

ASFERA

ASSOCIATION FRANÇAISE D'ÉTUDES
ET DE RECHERCHES SUR LES AÉROSOLS

UFR SCIENCES UNIVERSITÉ PARIS12
AVENUE DU GÉNÉRAL DE GAULLE 94010 CRETEIL
TEL : 01 45 17 18 37
E-mail : info@asfera.org - site : www.asfera.org

22^{ÈME} CONGRÈS FRANÇAIS SUR LES AÉROSOLS

PARIS 29 - 30 NOVEMBRE 2006

CFA 2006

22^{EME} CONGRES FRANÇAIS SUR LES AEROSOLS C F A 2006

29 et 30 Novembre 2006

SOMMAIRE

	<i>Pages</i>
Éditorial par le Dr. D. BOULAUD, Président de l'ASFERA.	1
AÉROSOLS ET ENVIRONNEMENT	
Les retombées en France de l'accident de Tchernobyl - Point sur l'état des connaissances	5
P. Renaud, Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire	
Evaluation des vitesses de dépôt sec des aérosols en milieu urbain	15
O. Connan*, D. Maro, P. Germain, M. Rozet, D. Hébert, L. Solier Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville, Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, IRSN/DEI/SECRE/LRC, 50130 Cherbourg-Octeville	
Transferts de polluants particuliers dans le bâtiment : remise en suspension par l'activité humaine	21
J. El Hijri (1), A. Fortain (3), C. Cremezi Charlet (3), A. Draoui (1), K. Limam (2) (1) ETTE, Faculté des sciences et techniques, BP 416 Tanger, MAROC, (2) LEPTAB, Pôle sciences et technologies, avenue M. Crépeau 17042 La Rochelle CEDEX 01, (3) SNCF, Direction de l'Innovation et de la Recherche 45 rue de Londres 75379 Paris cedex 8.	
Modélisation des aérosols organiques secondaires : Etat de la Science et futures directions	197
C. Seigneur* et B. Pun. Atmospheric & Environmental Research, Inc., San Ramon, Californie 94583, Etats-Unis.	
Caractérisation physico-chimique de suies émises par un moteur d'avion commercial	27
D. Delhaye*(1), D. Ferry(2), O. Penanhoat(3), E. Ruiz(1), J. Gouge(3), X. Vancassel(1), B. Demirdjian(2), J. Suzanne(2). (1) ONERA, DMPH/EAG, BP 72, 92322, Châtillon. (2) CRMCN- CNRS, Campus de Luminy, Case 913, 13288 Marseille Cedex 9. (3) SNECMA, Centre de Villaroche, Rond-Point René Ravaud, 77550, Moissy-Cramayel.	
Caractérisation des particules de suie issues de la combustion du kérosène	33
M. Maugendre (*), J. Yon, A. Coppalle et M. Weill Complexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie, 76800 Saint-Etienne du Rouvray	
Analyse des hydrocarbures aromatiques polycycliques nitres par CLHP Fluorescence après réduction sur colonne. Application à l'aérosol atmosphérique.	39
O. Delhomme* (1), M. Millet (1) et P. Mirabel (1). (1) Laboratoire de Physico- Chimie de l'Atmosphère, Centre de Géochimie de la Surface, 1 rue Blessig, 67084 Strasbourg.	

Identification et quantification des contributions relatives des sources de poussières fines en milieu urbain. 45
H.Guégan(1), M.Chavent(2), B.Patouille(2), F.Campagne(3).
(1) ARCANÉ-CENBG, Le Haut Vigneau, BP120, 33175 Gradignan Cedex. (2) MAB, Université Bordeaux1, 351 cours de la libération, 33405, Talence. (3) AIRAQ, 13, allée James Watt 33692 Mérignac.

Caractérisation physico-Chimique et effets biologiques des particules fines et ultra-fines de l'aérosol urbain 203
S. Chevaillier*(1,2), O. Favez (3), K. Ramgolam (4), A. Person (5), M.-A. Billon-Galland (1), H. Cachier (3), A. Gaudichet (2), A. Baeza (4) et L. Martinon (1)
(1) Laboratoire d'Etude des Particules Inhalées, Ville de Paris, 11 rue George Eastman, 75013 Paris, (2) Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques, Université Paris 12, 94010 Créteil, (3) Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, 91190 Gif sur Yvette, (4) Laboratoire de Cytophysiologie et Toxicologie Cellulaire, Université Paris 7, 75005 Paris, (5) Laboratoire d'Hygiène de la Ville de Paris, 11 rue George Eastman, 75013 Paris

Identification et quantification des sources de PM10 dans une agglomération de la Grande Bretagne : Analyse individuelle 51
A. Khlaifi, A. Ionescu, Y. Candau
Centre d'Etudes et Recherches en Thermique, Environnement et Systèmes (CERTES), Université Paris 12 – Val de Marne 61, avenue du Général de Gaulle 94010 Créteil Cedex ; khlaifi,ionescu,candau@univ-paris12.fr

BIOAEROSOLS

Analyse par outils moléculaires de la biodiversité microbienne des aérosols générés pendant le compostage 57
V. Bru(1), N. Wery*(1), P. Boiron (2), J.-P. Delgenès(1), J.-J. Godon(1)
(1) Laboratoire de Biotechnologie de l'Environnement, INRA, Avenue des Etangs, 11100 Narbonne. (2) ISPB-Faculté de Pharmacie, Pavillon Georges Nétien, 69008 Lyon

Caractérisation de la diversité microbienne aéroportée des biogaz 63
Marina Moletta * (1), Jean-Jacques Godon (2), Jean-Philippe Delgenès (2)
(1) Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs, Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, 77421 Champs sur Marne. (2) Laboratoire de Biotechnologie de l'Environnement, INRA, 11100 Narbonne.

Caractérisation de l'exposition aux aérosols de légionelles : Aspects métrologiques 209
L. Mathieu*(1), T.L. Ha(2), M. Deloge-Abarkan(3), E. Robine(2)
(1) Ecole Pratique des Hautes Etudes, INSERM ERI n°11, Faculté de Médecine, BP 184, 54505 Vandoeuvre-lès-Nancy, France. (2) Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs, 84 avenue Jean Jaurès, 77447 Marne La Vallée cedex 2, France. (3) Département Environnement et Santé Publique, Université Henri Poincaré, INSERM ERI n°11, Faculté de Médecine, BP 184, 54505 Vandoeuvre-lès-Nancy, France.

Répartition des endotoxines dans les différentes fractions aérodynamiques dans l'air d'un centre de tri des ordures ménagères. 69
P. Duquenne*, R. Wrobel, P. Görner
Laboratoire de Métrologie des Aérosols, INRS, BP 27, 54501 Vandoeuvre Cedex.

Avantages et limites pour l'Utilisation d'un gel hydrosoluble pour l'échantillonnage des bioaérosols par impaction 75
P. Duquenne*, G. Greff et V. Koehler, P. Görner
Laboratoire de Métrologie des Aérosols, INRS, BP 27, 54501 Vandoeuvre Cedex.

Etude de l'exposition aux aérosols viraux dans les environnements intérieurs 214
Guillaume HERSEN * (1,2), Enric ROBINE (1), Marina MOLETTA (1), Evelyne GEHIN (2), François FREYMUTH (3) et Astrid VABRET (3)
(1) Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs, Centre Scientifique et Technique du Bâtiment Champs sur Marne, (2) Centre d'Etude et de Recherche en Thermique, Environnement et Système, Université Paris XII, Créteil, (3) Laboratoire de Virologie Humaine et Moléculaire, CHU Clémenceau Caen.

Etude des procédés épurateurs appliqués à la gestion de la qualité microbiologique de l'air des environnements intérieurs 83
S. DELABY(1,3), E. ROBINE(1), P. PETINGA(2), P. PETIT(2), E. GEHIN(3)
(1) Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs, CSTB, Département du Développement Durable, Champs sur Marne, (2) Laboratoire Qualité des Ambiances Intérieures, Centre Recherche&Innovation CIAT, Culoz, (3) Centre d'Etudes et de Recherche en thermique, Environnement et Systèmes, Université Paris XII, Créteil.

PHYSIQUE DES AEROSOLS

- L'explosion de poussières : un vieil ennemi aux nouveaux visages** 89
O. Dufaud
LSGC / CNRS – groupe SISYPHE 1 rue Grandville , BP 20 451 Nancy cedex - Olivier.Dufaud@ensic.inpl-nancy.fr
- Etude de la mise en suspension d'aérosols par chute de poudre** 101
M. Jacquelin * (1,2), E. Géhin (2) et F. Gensdarmes (1)
(1) Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex, (2) Centre d'Etudes et de Recherche en Thermique, Environnement et Systèmes, Université Paris XII, 61 av. du Général de Gaulle, 94010 Créteil Cedex
- Etude de la mise en suspension d'un aérosol de micro-gouttelettes lors de l'impact d'un train de gouttes millimétriques sur un film liquide** 107
C. Motzkus * (1,2), E. Géhin (2) et F. Gensdarmes (1).
(1) Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex, (2) Centre d'Etude et de Recherche en Thermique, Environnement et Système, Université Paris XII, 61 av. du Général de Gaulle, 94010 Créteil Cedex.
- Caractérisation des aérosols émis par interaction laser matière dans le cadre d'expériences de décapage de peintures par laser** 113
P. Dewalle* (1,2,3,4), J. Vendel (1), J.-M. Weulersse (2), P. Hervé (3), V. Pina (3), G. Decobert (4)
(1) Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cede, (2) Commissariat à l'Energie Atomique, Service de Chimie Physique, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, (3) Laboratoire d'Energétique et d'Economie d'Energie, Pôle Scientifique et Technologique de Ville d'Avray, Université Paris X-Nanterre, 1 chemin Desvallières, 92140 Ville d'Avray, (4) AREVA NC, 2 rue Paul Dautier, 78141 Vélizy Cedex
- Modélisation du transfert des aérosols dans un local ventilé** 119
P. Nerisson*(1), L. Ricciardi(1), O. Simonin(2), J. Fazileabasse(3).
(1) Laboratoire d'Etudes et de Modélisation en Aérodispersion et Confinement, IRSN/DSU/SERAC, BP 68, 91192 Gif sur Yvette cedex. (2) Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, allée du professeur Camille Soula, 31400 Toulouse. (3) EDF R&D, 6 quai Watier, BP 49, 78401 Chatou cedex
- Dépôts des aérosols sur les parois de l'enceinte phebus** 125
V.D. Layly(1), P. March(2), W. Plumecocq*(1)
(1) Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, DPAM, SEMIC, St Paul lez-Durance, France, (2) Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, DPAM, SEREA, St Paul lez-Durance, France
- Détermination de la charge électrique d'un aérosol radioactif naturel** 131
R. Abou-Khalil* (1,2), N. Michielsen (1) et A. Nourreddine (2).
(1) Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex. (2) Institut Pluridisciplinaire Hubert-Curien, Département de Recherches Subatomiques, Groupe de Radioprotection et Mesures Environnementales, Université Louis Pasteur Strasbourg I, BP 28, 67037 Strasbourg Cedex 2.

FILTRATION

- Etude de la collecte d'aérosols par un spray d'eau en milieu hostile** 137
D. Marchand*,1,2, E. Porcheron1, P. Lemaitre1, W. Plumecocq3, V. Rochas4 et G. Grehan2
(1) IRSN/DSU, Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex. (2) CNRS UMR 6614 CORIA, Laboratoire d'Electromagnétisme des Systèmes Particulaires, Site Universitaire du Madrillet, Avenue de l'université BP 12, 76 801 Saint Etienne du Rouvray Cedex. (3) IRSN/DPAM, Service d'Etudes et de Modélisation de l'Incendie, du corium et du Confinement, BP 3, 13115 St Paul-Lez-Durance. (4) Bertin Services, Parc d'activités du Pas du Lac, 10 bis av Ampère, 78180 Montigny-le-Bretonneux.
- Contribution à l'étude des mécanismes de capture de particules dans les pores d'un filtre tissé par simulation numérique 3D** 145
M. Bénésse*, L. Le Coq
Ecole des Mines de Nantes, GEPEA, 4 rue Alfred Kastler, BP 20722, Nantes cedex 3 - laurence.le-coq@emn.fr

Mesure de l'efficacité de filtration des particules nanométriques 151
N. Michielsens* (1) et F. Mercier (1,2).
(1) Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex. (2) Université Paris XII – Val de Marne. 61, avenue du général de Gaulle, 94010 Créteil Cedex.

Analyse des concentrations numérique et massique à l'aval d'un dépoussiéreur à manches – influence du traitement de surface sur les performances du filtre 157
X. Simon* (1), D. Bémer (2), D. Thomas (1), G. Jardon (2), S. Callé (1), R. Régnier (2)
Laboratoire de Filtration des Aérosols : (1) Laboratoire des Sciences du Génie Chimique / Centre National de la Recherche Scientifique 1 rue Grandville, BP 20451 - 54001 NANCY Cédex, (2) Institut National de Recherche et de Sécurité, avenue de Bourgogne, BP 27 54501 VANDOEUVRE lès NANCY Cédex.

Etude des pertes par évaporation suite à la filtration d'un aérosol semi volatil ou volatil par un média fibreux. 163
J-C. Appert-Collin* (1), B. Sutter (1)(2), D. Bemer (2) 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

METROLOGIE DES AEROSOLS

Caractérisation des particules de suie émises dans un foyer sur ventile 169
F.X. Ouf* (1), A. Coppalle(2), J. Vendel(1), M. E. Weill(2) et J. Yon(2)
(1) Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex. (2) UMR 6614 CORIA, Université et INSA de Rouen, Avenue de l'université, BP 8, 76801 Saint-Etienne du Rouvray.

Granulométrie de milieux denses par laser femtoseconde 175
M.Barthelemy*(1), L.Hespel*(1),G.Gréhan*(2)
(1) ONERA DOTA BP 4025 2, avenue Edouard Belin 31055 Toulouse CEDEX 4, (2) CORIA INSA Université de Rouen avenue de l'université BP12, 76801 Saint Etienne du Rouvray

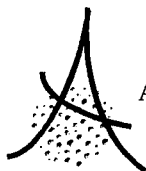
Caractérisation et évolution de particules dans une chaîne laser de puissance
S. Palmier, S. Garcia, L. Lamaignère, J.L. Rullier, I. Tovenà
CEA/CESTA, BP 2, 33114 Le Barp

Détermination de la granulométrie des aérosols dans les émissions canalisées : cas d'une cimenterie 181
I. Fraboulet*(1), X. Chaucherie (2), F. Gouriou (3), B. Graziotin (2), N. Karoski (1), O. Le Bihan (1), H. Thille(4)
(1) Direction des risques chroniques, Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques, Parc Technologique ALATA, BP 2, 60550 Verneuil-en-Halatte, (2) SECHAUD Environnement (LECES) BP 40223 – 57282 Maizières-Lès-Metz, (3) CERTAM, 1 rue J. Fourier, Technopôle du Madrillet, 76800 Saint-Etienne du Rouvray,(4) Holcim (France) S.A.S., 192, avenue Charles de Gaulle 92200 Neuilly-sur-Seine

Mesure de la surface des aérosols ultrafins : état des lieux et perspectives 187
S. Bau* (1, 2), O. Witschger (1), F. Gensdarmes (2), D. Thomas (3)
(1) Institut National de Recherche et de Sécurité, Laboratoire de Métrologie des Aérosols, BP 27, 54501 Vandoeuvre Cedex.
(2) Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, Service d'Etudes et de recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement, BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette Cedex.
(3) Laboratoire des Sciences du Génie Chimique CNRS/LSGC, 54000 Nancy.

Méthode de caractérisation physico-chimique pour la sécurisation des procédés de fabrication des nanoparticules 193
T. Amodeo* (1), C. Dutoquet (1), M. Attoui (2), E. Fréjafon (1), O. Le Bihan (1).
(1) INERIS, Direction des Risques Chroniques, Unité Qualité de l'Air, Parc Technologique Alata, BP 2, 60550 Verneuil En Halatte. (2) Université Paris 12 Val de Marne, 61 avenue du Général De Gaulle, 94010 Créteil Cedex.

Annnonce des exposants



ASFERA

ASSOCIATION FRANCAISE D'ETUDES ET DE RECHERCHES SUR LES AEROSOLS

LPATC - UFR Sciences Université Paris XII 94010 CRETEIL

Avenue du Général de Gaulle

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

www.asfera.org

Le Président

Notre 22^{ème} Congrès Annuel (CFA 2006) se tient donc, pour la troisième fois, à la Maison de la Mutualité à Paris, les 29 et 30 novembre 2006.

