurs peuvent être installés sur des toits, à proximité des axes de trafic, des bâtiments, etc... et transmettent les données via une RS-232 ou une ligne modem aux inspecteurs.

## CARACTERISTIQUES

Résolution en tailles:	31 canaux de tailles différents
Gamme de Concentration :	0,01 à 1500 µg/m <sup>3</sup>
Gamme EPA :	<b>PM10, PM2.5, PM1</b>
Gamme de taille:	0.25 ...30 µm
Capteurs atmosphériques :	Température, Humidité Relative, Pression Atmosphérique, Vitesse et direction du vent (options)
Résolution en temps:	De 6 sec à 1h, valeur moyenne pré-sélectionnable
Echantillonnage:	Débit contrôlé de 1.2 l/min
Acquisition des données:	Les données sont stockées en temps réel sur une carte mémoire amovible
Alimentation:	240 VAC 50Hz ; alt. 18 VDC
Dimensions, poids	0,40 x 0,20 x 0,40 m ; poids approximatif : 19 kg



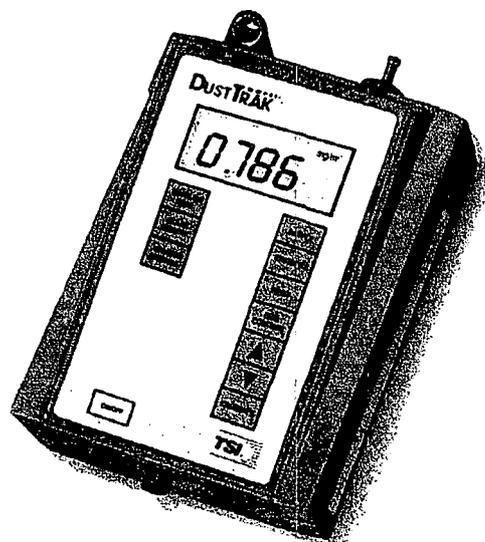
## INTERTEK / I.C.S.

91, rue du Général de Gaulle 27109 LE VAUDREUIL  
Tél : 02 32 09 36 26 Fax : 02 32 09 36 28  
E-mail : [ics@intertek.com](mailto:ics@intertek.com) Site Web : [www.intertek-ics.com](http://www.intertek-ics.com)



**I.C.S.****Intertek**

# Compteur de Poussières DustTrak



- **Suivi de la concentration en poussières.**
- **Mesures à poste fixe ou cartographies.**
- **Concentration jusqu'à 100 mg/m<sup>3</sup>.**
- **Hygiène Industrielle et/ou IAQ.**
- **Poussières inhalables, thoraciques, alvéolaires ou PM10, PM2.5, PM1.**
- **Portatif.**
- **Logiciel d'exploitation des données.**

Le DUST-TRAK mesure en continu et/ou en instantané la concentration en poussières dans l'air des lieux de travail. Sa large gamme de concentration permet une utilisation aussi bien en industrie (hygiène industrielle, ventilation, tunnels routiers), que dans les bureaux (qualité de l'air intérieur).

La mesure instantanée permet d'effectuer des cartographies rapides du site à étudier. La mesure en continu permet le suivi au cours du temps d'un poste de travail (ensachage, travail dans des sites empoussiérés, chantiers ...).

Le DUST-TRAK permet d'effectuer les mesures en poussières inhalables ou alvéolaires (cyclone fourni), ainsi que les mesures PM10, PM2.5 ou PM1.

Le DUST-TRAK est fourni avec le logiciel Trak-Pro permettant de stocker les données enregistrées en vue de leur exploitation : courbes linéaires, statistiques ...