Toutefois, cette année ne sera pas semblable aux autres car notre ami **Jean François Fabries**, vice-Président de l'ASFERA, et membre du bureau directeur depuis les premières heures de notre association, nous a quittés à la fin du mois d'avril 2006. C'est donc avec beaucoup d'émotion que j'écris ces lignes. Mais la vie professionnelle continue et c'est sans doute le plus bel hommage à lui rendre que de réussir notre 22^{ème} congrès que nous dédions à sa mémoire.

Vous disposez donc, cette année, comme les 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 **Pr. Evelyne Géhin** et de son équipe du CERTES de l'Université Paris XII qui assurent depuis plusieurs années l'édition de ces Actes. Cette année encore, elles ont réalisé des prouesses.

Ce CFA 2006 réunit près de 100 participants qui vont assister à 35 communications dont deux conférences plénières présentées, d'une part par **Philippe Renaud** chef de laboratoire à l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, d'autre part par **Olivier Dufaud** Maître de conférences, chercheur au sein du Laboratoire des Sciences du Génie Chimique de Nancy. Ces conférences vont sans doute retenir l'attention de l'assistance en abordant des sujets très différents, mais tous deux liés à la gestion du risque : sanitaire, d'une part, avec le point, qui sera fait 20 ans après, sur les retombées en France de l'accident de la centrale de Tchernobyl en 1986, industriel, d'autre part, avec les explosions de poussières.

Le CFA 2006 est, pour les thèmes, dans la tradition des CFA précédents, nous y retrouvons cinq grandes sessions :

- aérosols et environnement,
- les bioaérosols,
- physique des aérosols,
- filtration des aérosols,
- métrologie des aérosols et instrumentation.

Du 11 au 15 septembre 2006, s'est tenue à Saint Paul, Etats-Unis, l'International Aerosol Conference 2006 qui a réuni près de 1300 participants. C'est sans doute la conférence sur les aérosols ayant rassemblé le plus grand nombre de participants depuis l'émergence de la science des aérosols. Cette progression démontre ainsi le dynamisme de cette discipline.

Au cours de cette conférence, **François Xavier Ouf**, a présenté brillamment ses travaux, sur la caractérisation de particules de suies émises par l'incendie de divers matériaux, qui lui ont valu le prix Jean Bricard 2006 décerné par notre association. Cette communication est reprise au cours de notre CFA 2006 lors de la session « Métrologie des Aérosols ». Ce prix sera remis solennellement à François Xavier Ouf, à la fin de la première journée de notre conférence. Je vous rappelle que ce

prix récompense un(e) jeune chercheur(se) pour une contribution importante et originale dans le domaine de la science des aérosols.

Toujours au cours de cette conférence, **Jean Pascal Borra**, membre du bureau directeur de l'ASFERA, a reçu le Smoluchowski awards, décerné par l'association allemande GAeF à un(e) chercheur(se) de moins de quarante ans. C'est un beau succès personnel qui rejaillit également sur l'ensemble de la communauté française impliquée dans la recherche sur les aérosols.

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 confirmé la proposition faite par l'association Grecque de tenir l'EAC 2008 à Thessalonique, du 25 au 29 août 2008. De plus, l'EAA vient de retenir, après un vote serré, Karlsruhe comme lieu pour la conférence européenne de 2009. 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 2010) se tiendra 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 qui est opérationnel depuis plus de cinq ans. Il vient de subir un petit « lifting » qui devrait le rendre encore plus attrayant. 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, comme l'année dernière, nos exposants. Je les remercie chaleureusement de nous faire à nouveau confiance.

Une fois encore, je remercie le bureau de l'ASFERA, qui a construit ce programme du CFA 2006. 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 2007 pour notre 23^{ème} 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
(décédé à la fin du mois d'avril 2006)

Le Secrétaire Général

Professeur Evelyne GEHIN, Université Paris XII

Les membres

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

Professeur Gérard 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)

Les retombées en France de l'accident de Tchernobyl : Un point sur l'état des connaissances

Philippe Renaud, Didier Champion, Jean Brenot & Sylvie Roussel-Debet

Introduction

Le 26 avril 1986 à 1h23, survient le plus grave accident de l'industrie nucléaire civile sur le réacteur 4 de la centrale de Tchernobyl, en territoire ukrainien de l'Union Soviétique. Cet accident provoque d'importants rejets radioactifs dans l'atmosphère, pendant plusieurs jours. Ces rejets se dispersent au gré de la circulation des masses d'air ; les particules radioactives en suspension dans l'air finissent par retomber sur les surfaces au niveau du sol, entraînant une contamination plus ou moins importante de vastes surfaces du territoire européen.

En France, des milliers de mesures de la radioactivité ont été effectuées dans les denrées, très peu dans l'air, les eaux de pluie ou des dépôts. La communication partielle et rassurante qui a été faite sur le sujet et la gestion de la situation, très différentes de celles faites dans les autres pays, ont jeté un doute puis un discrédit sur les autorités. Le très faible nombre d'études ou d'évaluations effectuées par les organismes officiels dans les années qui ont suivi et, parallèlement, la communication régulière de données ou d'évaluations réalistes ou alarmistes provenant du milieu associatif, ont entretenu jusqu'à aujourd'hui ce discrédit.

Le fait est qu'en France, la reconstitution complète des retombées de cet accident n'a commencé qu'en 1997, à la demande de l'Autorité de Sécurité Nucléaire, suite à la découverte de sangliers présentant des niveaux de contaminations incompatibles avec le postulat d'un pays très faiblement touché, à l'image des cartographies des dépôts publiées jusqu'alors. Cette reconstitution prendra encore près de 10 ans en raison de l'insuffisance de certaines données acquises à l'époque et du climat polémique ; et le dossier ne peut être encore clos aujourd'hui, dans l'attente d'une instruction et d'une décision de justice.

La dispersion atmosphérique des rejets et la contamination de l'air résultante

Les rejets radioactifs les plus importants se sont produits au moment de l'explosion du réacteur ; sous l'effet de l'énergie libérée par l'accident, ils se sont élevés jusqu'à plus de 1200 mètres de hauteur. A cette altitude, ils ont été soumis à des vents de l'ordre de 30 à 40 km.h⁻¹ qui ont transporté les polluants sur des milliers de kilomètres de distance. Les rejets se sont également poursuivis les journées suivantes, sous l'effet de l'incendie consécutif à l'accident et de l'énergie résiduelle du cœur détruit. Ce n'est qu'après le 5 mai qu'une diminution rapide de l'émission des produits radioactifs est observée.

Les principaux radionucléides rejetés sont par ordre d'importance des gaz (¹³³Xe notamment), des produits plus ou moins volatils (¹³¹I, ¹³²Te, ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ¹⁰³Ru, ¹⁰⁶Ru) qui sont parvenus jusqu'en France, ainsi que d'autres peu volatils, voire réfractaires (isotopes du strontium, du zirconium, du plutonium ...) dont la dissémination a été beaucoup moins importante.

Une fois rejetés dans l'air, les polluants radioactifs se sont principalement dispersés en fonction de la vitesse du vent et de sa direction. Cette dispersion a conduit à une dilution des polluants, croissante dans le temps. Il en a résulté une diminution de la concentration des radionucléides dans l'air (Bq.m⁻³) en s'éloignant du point de rejet. De plus, les polluants sous forme d'aérosols ou de gaz soluble ont fini par se déposer sur le parcours des masses d'air contaminées, par dépôt sec ou sous l'effet du lessivage des pluies, entraînant un appauvrissement progressif du panache.

Dans un premier temps, le vent a emporté les matières radioactives rejetées le 26 avril vers le nord-ouest. Parvenu au-dessus des pays baltes et scandinaves, ce premier panache a été rabattu vers l'est, puis le sud, ramenant les polluants vers l'Europe centrale et balkanique. Seul le panache des rejets du 27 avril s'est dirigé vers l'Europe de l'ouest, l'Allemagne, la France et le nord de l'Italie, où il est parvenu entre le 30 avril et le 5 mai, avant d'être repris par un vent du sud qui l'a conduit sur les îles britanniques, épargnant ainsi l'Espagne et le Portugal. Les rejets émis par la centrale à partir du 28 avril ont été emportés vers l'est et le sud : Russie, Caucase, Méditerranée orientale et Europe centrale.

Sur les 14 radionucléides détectés en France, le ¹³⁷Cs, le ¹³⁴Cs et l'¹³¹I méritent un développement particulier compte tenu de leur importance en terme d'impact sur les populations.

Les données obtenues au niveau des stations de surveillance du SCPRI et du CEA, en nombre insuffisant et mal réparties sur le territoire (principalement sur les sites nucléaires), ne permettent pas une reconstitution précise de la contamination de l'air sur l'ensemble du territoire. Aussi, la carte présentée dans la figure 1 ne montre que l'allure générale de la contamination de l'air par le ^{137}Cs entre le 1^{er} et le 5 mai 1986. Elles illustrent cependant assez bien l'appauvrissement est-ouest de l'activité des masses d'air. Cette appauvrissement résulte d'une part de la trajectoire du panache qui épargne l'extrême Ouest du pays, et d'autre part des pluies importantes dans l'est de la France qui ont continué le lessivage de l'air commencé au dessus des pays situés plus à l'Est.

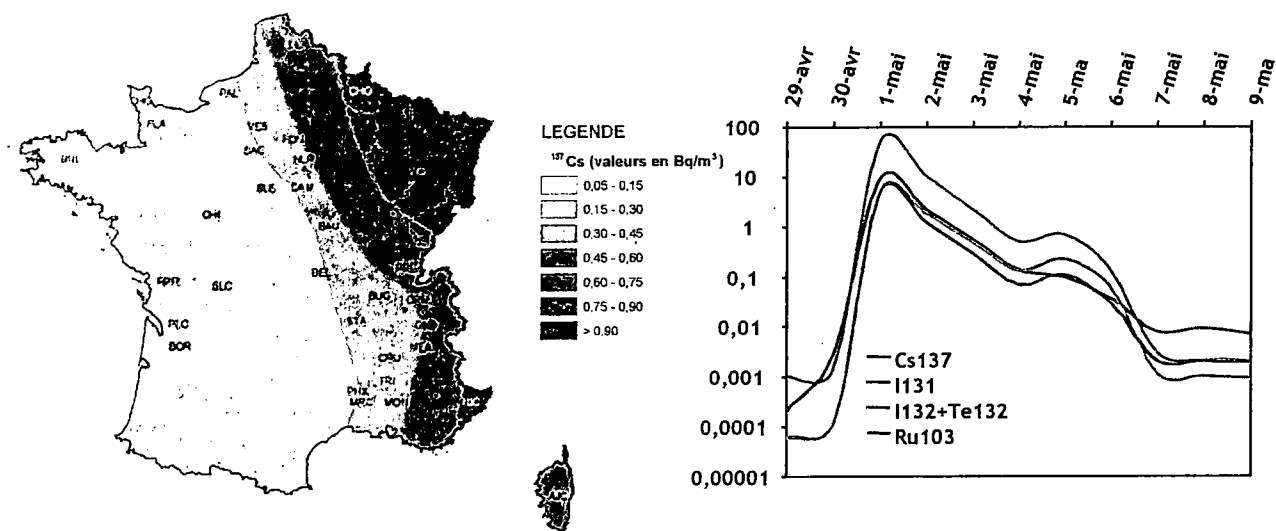


Figure 1 : Contamination moyenne de l'air en ^{137}Cs entre le 1^{er} et le 5 mai 1986 et évolution journalière pour les principaux radionucléides.

Compte tenu de la similarité des évolutions temporelles des autres radionucléides, leur distribution géographique a dû suivre celle du césium 137, dans le respect des rapports isotopiques.

Les dépôts radioactifs en France

Par temps sec, les turbulences mettent en contact les gaz et les aérosols radioactifs avec tout ce qui se trouve à la surface du sol : végétaux, constructions.... Ce phénomène est désigné par le terme de « dépôt sec ». La vitesse de dépôt de ces aérosols, de l'ordre de 10^{-3} m.s^{-1} . Elle varie en fonction de la taille des aérosols, des caractéristiques de la pluie et de l'état de surface du sol. Ainsi, les dépôts secs seront plus importants sur une surface boisée que sur une prairie, *a fortiori* que sur un sol nu.

Si il n'avait pas plu entre le 1^{er} et le 5 mai 1986, les dépôts secs auraient très faibles sur la France : inférieurs à 1000 Bq.m^{-2} pour le ^{137}Cs sur l'Est du pays.

Malheureusement, des précipitations très hétérogènes et ponctuellement soutenues sont survenues durant ces 5 jours, entraînant des dépôts proportionnels aux hauteurs de pluies. En effet, Par temps de pluie (ou de neige), les gouttes d'eau précipitent au sol les particules radioactives ou les gaz solubles (cas de l'iode) dont elles se sont chargées dans l'air : c'est le « dépôt humide ». Le dépôt humide résulte, d'une part de la captation du gaz ou des particules radioactives par les gouttelettes d'eau lorsqu'elles se condensent dans les nuages, et d'autre part de l'entraînement des aérosols radioactifs dans leur sillage lorsqu'elles tombent. L'effet résultant peut être quantifié par le rapport entre l'activité volumique dans l'air ambiant et celle de l'eau de pluie qui se charge en le traversant, exprimé en Bq.l^{-1} d'eau de pluie par $\text{Bq}^{-1}.\text{m}^3$ d'air (ou $\text{m}^3.\text{l}^{-1}$). Lors des dépôts pluvieux de mai 1986, ce rapport a été dans la gamme de ceux habituellement constatés : de l'ordre de $1000 \text{ m}^3.\text{l}^{-1}$.

Le dépôt humide est donc toujours plus intense que le dépôt sec, et il suffit d'une pluie de 1 mm pour que le dépôt pluvieux devienne prépondérant. Ainsi, sur la majeure partie du pays, les pluies du 1^{er} au 5 mai 1986 expliquent la répartition spatiale des dépôts radioactifs, notamment de ^{137}Cs . La contamination des sols de la basse vallée du Rhône à la fin des années 90, une quinzaine d'année après les dépôts, rend compte de cette forte corrélation entre les dépôts et les hauteurs de pluie cumulées de la première semaine de mai 1986.

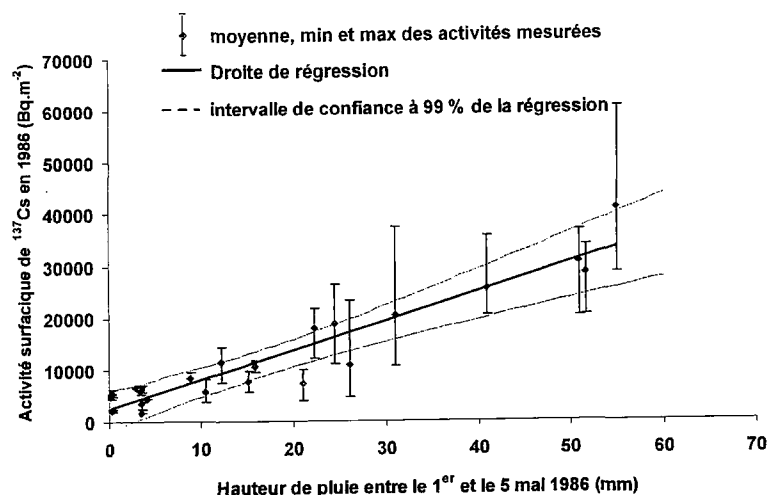


Figure 2 : Relation entre les activités des sols de la basse vallée du Rhône, mesurées en 2000 et ramenées à 1986 par correction de la décroissance radioactive, et les pluies cumulées entre le 1^{er} et le 5 mai 1986 mesurées par Météo-France

La carte des dépôts de ¹³⁷Cs publiée en 2005 par l'IRSN, présente les grandes tendances de la répartition des dépôts de mai 1986. Très hétérogènes sur le 1/3 Est du pays, les dépôts de ¹³⁷Cs ont été de moins de 1000 Bq.m⁻² en l'absence de pluie, à plus de 20000 Bq.m⁻², voire 40000 Bq.m⁻² sur les sites les plus arrosés. De telles zones de dépôts croissants imbriquées se retrouvent dans des pays comme l'Italie, l'Allemagne, la Suisse ou l'Autriche. Les dépôts ont été beaucoup plus faibles et homogènes sur les 2/3 Ouest du pays, le plus souvent inférieurs à 4000 Bq.m⁻²; en raison d'une moindre contamination des masses d'air. Ainsi, l'ouest de la France figure parmi les régions d'Europe les moins touchées par les retombées de l'accident de Tchernobyl, avec l'Est du Royaume Uni, la Belgique, les Pays-Bas et la péninsule ibérique.

Les dépôts de ¹³⁴Cs ont été deux fois plus faibles que ceux de ¹³⁷Cs et les dépôts de ¹³¹I ont été cinq à dix fois plus importants que ceux de ¹³⁷Cs.

Il n'est pas possible de décrire plus finement les dépôts ni de se prononcer à plus petite échelle (canton ou commune par exemple). La démarche rétrospective basée sur des mesures de la contamination des sols 15 ans après les dépôts, se heurte à la faible représentativité des données mesurées et aucune mesure nouvelle ne permettra désormais d'améliorer cette connaissance.

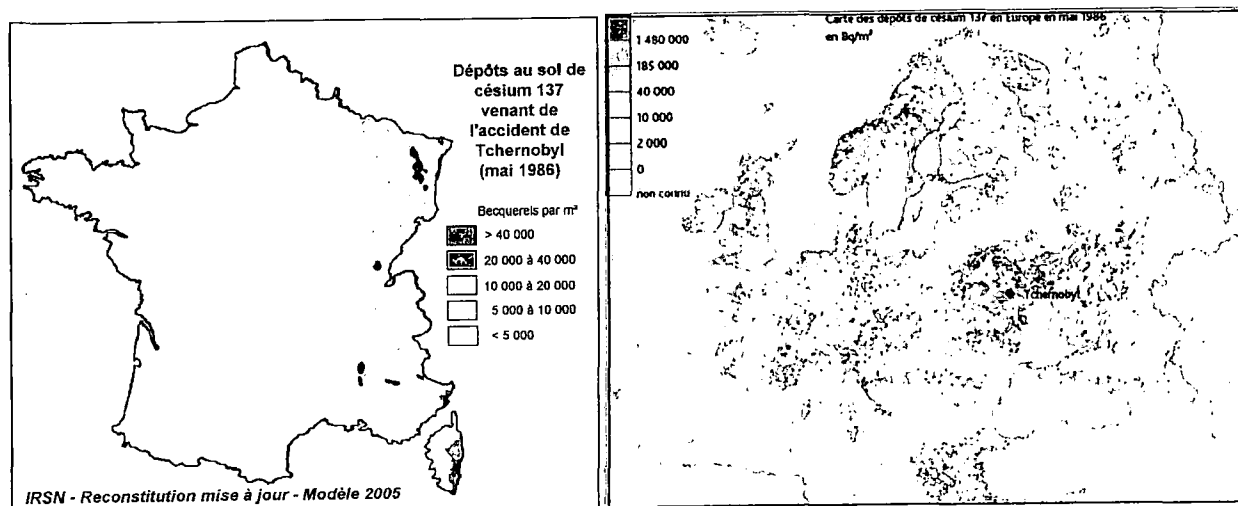


Figure 3 : Dépôts de ¹³⁷Cs en France et en Europe

La contamination de la chaîne alimentaire en 1986 et 1987

Des dizaines de milliers d'analyses presque systématiques de nombreuses denrées ou substances alimentaires produites sur le territoire ou importées, ont été effectuées par le SCPRI après l'accident de Tchernobyl ; à l'exception toutefois notable de toutes les viandes qui n'ont fait l'objet que de rares mesures du Centre National d'Etude Vétérinaires et Alimentaires (CNEVA).

Pour plus de 90% des échantillons analysés, la contamination s'est avérée en deçà de 5 Bq.l⁻¹ pour le lait et de 50 Bq.kg⁻¹ pour toutes les autres denrées (seuils de mesures pratiqués par le SCPRI dans le cadre de la surveillance de l'environnement). Seuls les légumes à feuilles produits dans l'Est de la France et le lait de vache ont dépassé ces niveaux. Plusieurs éléments expliquent ce constat.

Ce n'est que dans le tiers est du pays que les dépôts radioactifs ont été suffisamment importants pour conduire à une contamination des feuilles et donc des légumes à feuilles, supérieure à 50 Bq.kg⁻¹. Par ailleurs, même sur ces départements, la captation peu efficace des dépôts pluvieux par les feuilles explique que les mesures effectuées n'ont pas excédé quelques centaines de Bq.kg⁻¹ pour le ¹³⁷Cs et quelques milliers pour ¹³¹I. Lorsqu'il pleut, la contamination de la chaîne alimentaire n'augmente pas de façon proportionnelle aux dépôts. Grossièrement, pour un dépôt 10 fois supérieur lors d'une pluie, la contamination de la salade qui en résulte n'est que deux fois plus élevée. En effet, les feuilles des végétaux ne peuvent retenir toute l'eau qu'elles reçoivent : elles s'égouttent. A fortiori, elles ne peuvent donc retenir qu'une petite partie de la contamination contenue dans cette eau.

Bien que l'iode et le césium soient des éléments parmi les plus mobiles dans la plante, seule une partie de l'activité retenue par les feuilles a été transférée vers les autres parties du végétal. La contamination des gousses, fruits, racines ou tubercules a donc été beaucoup plus faible que celle des feuilles. C'est ce qui explique que même dans l'Est de la France, la contamination des légumes fruits (tomates, oignons, aubergines...) et racines ou tubercules (carottes, radis, pommes de terre), soit restée faible. Notamment, au début de mai 1986, les vignes et la plupart des fruitiers se trouvaient à un stade de développement extrêmement précoce. Les radionucléides interceptés par les feuilles, lorsqu'elles existaient déjà, n'ont été très peu transférés vers les fruits, inexistantes ou embryonnaires. Ainsi, la contamination du vin sur les zones les plus touchées de l'Est de la France n'a pas excéder 0,5 Bq.l⁻¹. Il faut noter cependant que la contamination en césium de certaines variétés de cerises très précoces a pu atteindre 300 Bq.kg⁻¹. En ce qui concerne les céréales, si, au début mai, elles avaient achevé leur croissance, les grains n'étaient le plus souvent pas encore formés, et leur contamination a donc été très faible. Ce n'est que dans 5 départements du Sud-Est de la France, dont la douceur du climat permet un développement plus précoce des grains, que la contamination en ¹³⁷Cs des céréales à la récolte a dépassé 50 Bq.kg⁻¹ pour atteindre 200 Bq.kg⁻¹ dans de l'orge en Corse.

Ainsi, la date d'occurrence des dépôts a donc considérablement limité les conséquences de l'accident de Tchernobyl pour de nombreuses productions agricoles. Les niveaux de contamination moyens du lait et des légumes à feuilles, qui ont été les deux productions agricoles les plus sensibles aux dépôts radioactifs de mai 1986, sont donc connus pour les trois radionucléides qui ont le plus contaminé la chaîne alimentaire : ¹³¹I, ¹³⁷Cs et ¹³⁴Cs.

La contamination des légumes à feuilles et du lait a été maximale immédiatement après les dépôts. Les mesures des 15 premiers jours de mai 1986 montrent que la France peut être découpées en 4 zones où la contamination des denrées se trouve relativement homogène. La variabilité au sein d'une même zone est équivalente à celle que l'on observe au sein d'un même département. Cette variabilité dépasse rarement un facteur 5, alors que celle des dépôts atteint 40 (de 1000 Bq.m⁻² à 40000 Bq.m⁻²), d'autant qu'elle peut être également due à la représentativité des échantillons (type de légume à feuilles, pratiques agricoles). Ainsi, Dans les départements composant la zone 1 (Est de la France), la contamination la plus élevée mesurée dans le lait a atteint 100 Bq.l⁻¹ de ¹³⁷Cs et 600 Bq.l⁻¹ de ¹³¹I ; 600 Bq.kg⁻¹ et 2700 Bq.kg⁻¹ respectivement dans les légumes à feuilles. Ces valeurs n'ont été atteintes qu'entre le 5 et le 15 mai 1986. Sur la zone 4 (la plus à l'Ouest), les valeurs mesurées les plus élevées n'ont jamais dépassé 10 Bq.l⁻¹ pour ¹³⁷Cs et 100 Bq.l⁻¹ pour ¹³¹I.

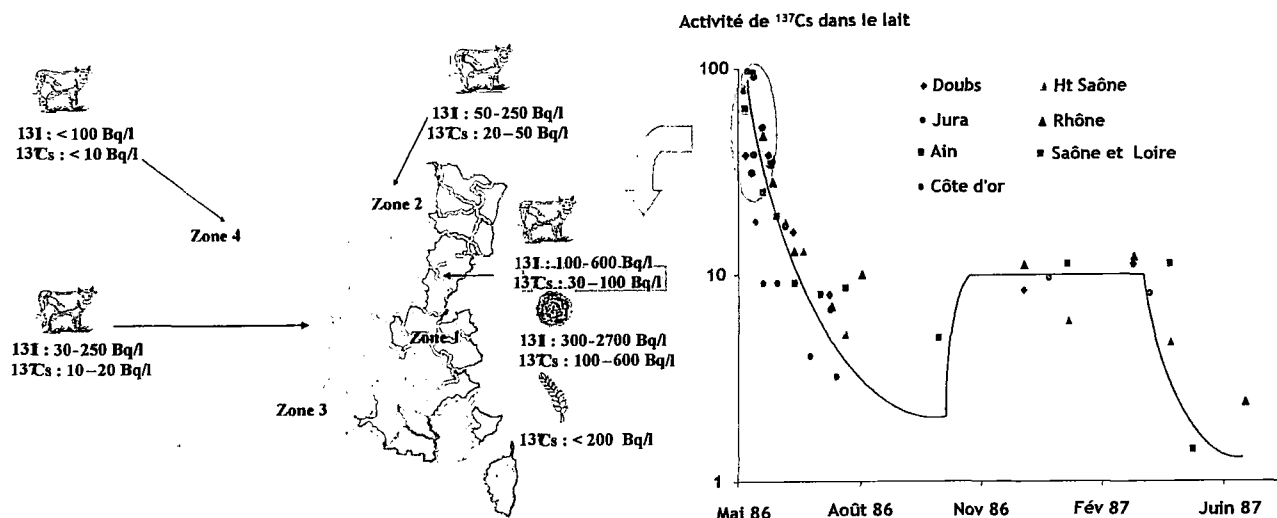


Figure 4 : Evolution et cohérence des mesures de ^{137}Cs dans le lait et découpage de la France en 4 zones au sein desquelles la contamination de la chaîne alimentaire a été relativement homogène : gammes de contamination atteintes au cours des 15 premiers jours de mai 1986.

Les niveaux de contamination ont ensuite rapidement chuté, notamment dans les légumes à feuilles (figure 5). Dès la fin du mois de mai 1986, leurs teneurs en ^{131}I étaient 100 à 1000 fois plus faibles ; celles de ^{137}Cs et ^{134}Cs , 10 à 100 fois plus faibles. Cette diminution, plus rapide que celle imputable à la seule décroissance radioactive, notamment pour ^{137}Cs , s'explique par la croissance du végétal au moment et après les dépôts radioactifs. En effet, une salade récoltée 40 jours après le dépôt, n'était qu'un jeune plant au moment où celui-ci s'est effectué. La captation des particules radioactives a donc été beaucoup moins importante que pour une salade à maturité au moment du dépôt. De plus, le jeune plant contaminé a continué son développement durant les 40 jours entraînant l'augmentation de sa masse et donc la dilution de l'activité initialement retenue. Enfin, après juin 1986, les activités du ^{137}Cs mesurées dans les légumes à feuilles sont devenues inférieures à 1 Bq.kg^{-1} . La durée de culture d'une salade étant de 40 à 60 jours au maximum, seules les salades récoltées dans ce délai ont pu recevoir directement les dépôts radioactifs sur leurs feuilles. Celles récoltées à partir de juillet 1986, semées après ces dépôts, présentaient une contamination moindre due au transfert de la contamination du sol vers les racines.

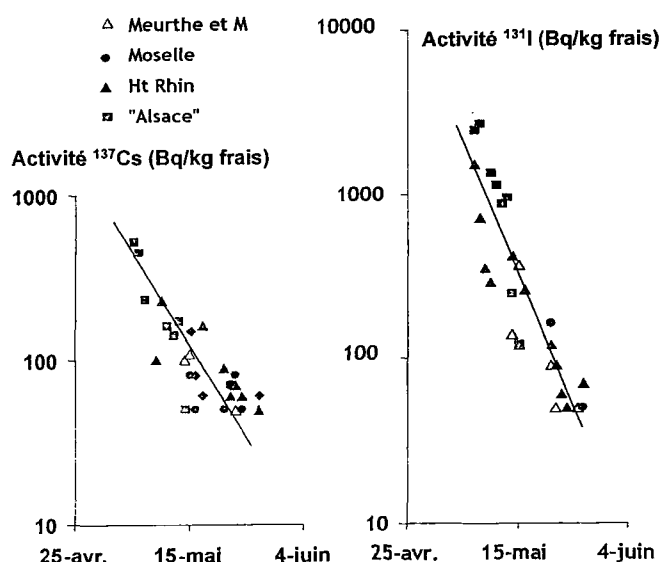


Figure 6 : Evolution de la contamination en ^{137}Cs et ^{131}I des légumes à feuilles dans le Nord-Est de la France

Pour le lait, l'évolution des activités de ^{137}Cs présentées dans la figure 4 s'explique principalement par l'alimentation des vaches. En période de pâture (mai-octobre), l'activité du lait décroît avec celle de l'herbe ; en période hivernale, elle réaugmente en se stabilisant (l'activité massique du foin fauché ne diminue que par décroissance radioactive). Au printemps 1987, la remise au pâturage, dont l'herbe s'est renouvelée, conduit à un effondrement définitif de la contamination du lait dont la concentration en ^{137}Cs se situe dès lors en dessous de quelques Bq.l^{-1} . Ces évolutions sont tout à fait cohérentes avec celles constatées dans d'autres pays d'Europe comme l'Allemagne ou l'Autriche

Ces mesures témoignent que durant les premières semaines qui ont suivi les dépôts, la concentration en césium ($^{137}\text{Cs} + ^{134}\text{Cs}$) des légumes à feuilles a dépassé dans plusieurs départements de l'est, les limites fixées le 30 mai 1986 par la Commission des Communautés Européennes (CCE) pour l'importation de produits alimentaires originaires de pays tiers : 600 Bq.kg^{-1} pour les denrées solides. La limite de commercialisation du lait, fixée à 370 Bq.l^{-1} n'a en revanche pu être dépassé que ponctuellement. En revanche, les teneurs en ^{131}I du lait de vache produit en France ont très régulièrement dépassé les limites fixées par la CCE le 6 mai 86 à 500 Bq.l^{-1} , puis le 16 mai à 250 Bq.l^{-1} . Pour le lait de chèvre produit dans les régions les plus touchées de France, les activités en iode ont même pu dépasser de 10 à 100 fois ces limites. De même, la contamination des salades au début de mai 1986, de 1000 à plus de 10000 Bq.kg^{-1} suivant les dépôts (2600 Bq.kg^{-1} enregistrée par le CNEVA et 2750 Bq.kg^{-1} dans la salade achetée sur le marché de Mandelieu le 2 mai) a très largement dépassé la limite de 350 Bq.kg^{-1} fixées le 6 mai par la CCE.

Outre les légumes feuilles et le lait des tout premiers jours de mai, c'est dans la viande que se trouvaient les plus hauts niveaux de contamination. Dans les zones les plus touchées de l'est du pays, les teneurs en ^{137}Cs de la viande ont pu dépasser 300 Bq.kg^{-1} tout au long de l'année 1986, avoisinant durant plusieurs mois 1000 Bq.kg^{-1} . Il a probablement fallu attendre la fin de l'année 1987 pour que l'activité de la viande passe définitivement en deçà de 100 Bq.kg^{-1} . Deux raisons expliquent une telle rémanence de la contamination en ^{137}Cs de la viande. D'une part le transfert du césium est plus important vers le muscle que vers les glandes mammaires, et d'autre part l'élimination métabolique du césium du muscle est beaucoup plus lente. C'est pourquoi, l'activité de la viande de bœuf a diminué moins rapidement que celle du lait.

Son évolution depuis

Dès la fin de l'année 1987, il ne restait guère, hormis certains produits transformés de longue conservation, de denrées directement concernées par les dépôts radioactifs de mai 1986. A partir de 1988, la contamination de la chaîne alimentaire provient principalement de la contamination du sol. En puisant leurs substances nutritives, les plantes absorbent aussi les deux radionucléides encore présents dans les sols : le ^{137}Cs et le ^{134}Cs . Depuis 1988, c'est ce transfert « racinaire » et son évolution qui détermine la contamination de l'ensemble de la chaîne alimentaire.