## CARACTERISTIQUES

CAPTEUR	....	Diffraction lumineuse 90°.
GAMME DE MESURE	....	0,001 à 100 mg/m <sup>3</sup> (calibre selon l'iso 12103-1).
RESOLUTION	....	1 % de la lecture ou 0,001 mg/m <sup>3</sup> .
STABILITE DU ZERO	....	0,001 mg/m <sup>3</sup> sur 24 heures, avec une constante de temps de 10 s.
TAILLE DES PARTICULES	....	De 0,1 à 10 microns.
DEBIT	....	Ajustable de 1,4 à 2,4 l/min (1,7 nominal).
COEFFICIENT DE TEMPERATURE	....	+ 0,001 mg/m <sup>3</sup> par degré.
TEMPERATURE D'UTILISATION	....	0°C à 50°C.
TEMPERATURE DE STOCKAGE	....	- 20°C à 60°C.
HUMIDITE D'UTILISATION	....	0 à 95 % HR (non condensée).
CONSTANTE DE TEMPS	....	Ajustable de 1 seconde à 1 heure.
MEMORISATION DES DONNEES	....	31.000 données (21 jours de mémorisation/minute).
INTERVALLE DE MEMORISATION	....	Ajustable de 1 seconde à 1 heure.
DIMENSIONS	....	221 X 150 X 87 mm.
POIDS	....	1,5 kg avec piles.
INTERFACE	....	RS 232, 1200 bauds.
ALIMENTATION SECTEUR	....	Adaptateur secteur fourni.
ALIMENTATION BATTERIE	....	4 piles type C (incluses).
AUTONOMIE BATTERIE	....	Alcaline : 16 heures.

**INTERTEK / I.C.S.**

91, rue du Général de Gaulle 27109 LE VAUDREUIL

Tél. : 02 32 09 36 26 Fax : 02 32 09 36 28

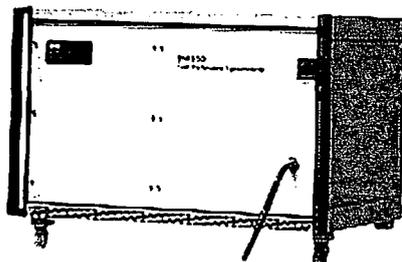
E-mail : [ics@intertek.com](mailto:ics@intertek.com) Site Web : [www.intertek-ics.com](http://www.intertek-ics.com)

I.C.S.

Intertek

# GRANULOMETRE CAMBUSTION DMS 50

**NOUVEAU**



- Granulomètre temps réel
- De 5 à 500 nm
- Diluteur Intégré (20 :1 à 1000 :1)
- Adaptateur 12V pour véhicule
- Temps de réponse : 500 ms

**Le granulomètre DMS 50 permet de mesurer la granulométrie des aérosols submicronique en temps réel entre 5 et 500 nm.**

## Caractéristiques :

<b>Gamme de mesures</b>	.....	5 à 500 nm.
<b>Principe de mesure</b>	.....	Classification Electrostatique avec détection par un électromètre.
<b>Débit</b>	.....	7 L/min.
<b>Temps de réponse</b>	.....	500 ms.
<b>Fréquence d'acquisition</b>	.....	Maximum à 10Hz.
<b>Chargement des particules</b>	.....	Chargeur unipolaire non radioactif.
<b>Sortie analogique</b>	.....	4, de 0 à 10 V.
<b>Entré analogique</b>	.....	4, de -10 à 10 V.
<b>Résolution en taille</b>	.....	16 canaux par décade.
<b>Diluteur intégré</b>	.....	20 :1 à 1000 :1.
<b>Alimentation Electrique</b>	.....	12-14 VDC ou 220V AC
<b>Dimension</b>	.....	48 x 57 x 31
<b>Poids</b>	.....	39 Kg

INTERTEK / I.C.S.