Après 1988, les activités en césium ont été beaucoup plus faibles que les deux années précédentes. En effet, l'activité d'un végétal est au moins 10 à 100 fois plus faible que celle du sol dans lequel il pousse. Ainsi, même sur les sites de la zone 1 où les dépôts ont été les plus importants, les teneurs maximales en ^{137}Cs des productions agricoles n'ont pu dépasser significativement 10 Bq.kg^{-1} ; et ont du majoritairement rester en deçà de 1 Bq.kg^{-1} sur l'ensemble de cette zone. De plus, ces niveaux de contamination ont régulièrement diminué au fil des années. De manière générale, la plupart des productions agricoles ont vu leur contamination en ^{137}Cs diminuer d'un facteur 2 tous les 4 à 10 ans, c'est-à-dire d'un facteur 4 à 30 au cours des 20 années qui se sont écoulées depuis l'accident. Il en résulte qu'aujourd'hui, les teneurs en ^{137}Cs sont proches du niveau qu'elles avaient avant l'accident (Roussel-Debet, 2006). Ainsi, l'activité du vin des côtes du Rhône a vu sa contamination diminuer de $0,6 \text{ Bq.l}^{-1}$ en 1986 à $0,02 \text{ Bq.l}^{-1}$ (20 mBq.l^{-1}) en 2000 (Renaud, 2003). Cette diminution de la contamination des denrées depuis 1988 s'explique par le fait que le césium se fixe progressivement aux particules de sol, de manière de plus en plus difficilement réversible. Dès lors il est de moins en moins présent dans l'eau du sol puisée par les plantes ; c'est donc sa biodisponibilité qui diminue.

Les produits forestiers constituent des denrées particulières dont la contamination déjà élevée en 1986, n'a en moyenne que très peu diminué depuis. Dans les sols forestiers ou de prairie permanente, non remaniés par le labour, le césium reste en surface. Ainsi, 20 ans après les dépôts, plus de 60% du césium se trouve dans les 10 premiers centimètres des sols argileux et riches en matière organique, dans lesquels poussent les champignons et fouissent les sangliers. Dans les années à venir, leur activité pourra toujours atteindre le millier de Bq.kg^{-1} .

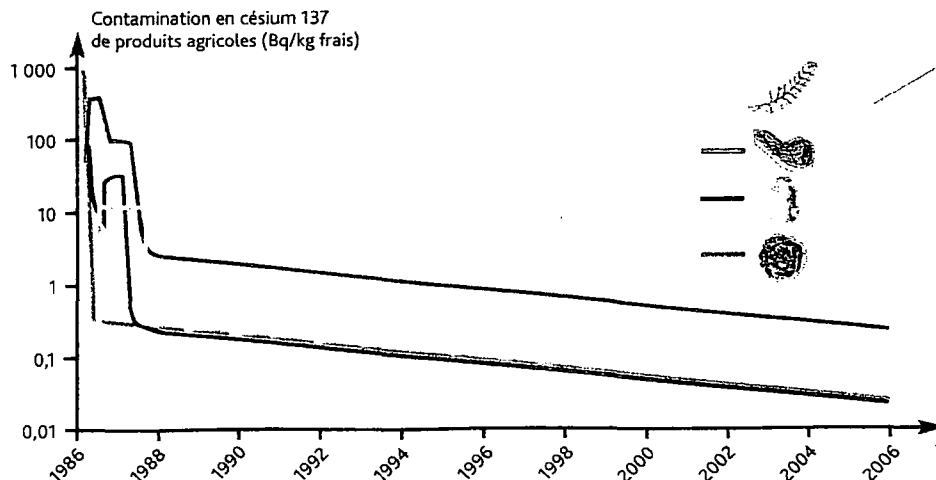


Figure 7 : Evolution de la contamination moyenne en ^{137}Cs des céréales, de la viande de bœuf, du lait de vache dans l'est de la France de 1986 à 2006 (Bq/kg frais)

Expositions de la population en 1986

L'estimation des doses reçues est la première étape pour évaluer les risques encourus. Elle porte sur les grandeurs suivantes : la dose efficace pour l'évaluation globale du risque de cancer et la dose équivalente au niveau d'un organe pour l'évaluation du risque de survenue d'une pathologie affectant cet organe. En raison de l'importance de la contamination environnementale en ^{131}I après l'accident de Tchernobyl, l'évaluation de la dose à la thyroïde chez les enfants est pertinente ; d'une part parce que la thyroïde concentre l'iode, et d'autre part parce que celle des enfants est particulièrement sensible aux rayonnements. Ces grandeurs dosimétriques qui ne se mesurent pas directement et qui sont évaluées par calcul, s'expriment en microSievert (μSv), voire en milliSievert (mSv).

Les premières expositions auxquelles la population a été soumise sont dues à l'inhalation et au rayonnement de l'air contaminé. Ces expositions sont proportionnelles à la contamination de l'air. Les doses efficaces correspondantes n'ont pas atteint 50 μSv , même au voisinage de Verdun où les activités mesurées dans l'air ont été les plus élevées de France. Dans l'extrême Ouest, elle a été de l'ordre de quelques μSv . La dose externe est négligeable car 200 fois plus faible que la dose par inhalation. Cette dernière est due à 90 % au couple ^{132}Te - ^{132}I . Pour les enfants, la dose équivalente à la thyroïde est restée inférieure à 500 μSv (470 μSv pour un enfant de 1 an). L'inhalation d'iode 131 représente 90% de cette dose..

Dès que les dépôts radioactifs ont été constitués, la population a été exposée à leur rayonnement. Même si l'exposition croît avec les dépôts, cette exposition est très influencée par les modes et lieux de vie. Afin de prendre en compte la variabilité des conditions d'exposition, une gamme de dose a été calculée. Ainsi, la dose externe due aux dépôts en 1986 a été de l'ordre de 10 μSv en un lieu où le dépôt de ^{137}Cs était de 1 000 Bq/m^2 ; fluctuant autour de cette valeur en fonction notamment du temps passé quotidiennement à l'extérieur. Les gammes de doses pour d'autres valeurs de dépôts sont directement proportionnelles à celle fournie pour le dépôt unitaire (1 000 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ de ^{137}Cs). Par exemple, pour une personne résidant dans une des communes les plus touchées de France (40000 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ de ^{137}Cs), la dose externe due aux dépôts a pu atteindre 400 μSv pour l'année 1986.

La dose par ingestion est proportionnelle à la contamination des denrées consommées et ne peut pas être reliée au lieu de résidence des personnes exposées. En effet, en raison du brassage agro-alimentaire à l'échelle régionale, nationale, voire internationale, les denrées consommées en majorité ne sont pas produites localement. Par ailleurs, comme cela a été montré précédemment, la contamination de la chaîne alimentaire n'est pas proportionnelle aux dépôts, eux-mêmes entachés d'incertitudes à l'échelle locale. Enfin, de par l'existence de produits nettement plus contaminés (légumes à feuilles, lait et produits dérivés, notamment de chèvre ou de brebis), les habitudes alimentaires deviennent rapidement prépondérantes par rapport à l'importance des dépôts radioactifs sur la localité même de résidence.

Les mesures effectuées en 1986 dans le lait et les légumes à feuilles montrent une certaine homogénéité de la contamination de la chaîne alimentaire sur de vastes zones qui se prêtent bien à l'évaluation de la dose moyenne reçue par la population. A cette échelle, on peut supposer que la majeure partie des denrées consommées dans ces zones puisse en provenir. La gamme des doses moyennes par ingestion en France peut donc être établie de manière satisfaisante par l'évaluation des doses reçues par les habitants résidant dans la zone la plus à l'Est du pays (zone 1 pour la dose moyenne la plus élevée) et dans la zone la plus à l'Ouest (zone 3 pour la dose moyenne la plus faible). La dose efficace engagée moyenne due à la consommation de denrées contaminées de mai à décembre 1986 a été inférieure à 50 μSv pour les adultes habitant l'Ouest de la France et de l'ordre de 300 μSv pour ceux habitant l'Est.

Ces évaluations de dose par ingestion ont pu être partiellement validées à partir de mesures anthroporadiométriques ou d'analyses radio-toxicologiques. Ces examens, qui consistent à mesurer le rayonnement émis par le corps ou un organe particulier ou encore à mesurer la contamination des urines, sont pratiqués en routine dans l'industrie nucléaire. Les mesures réalisées chez des travailleurs de différents sites nucléaires, ainsi que dans des services de médecine nucléaire peuvent donc être mises en regard des doses par ingestion calculées. Parmi les 60000 mesures exploitées pour cette validation, la figure 8 présente les statistiques tirées des 2 200 mesures de charges corporelles en ^{137}Cs effectuées entre avril 1986 et juin 1988, sur le site nucléaire de Pierrelatte. Dès le mois de mai 86, toutes les mesures ont montré l'augmentation des incorporations de ^{137}Cs dues à l'accident de Tchernobyl. La lente diminution des charges corporelles traduit globalement la diminution de contamination des aliments, notamment des légumes feuilles, du lait puis de la viande, combinée à l'élimination biocinétique du césium par l'organisme. La figure 8 montre une bonne concordance entre les charges de ^{137}Cs calculées et celles mesurées, validant ainsi les doses efficaces par ingestion calculées pour la population autour de ce site.

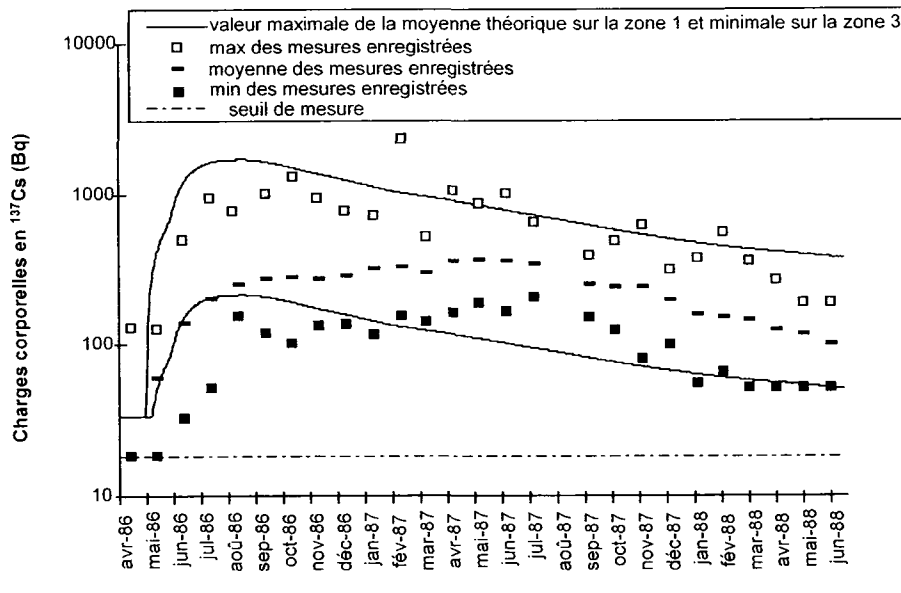


Figure 8 : Évolution des charges corporelles en ^{137}Cs de travailleurs du site de Pierrelatte. Comparaison des mesures avec les charges corporelles correspondant aux doses calculées

Néanmoins, des habitudes alimentaires très différentes des rations alimentaires standard retenues ont pu conduire à des doses situées en dehors de l'intervalle donné ci-dessus.

Au total, en 1986, la dose efficace reçue par la population la plus exposée de l'Est de la France, toutes expositions confondues, a pu approcher 1 mSv. Elle était due à plus de 70% à l'ingestion de denrées contaminées ; l'exposition externe aux dépôts ne représentant que 20% et l'exposition au panache (inhalation et externe) moins de 10%. Cette dose est à comparer à la dose due aux autres sources d'expositions, naturelles et médicales, qui est en moyenne de 2,4 mSv par an. La dose efficace annuelle due aux retombées en France de l'accident de Tchernobyl a ensuite régulièrement diminué comme le montre la figure 9. Cette évolution résulte de la diminution de la dose par ingestion, liée à diminution de la contamination des denrées. Cette dose efficace est aujourd'hui au maximum de l'ordre de 100 μSv et résulte principalement de l'exposition externe au dépôt.

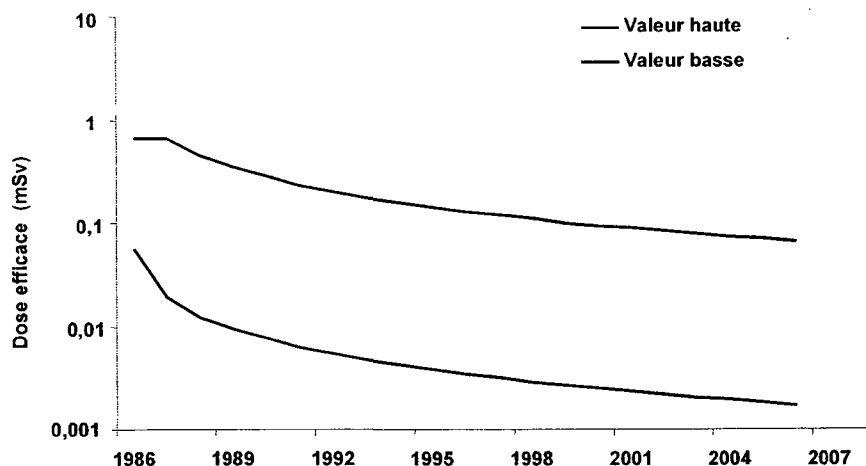


Figure 9 : Evolution de la dose efficace en France due aux retombées de l'accident de Tchernobyl ; valeur haute plus particulièrement dans les zones les plus touchées de l'Est, valeur basse plus liée géographiquement à l'extrême Ouest du pays.

Les doses à la thyroïde des enfants, liée principalement à l'incorporation d'¹³¹I par ingestion de produits laitiers frais, ont été calculées pour différentes classes d'âge, ce qui permet de prendre en compte la sensibilité de la thyroïde et la ration alimentaire spécifique à un âge donné. Le tableau suivant présente les doses pour les enfants les plus exposés qui sont ceux résidant dans la partie Est du pays (zone 1). La valeur maximale de $9,5 \pm 3,2$ mSv est atteinte pour les enfants de 1 an ; elle résulte d'une combinaison « quantité de lait consommée/sensibilité de la thyroïde » plus pénalisante que pour les autres classes d'âge.

Doses équivalentes à la thyroïde en mSv, dues à l'ingestion d'iode 131 pour les résidents dans l'Est de la France (zone I) âgés de moins de 15 ans en 1986 (Vidal et Renaud, 2000).

3 mois	1 an	5 ans	10 ans
$1,7 \pm 0,6$	$9,5 \pm 3,2$	$5,7 \pm 1,9$	$2,7 \pm 0,9$

Ces doses ont été délivrées presque exclusivement entre mai et juillet 1986 en raison de la courte période radioactive de ¹³¹I. Elles sont au moins 100 fois plus faibles que celles reçues par les enfants de Biélorussie pour lesquels une épidémie de cancers de la thyroïde est observée.

L'étude de risque effectuée par l'IRSN et l'Institut de Veille Sanitaire en 2000 pour les 2,3 millions d'enfants résidants dans l'Est du pays en 1986, montre que les excès de cancers estimés selon différents modèles de risques sont inférieurs ou comparables aux incertitudes sur l'estimation du nombre de cancers spontanés.

Estimation du nombre de cancers de la thyroïde spontanés et des excès de cancers dus à l'accident de Tchernobyl chez les enfants de moins de 15 ans en 1986 et résidants dans l'Est de la France.

Période	Nb de cancers de la thyroïde spontanés	Nb de cancers en excès en France dus à l'accident de Tchernobyl
1991 - 2015	899 ± 60	De 6,8 à 54,9

Compte tenu du délai de latence d'au moins 5 ans entre l'exposition de la thyroïde et l'apparition d'un cancer, l'évaluation du risque porte sur une période qui débute en 1991.

L'explication de la tendance générale à l'augmentation des cancers de la thyroïde que l'on observe en France depuis la fin des années 70, est à rechercher tant du côté de l'évolution des pratiques de dépistage de cette maladie, que celui des multiples facteurs de risques susceptibles de provoquer des cancers.

Pour en savoir plus : Les retombées en France de l'accident de Tchernobyl (2^{ième} édition), des mêmes auteurs, à paraître début 2007.