91, rue du Général de Gaulle 27109 LE VAUDREUIL

Tél : 02 32 09 36 26 Fax : 02 32 09 36 28

E-mail : [ics@intertek.com](mailto:ics@intertek.com) Site Web : [www.intertek-ics.com](http://www.intertek-ics.com)

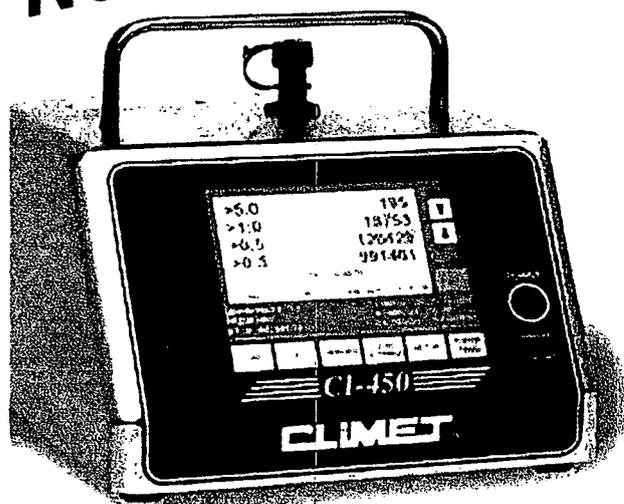


I.C.S.

Intertek

# Compteur de particules CLIMET SERIE T 150T – 450T – 750T

NOUVEAU



- Compteurs portables  
28,3 l/min, 50 l/min ou 75 l/min
- Rapports complets selon  
ISO14-644-1 et BPF
- Programmation conviviale et aisée
- Large écran couleur TFT tactile
- Imprimante intégrée
- Batterie intégrée Autonomie 5H
- Boîtier inox

## Caractéristiques :

<b>Gamme de mesures</b>	.....	0,3 ; 0,5 ; 1 et 5 microns.
<b>Principe de mesure</b>	.....	Diffraction lumineuse. Diode laser, 780 nm.
<b>Débit</b>	.....	28,3 L/min (150T) - 50 L/min (450T)- 75 L/min (750T) (contrôlé par débitmètre volumique). Pompe : turbine brevetée.
<b>Ecran</b>	.....	Nouvelle technologie TFT : écran couleur tactile à grande lisibilité et clavier alpha numérique intégré.
<b>Volume de prélèvement</b>	.....	Ajustable par l'utilisateur.
<b>Programmes</b>	.....	30 programmes mémorisés.
<b>Id lieu de prélèvement</b>	.....	100 Id par programme, de 16 caractères alpha-numériques chacun.
<b>Temps de purge</b>	.....	Ajustable par l'utilisateur (délai initial + temps de pause).
<b>Unité de mesure</b>	.....	Sélectionnable : particules/litre ou particules/pied cube ou particules/m <sup>3</sup> .
<b>Batterie</b>	.....	Interne, autonomie 6 heures (150T) - 5 heures (450T) - 3 heures (750T)
<b>Calculs</b>	.....	Edition de rapports selon la FS-209-E, l'ISO 14644-1 et les BPF.
<b>Alarmes</b>	.....	Ajustable sur les 4 canaux de tailles et débit de la pompe. Bip pour test d'efficacité des filtres.
<b>21 CFR 11</b>	.....	ID appareil, ID utilisateur, mot de passe pour chaque utilisateur, 4 niveaux de sécurité avec une authentification utilisateur.
<b>Sortie</b>	.....	RS-232. Contact sec.
<b>Poids, matériau,</b>	.....	5,990 kg, boîtier Inox.
<b>Dimensions</b>	.....	22 x 21,6 x 24,1 cm
<b>Options :</b>	.....	Diluteur. Trépied. Diffuseur de gaz.
<b>Matériel livré avec :</b>	.....	Batterie, filtre absolu, sonde isocinétique, papier thermique, cordon d'alimentation, manuel d'utilisation en français et certificats d'étalonnage.

INTERTEK / I.C.S.

91, rue du Général de Gaulle 27109 LE VAUDREUIL

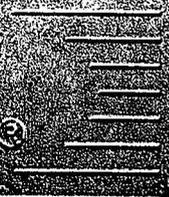
Tél : 02 32 09 36 26 Fax : 02 32 09 36 28

E-mail : [ics@intertek.com](mailto:ics@intertek.com) Site Web : [www.intertek-ics.com](http://www.intertek-ics.com)



# Innovative Instrument Solutions



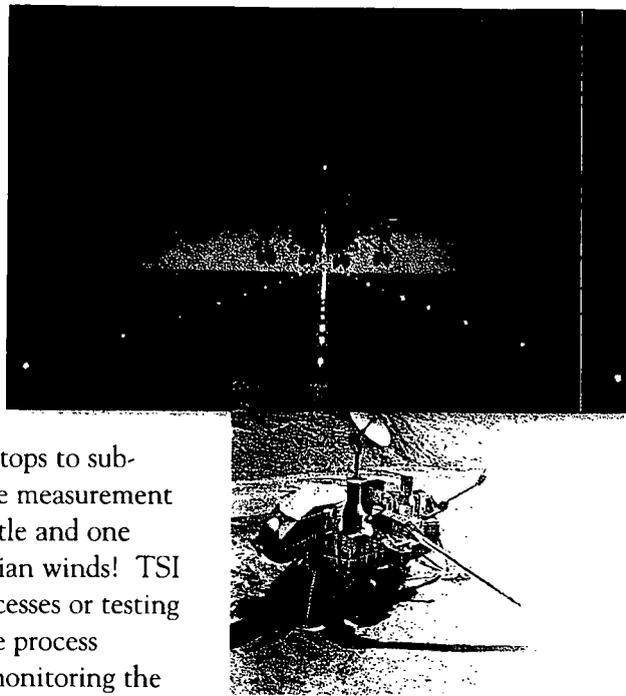
**TSI** 

## Global Reach

TSI Incorporated is an international company that designs and manufactures precision instruments used to measure flow, particulate, and other key parameters in environments the world over. A leader in measurement technology, TSI serves the needs of industry, governments, research institutions and universities, with applications ranging from pure research to primary manufacturing.

TSI Instruments can be found almost anywhere. From mountaintops to submarines to desert battlefields. They help people identify and solve measurement problems. Some of our instruments have flown in the space shuttle and one even went to Mars to measure the velocity and direction of Martian winds! TSI instruments play a role in designing or modifying production processes or testing procedures, then help verify the problem has been resolved or the process improved. From helping scientists build a better heart valve to monitoring the safety of the air in your child's classroom—TSI instruments are in demand in every major industry, in every corner of the world.

Our customers have the ongoing assurance that every TSI instrument is backed by over 40 years of technical expertise and outstanding quality that began in 1961 in the basement of one of our founders. These founders, a group of University of Minnesota engineering students, were on a mission to solve the problem of making accurate flow measurements in turbulent combustion. This small gathering served as the springboard of what today has become TSI, an international leader in state-of-the-art measurement systems and technologies.



## International Service and Support

TSI has over 400 dedicated employees working in facilities in North America, Europe and Asia. Our corporate sales and service offices (St. Paul, Minnesota, USA; Aachen, Germany; Marseille, France; Arlandastad, Sweden; Bristol, United Kingdom; and Beijing, China) all provide regional customer support that is readily accessible by telephone and email.

TSI employees are committed to serving customers on many levels from conducting training sessions to providing product demonstrations to serving on standard committees relating to product usage. TSI researchers have more than 50 patents in the fields of particle and flow measurement technology. In addition, the company holds more than 25 technology licenses from leading researchers and developers throughout the world.



## Our Products

TSI instruments have made their mark throughout the world. Our unique product line includes over 200 major instruments with a full complement of accessories. They can be classified into a variety of product families:

**Atmospheric Monitoring**—Instruments used to obtain climate, visibility and air quality measurements.

**Automated Filter Testing**—Automated Filter Testers that set the standard in the filter industry for determining the efficiency of media and filter assemblies.

**Biomedical Test Equipment**—Ventilator testers that measure air, oxygen, and nitrous oxide flow in institutional and home care, field service, laboratory and production applications.

**Chemical Characterization**—Instruments that analyze chemical composition and/or molecular weight of a material in research applications ranging from engine exhaust analysis to pharmaceutical studies to chemical/biological detection.