ÉVALUATION DES VITESSES DE DÉPÔT SEC DES AÉROSOLS EN MILIEU URBAIN : UTILISATION DE LA FLUORESCEINE ET DU ^7Be COMME TRACEUR DU DÉPÔT

O. Connan⁽¹⁾, D. Maro⁽¹⁾, P. Germain⁽¹⁾, M. Rozet⁽¹⁾, D. Hébert⁽¹⁾, L. Solier⁽¹⁾, D. Boulaud⁽²⁾
L. Tenailleau⁽³⁾

⁽¹⁾ Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, DEI/SECRE/LRC, F 50130 Cherbourg Octeville
Olivier.connan@irsn.fr

⁽²⁾ Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, DEI, F 78116 Le Vésinet

⁽³⁾ Marine nationale - EAMEA/GEA - BP19 - 50115 Cherbourg armées

TITLE

Estimation of dry deposition velocity of fine aerosols in urban area: use of fluorescein and ^7Be as deposition tracer

ABSTRACT

In the frame of its researches, IRSN studies the aerosols dry deposition in both rural and urban environments. In case of accidental release of radionuclides in the atmosphere, IRSN must be able to calculate the impact on the population in urban zone. For it, IRSN takes part in the PRIMEQUAL project called SaliFa. The objective of this project is to quantify the soiling of building façades. It was performed in collaboration with « Centre Scientifique et Technique du Bâtiment » (CSTB), « Complexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie » (CORIA, Rouen) and « Ecole Centrale de Nantes » (ECN). During this study, dry deposition velocities of aerosols have been measured on glass and mineral coating specimens. Two types of experiments were conducted. one "short-term" campaign using fluorescein as tracer and one "long-term" using ^7Be radionuclide as tracer for access to dry deposition velocity. Results obtained by both experimental approaches, fluorescein on one hand and natural radioactivity (^7Be) on the other hand are in good agreement.

RÉSUMÉ

Dans le cadre de ses recherches, l'IRSN étudie le dépôt sec des aérosols en milieu rural autour d'une installation nucléaire (AREVA La Hague) et en milieu urbain. En effet, en cas d'émission de radionucléides sous forme d'aérosols (accident nucléaire, acte terroriste...), l'IRSN doit être à même d'apporter les informations nécessaires à la quantification de l'impact qui en résulterait. En milieu urbain, l'IRSN participe au projet PRIMEQUAL appelé « SaliFa » dont l'objectif est de mieux comprendre les mécanismes physiques à l'origine de l'encrassement des façades de bâtiment. Diverses équipes collaborent au projet SaliFa. Le Centre Scientifique et Technique du Bâtiment (CSTB), le Complexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie (CORIA) et l'Ecole Centrale de Nantes (ECN) interviennent pour les aspects bâtiment (supports étudiés), micrométéorologie et simulations numériques. Pour cette étude, il s'agit de déterminer les vitesses de dépôt sec d'aérosols sur différents types de substrats (verres et enduits de façade). Deux types d'expériences ont été mises en œuvre sur un même site. Deux campagnes dites « courtes » utilisant la fluorescéine comme traceur ont permis d'évaluer les vitesses de dépôt des particules sur différentes surfaces. Une campagne de mesures dite « longue » utilisant le ^7Be comme traceur du dépôt a permis après plusieurs mois d'exposition des substrats à des conditions urbaines réelles d'accéder aux vitesses de dépôt. Les résultats ainsi obtenus par une approche totalement expérimentale et par une méthode utilisant l'aérosol naturel ^7Be sont en bon accord.

1 : INTRODUCTION

Dans le cadre de ses recherches, l'IRSN étudie le dépôt sec des aérosols en milieu rural autour d'une installation nucléaire (AREVA La Hague) et en milieu urbain. En effet, en cas d'émission de radionucléides sous forme d'aérosols (accident nucléaire, acte terroriste...), l'IRSN doit être à même d'apporter les informations nécessaires à la quantification de l'impact qui en résulterait. En milieu urbain, l'IRSN participe au projet SaliFa-PRIMEQUAL (Sacré *et al.*, 2006) dont l'objectif est de mieux comprendre les mécanismes physiques à l'origine de l'encrassement des façades de bâtiment. Diverses équipes collaborent dans ce projet. Le Centre Scientifique et Technique du Bâtiment (CSTB), le Complexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie (CORIA) et l'Ecole Centrale de Nantes (ECN) interviennent pour les aspects bâtiment (supports étudiés), micrométéorologie et simulations numériques.

L'étude s'articule autour de deux types d'expériences qui ont été mises en oeuvre sur un même site (ville de Nantes). Deux campagnes de mesures dites "courtes" qui doivent permettre d'évaluer les vitesses de dépôt des particules pour des aérosols de 0,2 μm , en fonction de la nature de la surface de dépôt et des conditions micrométéorologiques au voisinage immédiat d'une paroi. Le diamètre de 0,2 μm a été choisi car il correspond au diamètre médian en masse du mode accumulation des particules en milieu urbain (Boulaud et Renoux, 1998). Une campagne de mesures dite "longue" qui consiste à exposer des éprouvettes de verres et d'enduits durant 24 mois, à des conditions urbaines réelles afin de déterminer l'évolution de l'encrassement en fonction des conditions météorologiques et du niveau de pollution locale. Durant ce projet, les équipes interviennent à différents stades : le CSTB a procédé au choix et à la réalisation des éprouvettes de verres et d'enduits testées durant l'étude et assure la gestion du site pour la campagne longue, l'ECN réalise des mesures météorologiques et la simulation numérique de l'étude et le CORIA effectue des mesures de flux turbulent au voisinage des parois.

Cet article présente les résultats expérimentaux concernant les vitesses de dépôt déterminées à partir des expériences « courtes » (émission d'un aérosol de manière expérimentale) et « longues » (quantification des dépôts sur une période de plusieurs mois) sur les différents substrats étudiés. L'étude du dépôt sec des aérosols reste un domaine de recherche peu étudié qui implique une approche expérimentale *in situ* pour prendre en compte les particularités locales (turbulence, substrat, etc...) (Maro *et al.*, 2004). Durant les campagnes « courtes », un aérosol monodispersé de fluorescéine est utilisé comme traceur du dépôt. Pour la campagne « longue » c'est le béryllium 7, radioélément naturel, qui permet de déterminer les vitesses de dépôt. Deux types de verres (verre non traité et verre dit « autonettoyant ») et trois types d'enduit de rugosité respectives 2 mm, 3 mm et 5 mm sélectionnés par le CSTB ont été testés.

2 : MATÉRIELS ET MÉTHODES

2.1 : CAMPAGNE COURTE : MÉTHODE DE MESURE DES VITESSES DE DÉPÔT SEC DES AÉROSOLS EN GÉNÉRANT UN TRACEUR

2.1.1 : Principe

La technique mise au point pour déterminer les vitesses de dépôt sec des aérosols sur différents substrats repose sur l'émission dans l'atmosphère d'un aérosol sec de fluorescéine (uranine) dont une partie se dépose, et qui est ensuite mesuré dans l'air et sur les substrats étudiés. La vitesse de dépôt, dont la dimension est celle d'une vitesse ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), est le quotient de la densité de flux de dépôt sec sur le substrat ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) et de la concentration atmosphérique au niveau du substrat ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). Simultanément à la fluorescéine, un gaz traceur (hexafluorure de Soufre SF_6) est émis afin d'accéder au Coefficient de Transfert Atmosphérique (CTA), donc à la concentration atmosphérique des aérosols au niveau des substrats. Le CTA est calculé en faisant le rapport de la concentration de SF_6 intégrée sur la totalité du temps de passage du panache au point d'observation, à la quantité totale émise correspondante. Le prélèvement de SF_6 permet des mesures plus ponctuelles que la fluorescéine. Cette méthode permet donc de pallier le manque de mesures systématiques de fluorescéine dans l'air, où seulement deux mesures sont faites par expérience. Des mesures micrométéorologiques sont également effectuées sur le site d'expérimentation, au niveau de la génération des aérosols et au niveau des substrats. Un schéma illustrant le protocole est proposé sur la figure 1.

2.1.2 : Émission des aérosols de fluorescéine et du gaz traceur SF₆

L'aérosol est généré sous forme de résidu sec en utilisant un générateur de fluorescéine sodée. Le diamètre médian en masse des particules générées est proche de 0,2 µm (écart type géométrique de 1,7). Le débit d'émission de la fluorescéine est de 30 mg.h⁻¹. Les aérosols de fluorescéine sont générés pendant une période variant de 30 à 60 minutes. Lors de la génération de l'aérosol, il est vérifié, visuellement, à l'aide d'une girouette que les substrats (éprouvettes de verres et d'enduits) se trouvent en permanence dans l'axe moyen du vent. La distance entre le point d'émission de fluorescéine et les différents substrats étudiés varie de 10 à 12 m. Le SF₆ est un gaz d'origine anthropogénique et n'est donc pas présent dans l'atmosphère, ce qui en fait un traceur efficace. Le système d'émission utilisé est composé d'une bouteille de SF₆ de type B40 (Messer, France) connectée à un débitmètre massique (Sierra 820). Le débit d'émission du SF₆ est fixé à 0,4 g.s⁻¹. L'émission est effectuée dans la canne d'émission de l'aérosol de fluorescéine.

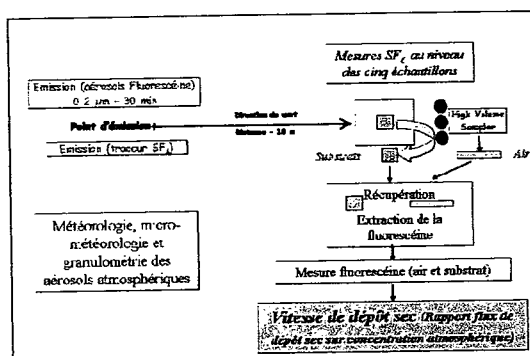


Figure 1 : Schéma du dispositif expérimental

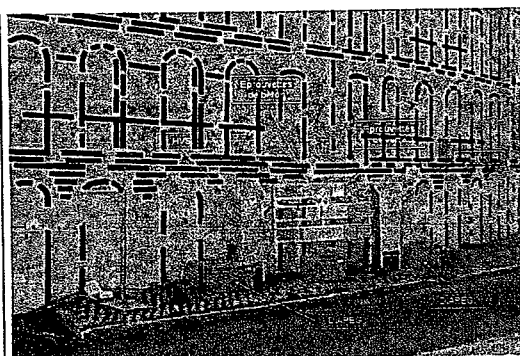


Figure 2 : Positionnement des substrats et des systèmes de prélèvements

2.1.3 : Prélèvements des aérosols de fluorescéine et du gaz traceur SF₆

Les aérosols de fluorescéine sont prélevés pour effectuer des mesures dans l'air et sur les supports de verres et d'enduits. Les aérosols présents dans l'air sont prélevés à l'aide de deux HVS (High Volume Sampler) à un débit de 30 m³.h⁻¹ sur des filtres de type Whatman 40 (Ashless 40-1440917). Les différents types de substrats étudiés sont des éprouvettes de verre non traité, des éprouvettes de verre dits « autonettoyant », des éprouvettes d'enduit de rugosités 2 mm, 3 mm et 5 mm. Pendant la génération de fluorescéine, trois éprouvettes de chaque type sont fixées sur un support dans le panache de fluorescéine à proximité des HVS utilisés pour les prélèvements des aérosols de l'air. A la fin de chaque génération, les différents échantillons (filtres pour l'air et éprouvettes) sont protégés de toute contamination par du papier aluminium et stockés jusqu'à l'analyse. Les prélèvements d'air pour l'analyse du gaz SF₆ sont effectués pendant la durée totale de génération de la fluorescéine dans des sacs à gaz de 1 L à l'aide d'un système automatisé composé d'une pompe et d'un débitmètre (DIAPEG). Les prélèvements sont effectués aux quatre coins et au centre du bâti supportant les éprouvettes. Le positionnement du dispositif est indiqué sur la figure 2.

2.1.4 : Mesure de la concentration des aérosols de fluorescéine et du gaz traceur SF₆

La mesure de la concentration en fluorescéine est effectuée à l'aide d'un spectrophotomètre UV (Horiba Fluoromax-3). La longueur d'onde d'excitation est fixée à 490 nm et la mesure de l'émission est effectuée à 512 nm. Pour la mesure de la concentration des aérosols de fluorescéine dans l'air, les filtres sont coupés et immergés dans une solution aqueuse d'ammoniac à pH = 9 sous agitation mécanique durant 20 min. Pour la mesure de la concentration des aérosols déposés sur les substrats, les éprouvettes de verres et d'enduits sont lavées avec une solution aqueuse d'ammoniac à pH 9, puis les solutions de lavage sont filtrées à 0,2 µm avant la mesure par spectrophotométrie. Les analyses des teneurs en SF₆ sont effectuées par Chromatographie en Phase Gazeuse (AUTOTRAC, Lagus Applied technology inc).

2.1.5 : Acquisition des données micrométéorologiques

Les données micrométéorologiques (vitesses de frottement sur le mur et sur le sol notamment) sont obtenues à partir d'anémomètres soniques (Young 81000, 20 Hz) placés à différents endroits au niveau du site d'expérimentation. Afin de compléter le dispositif, une station météorologique (vitesse du vent, hygrométrie, radiation etc...) est également placée à quelques mètres du générateur de fluorescéine et du bâti sur lequel reposent les éprouvettes.

2.2 : CAMPAGNE LONGUE : UTILISATION DU ^7Be COMME TRACEUR NATUREL DU DÉPÔT

Le ^7Be est un isotope naturellement produit dans l'atmosphère, qui se fixe sur les particules atmosphériques de l'ordre de $0,5 \mu\text{m}$ (écart type géométrique de 1,5). Les activités en ^7Be dans l'air dépendent des échanges de masses d'air entre la troposphère et la stratosphère, et des dépôts secs et humides d'aérosols. Ce radioélément est ainsi utilisé comme traceur des masses d'air. La méthode consiste à mesurer le ^7Be déposé sur les éprouvettes de verres et d'enduits. Après avoir été retirés du mur d'exposition, les échantillons sont traités par lavage acide et analysés par spectrométrie gamma. L'activité en ^7Be déposée sur chaque éprouvette est quantifiée et comparée à l'activité moyenne atmosphérique du ^7Be au moment de l'exposition, permettant ainsi de déterminer les vitesses de dépôt sur une plus longue période par rapport aux campagnes courtes.

3 : RÉSULTATS ET DISCUSSION

3.1 : Campagnes « courtes »

Les mesures ont été réalisées dans des conditions de vents faibles, de $1,0$ à $2,2 \text{ m.s}^{-1}$. Les vitesses de frottements au sol, u^* , variaient de $0,1$ à $0,6 \text{ m.s}^{-1}$. Les vitesses de dépôt obtenues pour les verres lors des deux campagnes expérimentales de juin 2005 (SaliFa-1) et juin 2006 (SaliFa-2) sont synthétisées dans le tableau 1. Lors des campagnes courtes, les vitesses de dépôt ont varié de $1,1 \cdot 10^{-5}$ à $3,0 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ pour les verres et de $4,2 \cdot 10^{-5}$ à $1,2 \cdot 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$ pour les enduits.

Les vitesses moyennes sont de $3,0 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ et $1,5 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ pour les verres non traités et de $2,8 \cdot 10^{-5}$ et $1,1 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ pour les verres « auto-nettoyants » respectivement pour les campagnes de mesures de juin 2005 et 2006. Compte tenu des incertitudes (50 %), il n'y a pas de différences significatives entre les deux types de verres. Pour les deux types de verres, les valeurs des vitesses de dépôt sont systématiquement plus élevées lors de SaliFa-1. Les températures de l'air plus élevées et l'ensoleillement plus fort lors de SaliFa-2 pourraient avoir joué un rôle, via la thermophorèse, en agissant sur les températures de parois. En effet, lors de SaliFa-2, les températures de surface des différentes éprouvettes et de l'air ont été mesurées afin de rendre compte de cette possible influence. Ainsi pour le verre, les variations des vitesses de dépôt suivent les variations de l'inverse de la température de surface des éprouvettes (figure 3). Les vitesses de dépôt en fonction du gradient de température sont présentées sur la figure 4. Les vitesses de dépôts diminuent lorsque le gradient de température entre la paroi et l'air augmente.

Tableau 1 : Vitesses moyennes de dépôt en m.s^{-1} mesurées sur différents substrats lors des campagnes SaliFa-1 et -2.