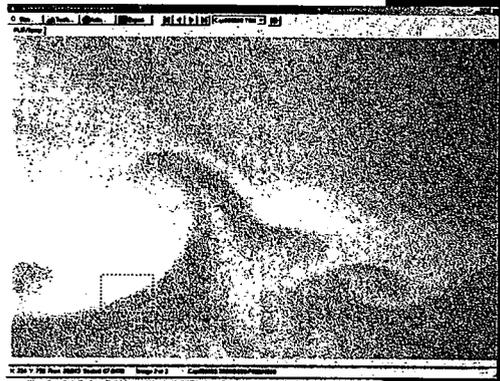
**Combustion Gas Analyzers**—A complete line of combustion gas analyzers, from single gas monitors to full-featured emissions analyzers, used for combustion system maintenance, compliance monitoring, engine research and monitoring, combustion research and industrial emission sampling.

**Critical Environments Monitors/Controllers**—Monitors and controllers that help control the room environment to ensure the safety and comfort of personnel working in laboratories, hospital isolation rooms and other hazardous environments.

**Exposure Monitoring**—Instruments that measure airborne dust and aerosol mass concentrations along with ones that measure or monitor gas concentrations in industrial settings.

**Flow Measurement Instruments**—A group of systems that accurately capture flow velocity data from a broad range of measurement situations—from simple to turbulent flows, flames, combustion and a range of other applications.

**Indoor Air Quality**—Instruments designed to measure accurately and reliably a variety of parameters important in monitoring and maintaining occupant thermal comfort while helping to assure healthy indoor environments; measurements include temperature, humidity, outdoor air calculations, carbon dioxide, carbon monoxide and airborne particles.



**Mass Flowmeters**—Flowmeters designed for a multitude of gas flow measurement applications from measuring gas flows in laboratories to manufacturing settings.

**NBC Protection**—Aerosol measurement products that help protect military and civilian personnel from nuclear, biological, or chemical (NBC) threats.

**Particle Research Instruments**—Instruments for sizing, counting, generating and dispersing aerosol particles for applications in air filter testing, atmospheric aerosol measurement, biological aerosol detection, particle characterization and engine emission studies.

**Phase Doppler Particle Analysis (PDPA)**—Systems that provide global flow velocity and particle size data on sprays, with applications related to medical inhalers, fuel injectors, spray nozzles and others.

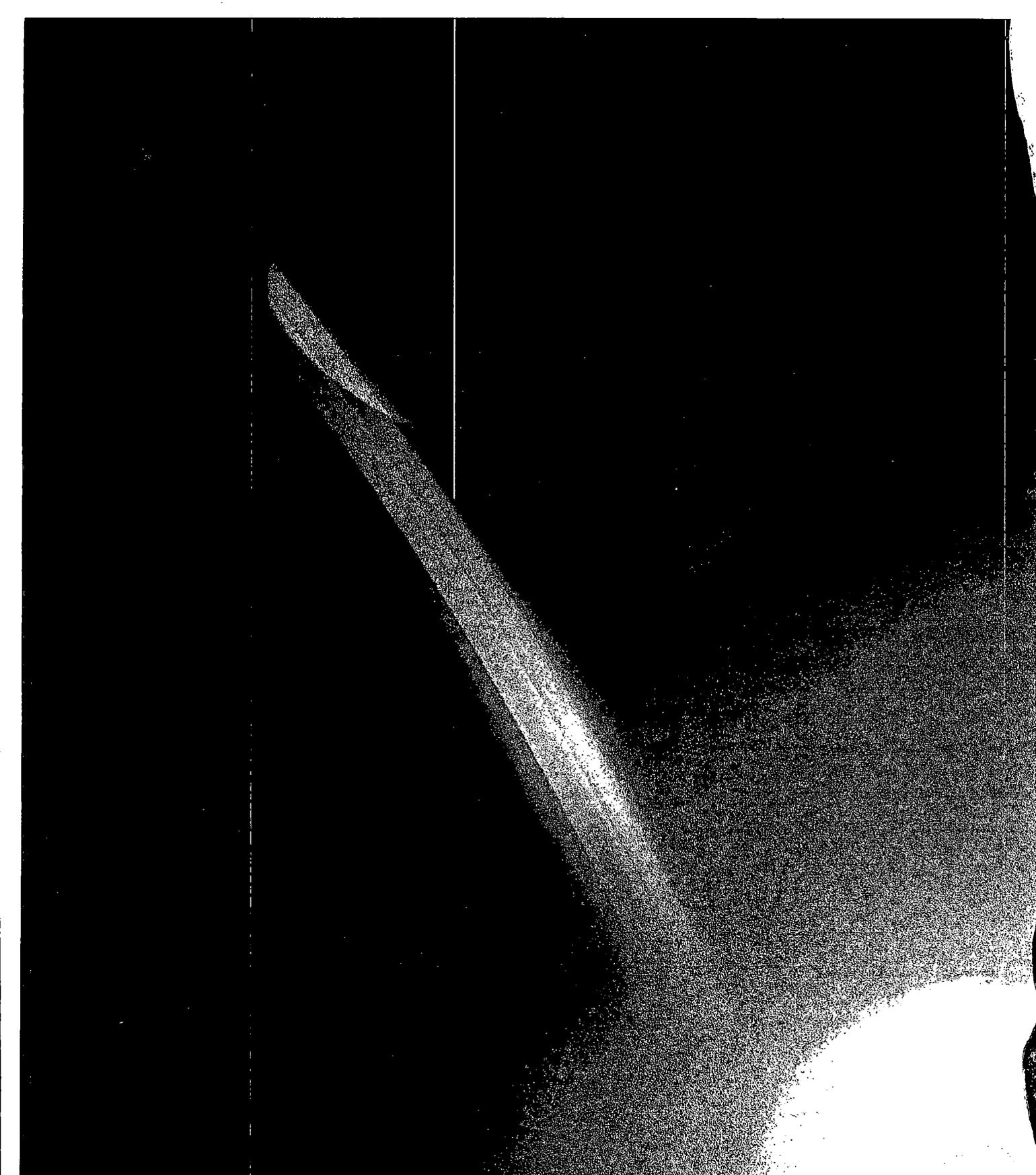
**Respirator Fit Testing**—Instruments and software to perform quantitative respirator fit testing for commercial and military respirators.

**Ventilation Test Instruments**—Instruments that measure parameters important in monitoring and maintaining indoor environments, including static pressure, gauge pressure, differential pressure, velocity, volume, temperature and humidity.

## A Universal Focus on the Future

From the simple to the most complex measurements, TSI is an innovator and leader in creating solutions to the world's changing measurement challenges. Find out how TSI can help you with your measurement challenge. Visit our web site at [www.tsi.com](http://www.tsi.com).





**TSI**

**TSI Incorporated**

Corporate Headquarters—Tel: 651 490 2811 Toll Free: 1 800 874 2811 Fax: 651 490 3824 E-mail: [info@tsi.com](mailto:info@tsi.com)

TSI GmbH—Tel: +49 241 523030 Fax: +49 241 523 0349 E-mail: [tsigmbh@tsi.com](mailto:tsigmbh@tsi.com)

TSI AB—Tel: +46 8 595 132 30 Fax: +46 8 595 132 39 E-mail: [tsiab@tsi.com](mailto:tsiab@tsi.com)

TSI Instruments Ltd.—Tel: +44 1275 847837 Fax: +44 1275 842437 E-mail: [tsiuk@tsi.com](mailto:tsiuk@tsi.com)

TSI France—Tel: +33 (0)4 91 95 21 90 Fax: +33 (0)4 91 06 53 98 E-mail: [tsifrance@tsi.com](mailto:tsifrance@tsi.com)

TSI China—Tel: +86-10-5260 1595 Fax: +86-10-8260 1597 E-mail: [tsichina@tsi.com](mailto:tsichina@tsi.com)

Contact TSI at [www.tsi.com](http://www.tsi.com) for information on specific office locations worldwide.