Substrat	Verre Normal	Verre Auto Nettoyant	Enduit 2 mm	Enduit 3 mm	Enduit 5 mm
SALIFA 1	$3,0 \cdot 10^{-5}$	$2,8 \cdot 10^{-5}$	$1,2 \cdot 10^{-4}$	$9,6 \cdot 10^{-5}$	$1,2 \cdot 10^{-4}$
SALIFA 2	$1,5 \cdot 10^{-5}$	$1,1 \cdot 10^{-5}$	$5,1 \cdot 10^{-5}$	$4,2 \cdot 10^{-5}$	$4,5 \cdot 10^{-5}$

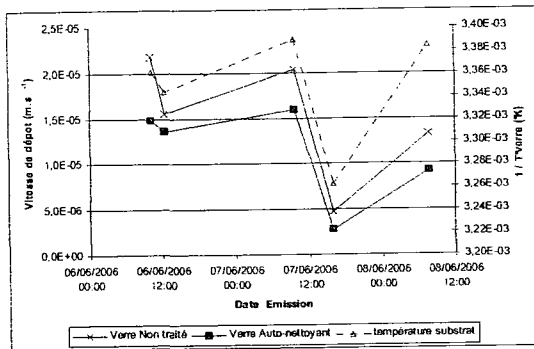


Figure 3 : Variations des vitesses de dépôt et température du verre ($1/T$ en K) pour les différentes émissions, cas des éprouvettes de verre : SaliFa-2, juin 2006

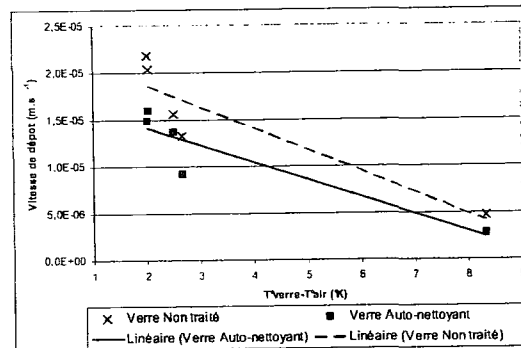


Figure 4 : Variations des vitesses de dépôt en fonction du gradient de température (K), cas des éprouvettes de verre : SaliFa-2, juin 2006.

Les vitesses de dépôt obtenues pour les différents enduits sont présentées dans le tableau 1. Les vitesses de dépôt moyennes obtenues indiquent qu'il n'y a pas de différences significatives entre les enduits de différentes rugosités. Comme pour les verres, les vitesses de dépôt sont aussi légèrement plus élevées (facteur 2 environ) lors de l'expérience SaliFa-1.

3.2 : Campagne « longue »

Les substrats verres et enduits ont également été exposés durant plusieurs mois aux conditions atmosphériques « urbaines » au centre ville de Nantes, avec une exposition limitant les effets de lavage par la pluie (Figure 5). Des échantillons ont été retirés après 8 et 12 mois d'exposition et des mesures de ^{7}Be ont été réalisées sur ces supports. Les résultats sont donnés dans le tableau 2. Pour calculer les vitesses de dépôt, l'activité atmosphérique moyenne mesurée (IRSN- Laboratoire de Métrologie de la Radioactivité de l'Environnement) est de 2,2 et 3,0 mBq.m^{-3} respectivement pour les deux séries d'exposition. L'incertitude sur la vitesse de dépôt ainsi calculée est de 50 %. Les vitesses de dépôt sont systématiquement plus faibles pour les verres que pour les enduits, ce qui est cohérent avec les résultats obtenus sur les campagnes expérimentales courtes. Il n'est pas observé de variations significatives entre les différents verres ni entre les différents enduits. Les vitesses de dépôt pour les verres varient de $3,4 \cdot 10^{-5}$ à $3,9 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ et de $1,1 \cdot 10^{-4}$ à $3,4 \cdot 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$ pour les différents enduits. Ces valeurs pour un aérosol « naturel » sont cohérentes avec ce qui a été obtenu lors des expériences courtes, confortant ainsi l'ensemble des résultats.

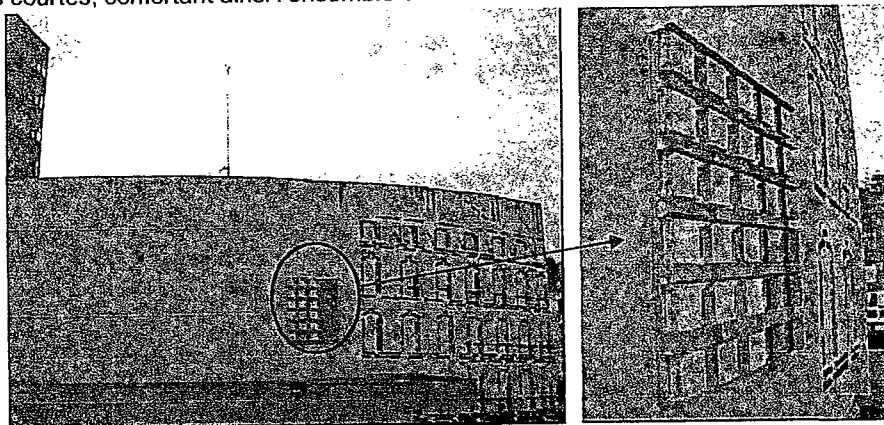


Figure 5 : Positionnement des éprouvettes au centre ville de Nantes l'étude des salissures et utilisées pour la méthode dite du béryllium-7

Tableau 2: Vitesses de dépôt ($m.s^{-1}$) obtenues par la méthode du 7Be sur les échantillons exposés en milieu urbain pendant plusieurs mois, campagne « longue ».

	Verre Normal	Verre Auto Nettoyant	Enduit 2 mm	Enduit 3 mm	Enduit 5 mm
Vd 7Be ($m.s^{-1}$) – 8 mois	$3,9 \cdot 10^{-5}$	$3,4 \cdot 10^{-5}$	$2,3 \cdot 10^{-4}$	$1,5 \cdot 10^{-4}$	$1,1 \cdot 10^{-4}$
Vd 7Be ($m.s^{-1}$) – 12 mois	$<6,6 \cdot 10^{-5}$	$<6,6 \cdot 10^{-5}$	$2,8 \cdot 10^{-4}$	$2,6 \cdot 10^{-4}$	$3,4 \cdot 10^{-4}$

4 : CONCLUSION

Dans le cadre de cette étude, des vitesses de dépôt sec d'aérosols en milieu urbain ont été mesurées sur des éprouvettes de verres et d'enduits de façade lors de plusieurs campagnes de mesures. Ces vitesses ont été déterminées par la méthode de la fluorescéine lors de campagnes « courtes » (SaliFa-1 et -2) et par la méthode du 7Be sur des éprouvettes exposées sur une longue période (campagne « longue»). Lors des campagnes courtes, les vitesses de dépôt sur les verres ont variées de $1,1 \cdot 10^{-5}$ à $3,0 \cdot 10^{-5} m.s^{-1}$ pour les verres et de $4,2 \cdot 10^{-5}$ à $1,2 \cdot 10^{-4} m.s^{-1}$ pour les enduits. Ces variations pourraient être liées d'une part à des phénomènes micrométéorologiques, d'autres part aux variations de températures de parois (thermophorèse). Lors de SaliFa-1 il n'a pas été observé de différences significatives entre les verres normaux et autonettoyants. Pour les enduits, lors de ces deux campagnes, il n'y a pas de différences sur les vitesses de dépôt en fonction de la rugosité. Pour les verres et les enduits, les vitesses de dépôt lors de SaliFa-2 étaient plus faibles que lors de SaliFa-1. Sur les éprouvettes exposées de 8 à 12 mois à une atmosphère urbaine (campagne longue), les vitesses de dépôt mesurées par la méthode du 7Be varient de $3,4 \cdot 10^{-5}$ à $3,9 \cdot 10^{-5} m.s^{-1}$ pour les verres et de $1,1 \cdot 10^{-4}$ à $3,4 \cdot 10^{-4} m.s^{-1}$ pour les enduits. La comparaison entre les résultats obtenus à partir d'aérosols de fluorescéine de manière totalement expérimentale sur les campagnes courtes et ceux obtenus par le 7Be , aérosol « naturel », sur des échantillons exposés plusieurs mois sont très proches.

Il semble maintenant essentiel lors de travaux futurs de pouvoir étudier précisément l'impact de la thermophorèse sur le dépôt d'une part, et d'autre part de réussir à mener des expérimentations pour des conditions micrométéorologiques variables, ce qui devra se faire sur des sites aux caractéristiques bien différenciées.

Remerciements

Cette étude est financée par le Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable (Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie) et réalisée en collaboration avec le Centre Scientifique et Technique du Bâtiment (CSTB de Nantes, Marne-la-Vallée et Grenoble), le Complexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie (CORIA, Rouen) et l'Ecole Centrale de Nantes (ECN). Nous remercions le Laboratoire de Métrologie de la Radioactivité de l'Environnement (IRSN/DEI/STEME/LMRE) pour les données de 7Be atmosphérique.

RÉFÉRENCES

- Boulaud D. and Renoux A., (1998) : *Les aérosols, Physique et Métrologie*, Lavoisier TEC DOC, 291 pp.
- Maro D., Boulaud D., Coppalle A., Germain P., Hébert D. and Tenailleau L. (2004) : Validation of dry deposition models for submicronic and micronic aerosols. *Proceedings of 9th Int Conf on harmonization within Atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory Purposes*, Garmisch-Partenkirchen, pp. 89-94, 1-4 June 2004.
- Sacré C., Flori J. P., Giraud D., Olive F., Ruot B., Sini J.F., Rosant J.M., Mestayer P., Coppalle A., Talbaut M., Maro D., Connan O., Hébert D., Germain P., Rozet M. (2006) : *Salissures de Façade, Programme PRIMEQUAL*, Rapport CSTB EN-CAPE 06.009, 54 pp.

TRANSFERTS DE POLLUANTS PARTICULAIRES DANS LE BÂTIMENT :

REMISE EN SUSPENSION PAR L'ACTIVITÉ HUMAINE

J. EL Hijri (1), C. Cremezi Charlet (3), A. Fortain (3), K. Limam (2), A. Draoui (1).

(1) ETTE, Faculté des sciences et techniques, BP 416 Tanger, MAROC.
Jelhij02@univ-lr.fr

(2) LEPTAB, Pôle sciences et technologies, avenue M. Crépeau 17042 La Rochelle CEDEX 01.

(3) SNCF, Direction de l'Innovation et de la Recherche 45 rue de Londres 75379 Paris cedex 8.

TITLE

Particle transfer in buildings: particle resuspension by the human activity.

ABSTRACT

Particles pollution inside buildings which are designated for living or to welcome peoples (big number of persons in buildings such as big public halls or in underground stations) is a very important subject treated in bibliography for its parameters such as particles settling and airborne transport.

Nowadays there is a lack of studies developed in the frame of particles suspension in air, as the air speed in big volume rooms is low and so more difficult take off the settled particles. Therefore we have developed a testing room to measure this phenomenon. Our experiments showed out the relation between the settled particles quantity that have been arisen by the human movements inside the testing room as a function of the latest and also the inside air quality as a function of the number of persons and their activities. The parameters which could be varied were: the number of persons inside the testing room and the floor materials like wood or carpet.

Our experiments took into consideration the human activities as a source of air pollution and also as a factor which influences the inside air quality.

RÉSUMÉ :

Concernant la pollution particulaire des ambiances, qu'elles soient habitables ou destinées à accueillir des populations (grand nombre de personnes, telles que les grands halls publics ou les gares souterraines), c'est essentiellement l'étude du dépôt des particules ou de leur migration dans l'air, qui a le plus souvent été traité dans la bibliographie.

Pour l'instant trop peu d'études ont été consacrées aux aspects de la remise en suspension des particules car de façon générale, qu'il s'agisse d'habitations ou de grands volumes ouverts au public, les vitesses de l'air restent relativement faibles et permettent difficilement d'«arracher» les particules déposées. C'est dans cet esprit que nous avons élaboré en cellule test, un protocole expérimental pour mettre en évidence ce phénomène. Nos expérimentations permettront une quantification de la contribution de l'activité humaine (mouvements) dans la remise en suspension des particules collées au plancher et, éventuellement, l'établissement de corrélations entre le nombre des occupants et la qualité de l'air intérieur. Les paramètres sur lesquels une variation pourra être envisagée seront par exemple : le nombre de personnes actives prises en compte, et le type de revêtement au plancher (bois et moquette).

Nos résultats permettront d'une part de caractériser le facteur humain comme une « pseudo-source » de pollution particulaire, et d'autre part, de l'inclure dans la caractérisation particulaire des ambiances.

INTRODUCTION :

L'environnement intérieur d'un bâtiment constitue un milieu complexe caractérisé par de nombreux paramètres qui peuvent avoir un impact sur la santé et le confort des occupants. Il existe de multiples interactions entre le bâtiment, son utilisation et les personnes qui y vivent ou y travaillent. C'est aussi un environnement dynamique caractérisé par une grande variabilité des sources de pollution, par des types d'espaces intérieurs différents, et par des conditions de « climat intérieur » et de ventilation également diverses.

Les principales sources de contaminations sont les occupants eux-mêmes et leurs activités, les matériaux de construction (revêtement des murs, peintures, matériaux d'isolation...), ainsi que les équipements du bâtiment (appareils ménagers, systèmes de ventilation et d'air conditionné...).

La qualité de l'air extérieure a fait l'objet de beaucoup d'études mais ce n'est que récemment que la communauté scientifique a commencé à s'intéresser à la pollution dans les environnements fermés.

De nombreux travaux de recherches ont démarré dans le but d'étudier les particules et leur dépôt sur les parois verticales, sol et plafonds (GOUESBET (1999)). Des études sur la remise en suspension des particules radioactives, des sédiments sous marins, etc. faisaient l'objet de certaines recherches approfondies. Or, l'étude de la remise en suspension des particules dans l'habitat par les pas ou autre cause, reste un domaine inexploité, du fait que les activités dans l'habitat restent généralement calmes ce qui n'engendre pas de forts courants d'air capables d'arracher les particules.

Par conséquent, très peu de travaux ont été réalisés sur la remise en suspension, ce qui a engendré une connaissance partielle, voire inexistante de certains scénarios sur le phénomène.

C'est dans cet esprit que nous avons élaboré en cellule test, un protocole expérimental pour mettre en évidence ce phénomène. Nos expérimentations permettront une quantification de la contribution de l'activité humaine (mouvements) dans la remise en suspension des particules collées au plancher et, éventuellement, l'établissement de corrélations entre le nombre des occupants et la qualité de l'air intérieur. Les paramètres sur lesquels une variation pourra être envisagée seront par exemple : le nombre de personnes actives prises en compte, et le type de revêtement au plancher (bois et moquette).

COMPORTEMENT DES PARTICULES DANS LES AMBIANCES INTERIEURES :

Pour déterminer la qualité particulaire de l'air intérieur, il faut considérer les différents échanges qui entrent en jeu. La vie d'une particule, en tant que quantité polluante de l'air intérieur, est constituée de trois étapes. La première est son transport dans l'air sous l'action locale des écoulements de l'air et des différentes forces qui peuvent s'exercer sur elle (diffusion moléculaire, gravité, forces radiométriques). La deuxième étape est son interaction avec une surface, soit la particule sera captée par la surface (et donc sera perdue pour l'air) soit elle ricochera, ce résultat dépendra de la nature et de la force de l'interaction qui s'opère entre la surface et la particule. La dernière étape est, éventuellement, la remise en suspension de ladite particule par un phénomène tierce (courant d'air, activité humaine...), (Abadie (2000), BOUILLY (2003)).

Le bilan de conservation massique du polluant particulaire dans une enceinte mono zone peut être exprimé par la relation suivante (Nazaroff (1993)) :

$$\frac{dC_i}{dt} = f \times \lambda_r C_{ext} - \lambda_r C_i - \lambda_{de} C_i + \lambda_R C_{Di} + S_i \quad (1)$$

Avec C_i : concentration intérieure en particules dans l'air (kg ou nombre . m⁻³),
 C_{ext} : concentration extérieure en particules dans l'air (kg ou nombre . m⁻³),
 C_{Di} : concentration en particules déposées (kg ou nombre . m⁻³)
 S_i : source interne de particules (kg ou nombre . m⁻³ s⁻¹)
 λ_r : coefficient de renouvellement d'air (s⁻¹),
 f : coefficient de pénétration,
 λ_{de} : paramètre de dépôt (s⁻¹),
 λ_R : paramètre de remise en suspension (s⁻¹).

Les deux premiers termes de cette équation correspondent aux échanges entre l'intérieur et l'extérieur. L'air pollué extérieur pénètre dans la zone par le système de ventilation ou par les différentes ouvertures, et une partie de l'air intérieur sort de cette zone par extraction. Les deux

termes suivants modélisent l'interaction avec les parois (dépôt et remise en suspension). Le dernier terme correspond à la présence d'une source de particules à l'intérieur de la zone d'étude.

C'est exactement la quantification de ce terme source qui est au centre de notre travail. La présence d'êtres humains dans un espace « pollué » et fermé, pourrait être assimilée à la présence d'une pseudo-source de pollution particulaire, l'activité humaine remettant en suspension les particules déjà déposées sur les parois.

PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL :

Dans notre souci de vouloir mettre en évidence le phénomène de remise en suspension par les pas humains, nous avons construit un protocole expérimental assez simple et très flexible, afin de modifier les différents paramètres entrant en jeu.

Nos expériences se sont déroulées dans la cellule test du LEPTAB ($2.5 \times 1.5 \times 2.5 \text{ m}^3$) avec une installation de VMC à débit réglable.

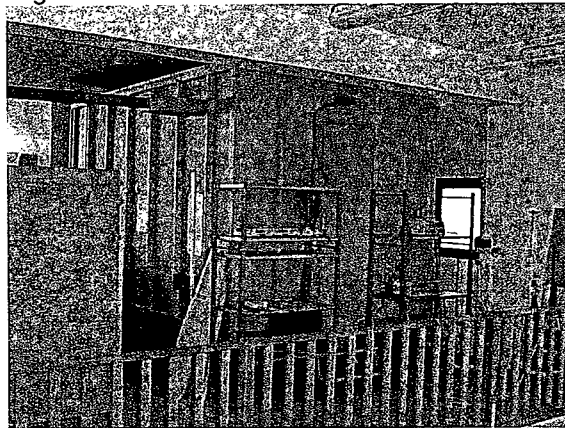


Figure 1 : Cellule test du LEPTAB

Le système VMC utilisé, puise de l'air dans la salle, le fait passer à travers un filtre intégral pour garantir sa propreté, puis l'injecte dans la cellule via une canalisation d'une longueur bien définie (30 fois le diamètre de la canalisation pour homogénéiser l'écoulement).

Sachant que, ni les vitesses de l'air intérieur (très insuffisantes), ni la perturbation de l'écoulement par l'activité humaine ne peuvent remettre en suspension les particules déjà déposées sur les parois (BARRERE et al. (1994)), on se concentrera surtout sur la marche sur un plancher « pollué », la majorité des particules présentes à ce niveau se trouvant ré-entraînées par les chaussures.

Plusieurs types de revêtement ont été testés : moquette, linoléum, bois, ainsi qu'une large gamme de taux de renouvellement d'air dans la cellule test (1, 2 et 3 vol/h) pour pouvoir identifier d'une part, le débit le plus approprié pour assurer une bonne qualité d'air intérieur, et d'autre part le taux de renouvellement d'air en deçà duquel la remise en suspension n'est plus perceptible (mesurable).

L'expérimentation débute par le nettoyage de la cellule teste à l'aide d'un jet d'air comprimé et d'un aspirateur. Elle est ensuite équipée de capteurs de particules Grimm 1.108 de façon à mesurer le taux de pollution particulaire au niveau du sol, à une hauteur de 30cm et à une hauteur de 160 cm (influence de la pollution sur les personnes assises, et les personnes adultes).

L'injection des particules dans la cellule se fait à l'aide d'un générateur d'aérosol Topas SAG 410 et d'un neutraliseur de charges Topas EAN 581. Le brassage est assuré par un ventilateur plafonnier pour homogénéiser l'écoulement.

La VMC permet de nettoyer l'ambiance intérieure de la pollution en suspension dans l'air, mais elle reste insuffisante pour arracher les particules déjà déposées sur le plancher et les parois (BOUILLY (2001)), c'est pourquoi, on utilise un témoin humain qui marche dans la cellule pendant une durée de 5 min.

Le polluant utilisé pour générer l'aérosol est de la poudre d'orgasol poly dispersé centré sur un diamètre de $0.3\mu\text{m}$.

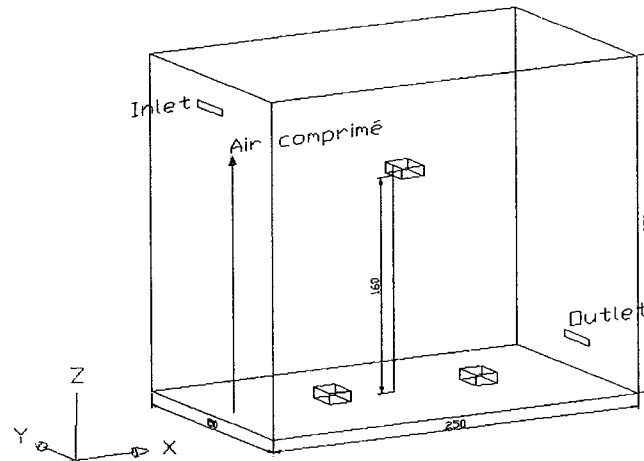


Figure 2 : Schéma du protocole des manipulations dans la cellule test

Les différents revêtements étudiés nous permettent de mieux caractériser les paramètres influençant la remise en suspension, et constituent un complément aux différentes études déjà menées sur le dépôt particulaire à l'intérieur des bâtiments.

RESULTATS DES MESURES :

L'analyse des surfaces des revêtements a été effectuée à l'aide d'un capteur mécanique. Les données brutes sont ensuite sauvegardées sur le système de traitement informatique afin d'être traitées en temps différé. Le matériel utilisé est un MMB (Microscope Mécanique à Balayage). C'est un outil d'observation et de caractérisation des états de surface. Il mesure les variations d'altitude de la surface des matériaux et quantifie la topographie à l'aide d'outils issus de la statistique, du traitement de signal ou du traitement d'image.

Les résultats relatifs à la remise en suspension de plusieurs tailles de particules sont présentés dans la figure 3.

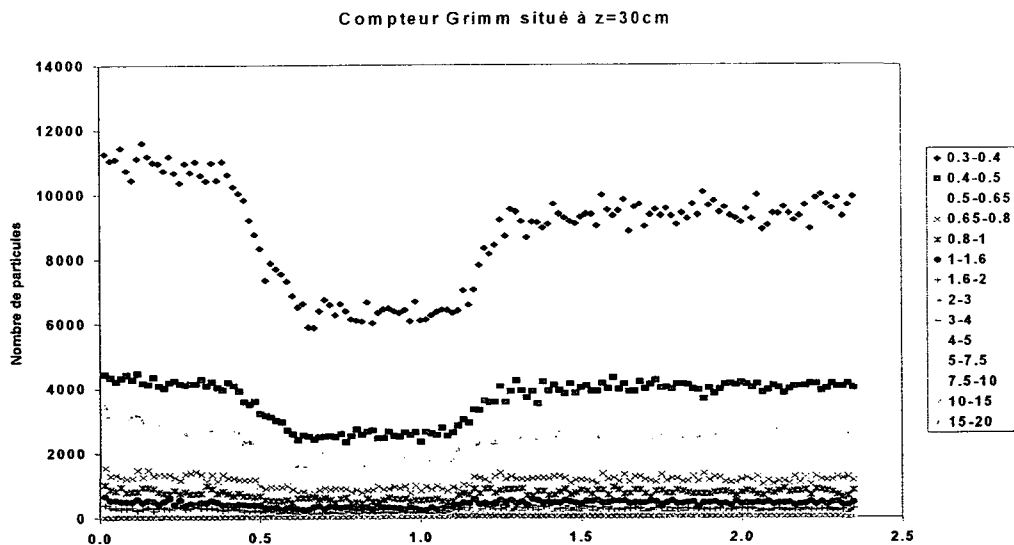
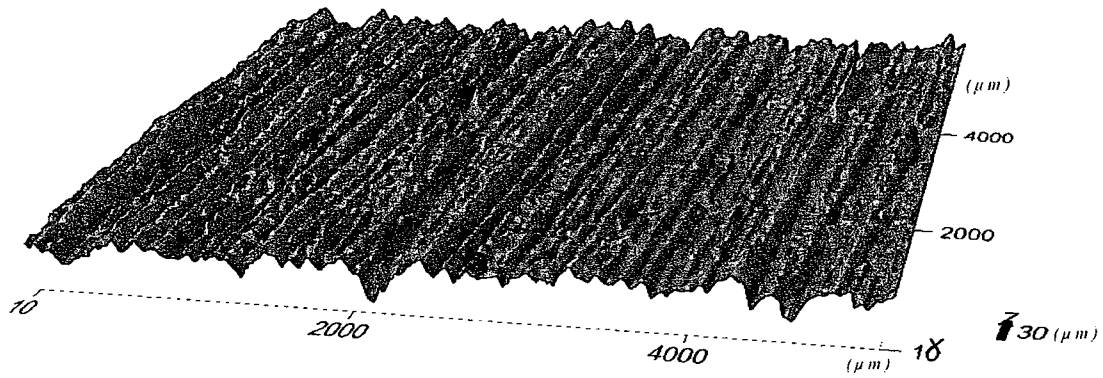


Figure 3 : Concentration des particules en fonction du temps.
Rôle des pas dans la remise en suspension.

Un tracé tridimensionnel de la surface a été représenté. Les figures ci-dessous représentent les différentes cartographies des revêtements étudiés ainsi que la concentration des particules de 0.3µm de diamètre.

1. Revêtement en bois :



Cartographie 1 : Bois contre-plaqué

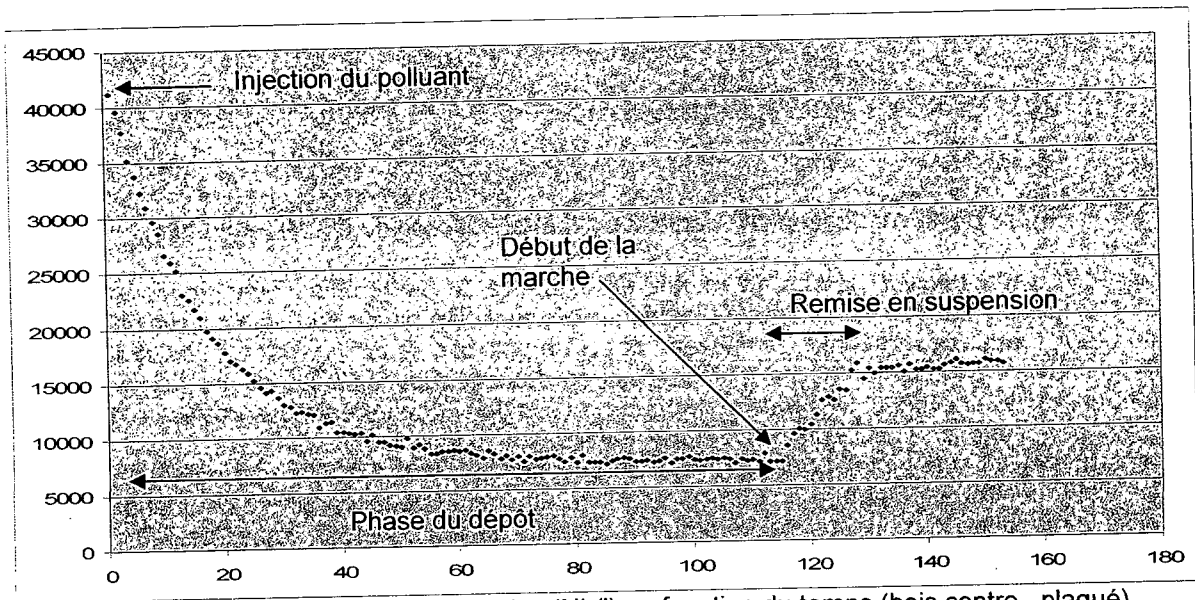
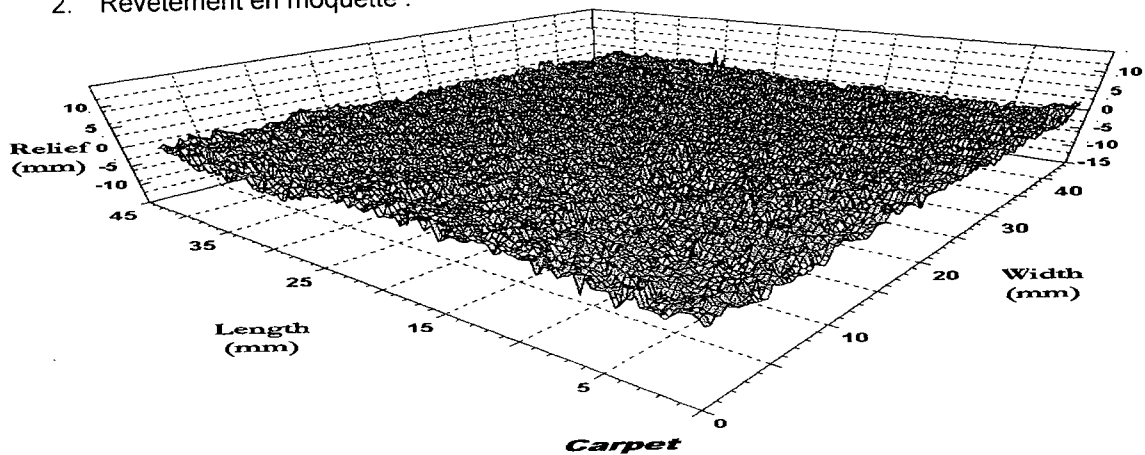


Figure 4 : Concentration des particules (Nb/l) en fonction du temps (bois contre-plaqué).

2. Revêtement en moquette :



Cartographie 2 : Moquette

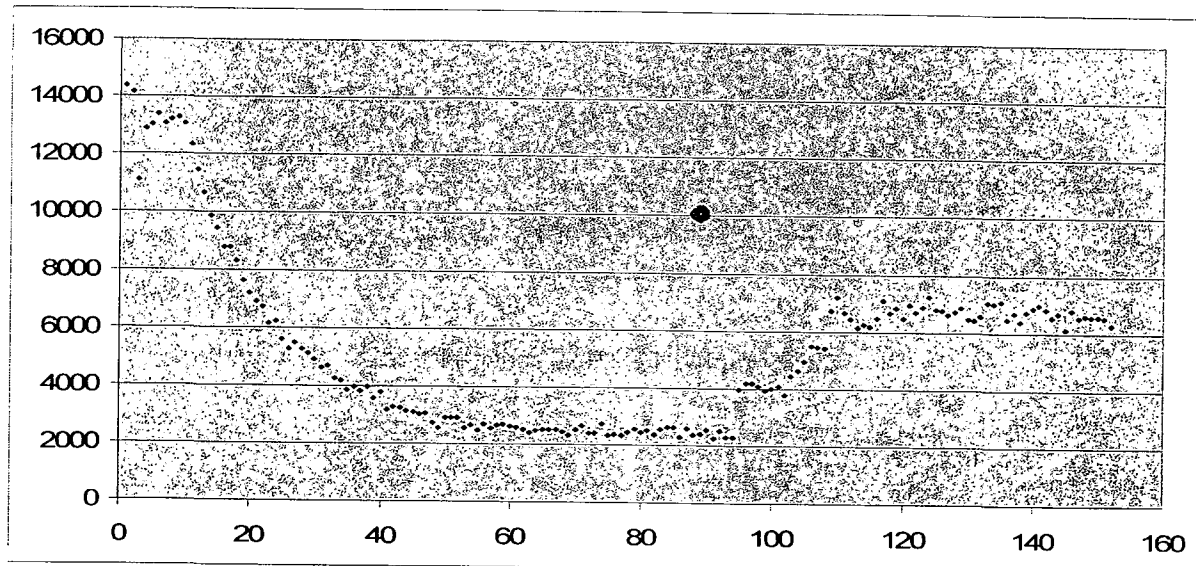


Figure 5 : Concentration des particules (Nb/l) en fonction du temps (moquette).

La présente étude nous a permis de mettre en évidence la perturbation que provoque l'activité humaine sur le taux de pollution intérieure. Nous remarquons très bien qu'après avoir marché dans la cellule pendant quelques minutes, un nouveau palier de pollution se définit. Ceci peut s'expliquer par le fait que, d'une part, les semelles des chaussures captent des particules et les transportent, et d'autre part, le déplacement de la personne perturbe l'écoulement en créant des gradients de vitesse localisés qui remettraient des particules supplémentaires en suspension.

On remarque aussi que l'ampleur de la remise en suspension dépend du type de revêtement utilisé. On voit clairement que le nombre de particule par litre augmente de façon différente quand on passe du bois à la moquette. Ceci peut s'expliquer par la capacité de la moquette à capter les particules.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES :

La prédiction de la qualité particulaire de l'air des ambiances intérieures est très complexe. En effet, l'évaluation des niveaux de pollution particulaire à l'intérieur des bâtiment nécessite la connaissance de deux entités en interaction : l'air chargé de particules solides et l'ambiance intérieure du bâtiment.

La prochaine étape de ce travail sera l'établissement de corrélations entre l'ampleur de la remise en suspension et la nature du revêtement, le nombre des occupants, leurs corpulences, le type de chaussures ...etc , ainsi que la construction d'un modèle numérique qui intègre tous ces paramètres.

BIBLIOGRAPHIE :

ABADIE M.

« Contribution à l'étude de la pollution particulaire : rôle des parois, rôle de la ventilation »
Thèse Université de La Rochelle, Leptab, 2000.

BARRER et al.

« Modèle aléatoire pour l'intermittence des cinétiques de remise en suspension des aérosols »
J. Phys. III France 4 (1994) 1421-1429

BOUILLY J.

« Etude de l'Impact de la pollution particulaire sur la qualité de l'air intérieur en site urbain »
Thèse Université de La Rochelle, Leptab, 2003

GOUESBET G., BERLEMONT A.

« Eulerian and lagrangian approaches for predicting the behaviour of discrete particles in turbulent flows » Progress in energy and combustion science 25 (1999) 133-159

NAZAROFF W. W., CASS G. R.

« Particle deposition from a natural convection flow onto a vertical isothermal flat plate »
Journal of Aerosol Science 20, (1989) 138-139

Caractérisation physico-chimique de suies émises par un moteur d'avion commercial

D. Delhaye* (1), D. Ferry (2), E. Ruiz (1), X. Vancassel (1), B. Demirdjian (2), J. Suzanne(2),
O. Penanhoat (3), G. Rollin (3)

(1) ONERA, DMPH/EAG, BP-72, F-92322, Châtillon, France

david.delhaye@onera.fr

(2) CRMCN-CNRS (UPR 7251), Campus de Luminy, Case 913, F-13288 cedex 9, Marseille, France

(3) SNECMA, Villaroche center, Rond point René Ravaud, F-77550, Moissy-Cramayel, France

TITLE

Physico-chemical characterization of soot emitted by a commercial aircraft engine

ABSTRACT

We present here experimental studies performed on soot particles emitted by a commercial aircraft engine. Electron microscopy techniques are used to determine the morphology, microstructure, and size distribution of soot primary particles. Their elemental composition is also determined as well as their vibrational characteristics by the means of X-ray energy dispersive spectrometry and Fourier transform infrared spectroscopy.

RESUME

Nous présentons une étude expérimentale réalisée sur des particules de suie collectées derrière un moteur commercial d'avion. La morphologie, la microstructure et la distribution en taille des particules primaires de suie sont étudiées par des techniques de microscopie électronique alors que leur composition chimique élémentaire ainsi que leurs caractéristiques vibrationnelles sont déterminées par microanalyse de rayons X et spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier.

1 INTRODUCTION

Evaluer et comprendre l'impact de l'aviation sur le forçage radiatif, l'effet de serre, la qualité de l'air et sur la santé humaine constitue de nos jours un challenge important à relever (J.E. Penner *et al.*, 1999). Bien que l'aviation ne représente qu'un faible pourcentage de la consommation globale de carburant, la majorité des émissions aéronautiques est rejetée dans des régions sensibles de l'atmosphère : la troposphère et la basse stratosphère. Les particules carbonées, telles que les suies de moteur d'avion, rejetées dans la haute troposphère ont un impact avéré sur les changements climatiques. Ces aérosols de suie favorisent la formation de traînées de condensation (contrails) qui, lorsqu'elles sont persistantes, peuvent dégénérer pour former des cirrus artificiels (Schröder *et al.*, 2000 ; Schumann *et al.*, 2002 ; Schumann, 2005), conduisant à l'augmentation du forçage radiatif (Seinfeld, 1998). Les modifications potentielles des cirrus naturels par les particules carbonées produites par les avions via la nucléation hétérogène de glace (Lohmann *et al.*, 2004) sont estimées à l'aide de modèles de circulation à l'échelle globale. Cependant, les résultats obtenus avec ces modèles sont largement dépendants de leur capacité à modéliser les sources, le transport, et la sédimentation des différents types d'aérosols dans l'atmosphère. Des modèles climatiques incluant des modules sophistiqués d'aérosols ont récemment été développés (Stier *et al.*, 2005 ; Lauer *et al.*, 2005) mais les propriétés physico-chimiques des aérosols atmosphériques ainsi que leur capacité à nucléer de la glace doivent être prises en compte à partir des informations issues des mesures de terrain et de laboratoire. Malgré de nombreux efforts entrepris jusqu'à aujourd'hui par la communauté scientifique, de nombreuses lacunes sur les connaissances de la structure, de la morphologie, de la composition chimique, et de la réactivité des particules de suie émises par les moteurs d'avion n'ont pas encore été comblées.

2 EXPERIENCES

Les prélèvements de suie sont réalisés sur un banc d'essai de moteur commercial SNECMA à Villaroche (France) pendant des cycles de décollage/atterrissage (LTO). Le carburant Jet A1 qui alimente ce banc durant les essais contient environ 0,15 % en masse de soufre. Les particules de suie sont collectées par impaction directe sur des membranes en polycarbonate (Nucleopore® Isopore), des fenêtres de silicium (UQG Ltd, Cambridge), et des grilles de microscopie électronique (Holey carbon film, Oxford Instruments). Ces différents supports de collection sont placés à 27 m derrière un moteur commercial d'avion, dans l'axe du flux. Un microscope électronique à balayage (MEB) haute résolution (JSM-6320F, Jeol) ayant une résolution spatiale de $1,2 \times 10^{-9}$ m à 15 kV et un microscope électronique en transmission (MET) (JEM 2000FX, Jeol) ayant une résolution spatiale de $0,28 \times 10^{-9}$ m à 200 kV sont utilisés pour déterminer la distribution en taille et la morphologie des particules primaires de suie. Chaque microscope est équipé d'un système de microanalyse de rayons X (EDX, TRACOR séries II) qui permet d'accéder à la composition chimique élémentaire de nos échantillons. Les éléments chimiques ayant un nombre atomique supérieur à 5 sont détectables par cette technique lorsque leur concentration est supérieure à 0,1 % en masse. Les particules de suie recueillies sur les grilles MET sont observées en employant la méthode d'imagerie par contraste de phase et leur microstructure est déterminée par diffraction des électrons. Un film mince de carbone amorphe est déposé par évaporation sur les membranes en polycarbonate afin de les rendre conductrices à leur étude en MEB. Le logiciel libre ImageJ (<http://rsb.info.nih.gov/ij/>) est utilisé pour analyser l'ensemble des images obtenues en MEB et MET. Les échantillons de suie collectés sur les fenêtres de silicium sont étudiés par spectrométrie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) (Equinox 55, BRUKER) en mode transmission afin de caractériser les groupes fonctionnels de surface.

3 RESULTATS

3.1 Morphologie et distribution en taille des particules primaires de suie

La figure 1a est une image représentative des échantillons de suie collectés sur les membranes en polycarbonate et recouverts d'un film mince de carbone amorphe. De petits agrégats clairsemés et composés de quelques particules primaires de suie sont aisément observables autour d'une partie sombre correspondant à un pore de la membrane. L'aspect sphérique des particules primaires de suie est également observable sur la figure 1b qui représente une chaîne de particules primaires observée en MET, sans traitement préalable de l'échantillon.

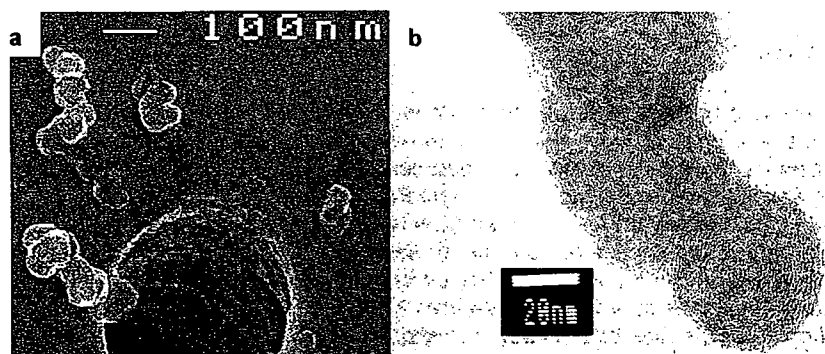


Figure 1a. Image MEB, prise à 15 kV et à un grandissement de 50 000, montrant de petits agrégats de particules sphériques de suie de moteur d'avion. La partie sombre visible au bas du cliché correspond à un pore de la membrane.

Figure 1b. Image MET d'une chaîne de particules primaires sphériques de suie prise à 200 kV et à un grandissement de 300 000.

Lors de nos expériences de microscopie électronique à balayage ou en transmission, nous n'avons que très rarement observé des particules primaires isolées. Ces particules primaires de suie sont plus généralement arrangées sous la forme de petits agrégats asymétriques ou de chaînes allongées contenant un nombre limité de particules, comme dans le cas des particules de suie issues de moteurs diesel (Van Poppel, 2005). Nous présentons sur la figure 2 les distributions en taille des particules primaires de suie établies à partir de l'analyse des images obtenues en MEB et en MET. Nous avons mesuré 13 494 et 10 007 diamètres de particules primaires respectivement sur des images

MEB et MET. Notons que l'établissement de la distribution en taille des agrégats et des chaînes de particules primaires, ainsi que la détermination de leur dimension fractale, sont en cours et feront l'objet d'une prochaine publication.

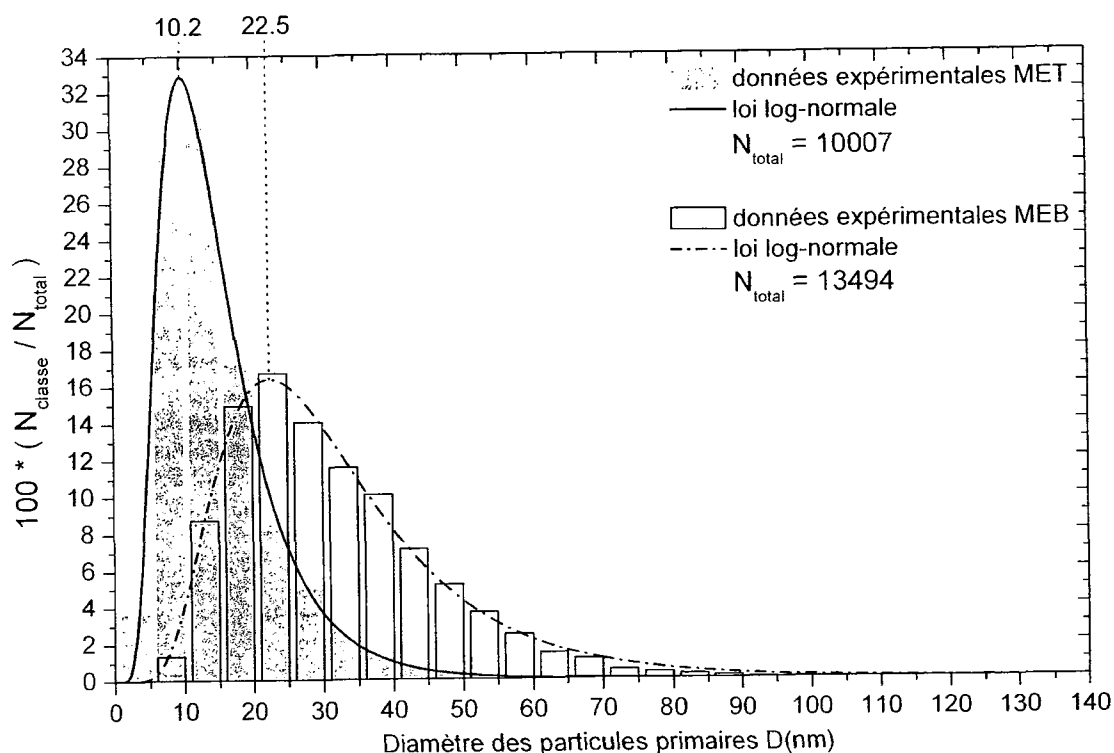


Figure 2. Distributions en taille des particules primaires de suie déterminées par l'analyse des images MEB et MET. N_{classe} correspond au nombre de particules primaires dans une classe de taille donnée et N_{total} est le nombre total de particules primaires, qui vaut respectivement 13 494 et 10 007 pour les analyses MEB et MET.

Les deux distributions en taille des particules primaires de suie présentées sur la figure 2 suivent une loi log-normale mais la position de leur maximum ne coïncide pas. En effet, la distribution en taille établie à partir des expériences en MET présente un maximum centré à $(10,2 \pm 0,1) \times 10^{-9}$ m alors que celle établie à partir des expériences en MEB a un maximum centré à $(22,5 \pm 0,2) \times 10^{-9}$ m. La différence de position de ces maxima est attribuée à l'épaisseur du film de carbone amorphe qu'il est nécessaire d'évaporer sur les échantillons de suie préalablement aux expériences MEB. Cette étape de préparation de l'échantillon lors des expériences MEB affecte de manière importante la valeur mesurée du diamètre des particules primaires. Le très grand nombre de mesures effectuées et la reproductibilité de ces courbes sur plusieurs échantillons, nous permet de conclure que la technique MET est la plus appropriée à la détermination de la distribution en taille des particules primaires de suie. D'autre part, l'effet de la préparation de l'échantillon sur la détermination de la distribution en taille et de ses caractéristiques a été étudié en détail et fera l'objet d'une publication à venir. Notons que la valeur moyenne la plus probable du diamètre des particules primaires, qui vaut ici $(10,2 \pm 0,1) \times 10^{-9}$ m, est inférieure à celles rencontrées dans la littérature qui s'échelonnent entre 25 et 50×10^{-9} m pour différents types de suie (Petzold, 1998 ; Popovicheva *et al.*, 2000 . Popovicheva *et al.*, 2003). Il faut cependant noter que ce travail est le premier à avoir été mené sur un banc d'essai avec un moteur commercial (complet) d'avion civil.

3.2 Microstructure et composition chimique élémentaire

La figure 3a représente une particule primaire de suie observée en MET. Elle a une morphologie sphérique et est composée de couches concentriques de feuillets de graphène, de taille limitée, arrangés selon une structure en "pelure d'oignon". De telles structures ont déjà été observées pour des suies de

flamme de prémélange (Grieco *et al.*, 2000) ainsi que pour des suies de chambre de combustion (Popovicheva *et al.*, 2000).

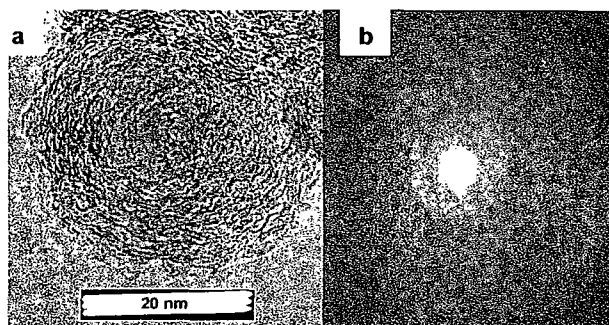


Figure 3a. Structure en "pelure d'oignon" d'une particule primaire de suie observée par MET à 200 kV.
Figure 3b. Cliché de diffraction associé à une particule primaire de suies en "pelure d'oignon".

Le cliché de diffraction associé à la structure en "pelure d'oignon" montre, en plus de la tache spéculaire centrale, la présence d'anneaux diffus (voir figure 3b) typiques des structures turbostratiques. Les valeurs des distances interplans déterminées par analyse du cliché de diffraction sont égales à $d_{(002)} = (3,82 \pm 0,17) \times 10^{-10}$ m, $d_{(10_1)} = (2,15 \pm 0,07) \times 10^{-10}$ m, et $d_{(11_1)} = (1,25 \pm 0,02) \times 10^{-10}$ m. De nombreuses microanalyses de rayons X sur de telles particules nous permettent également de déterminer leur composition chimique élémentaire moyenne. Nos mesures indiquent qu'elle sont constituées de carbone : $98,3 \pm 2,5$ % at., d'oxygène : $1,5 \pm 0,4$ % at., et de traces de soufre : $0,12 \pm 0,05$ % at. Cette composition chimique élémentaire moyenne est en bon accord avec celle déterminée par Popovicheva *et al.* (2004).

3.3 Spectre infrarouge

Bien que les microanalyses de rayons X effectuées sur les particules de suie permettent d'établir leur composition chimique élémentaire, elles ne donnent pas d'information sur la nature des groupes fonctionnels présents sur ces particules. Nous réalisons donc des analyses par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier, en mode de transmission, pour mettre en évidence la présence éventuelle de groupes fonctionnels. La figure 4 montre un spectre infra-rouge obtenu à température ambiante et avec une résolution de 4 cm^{-1} .

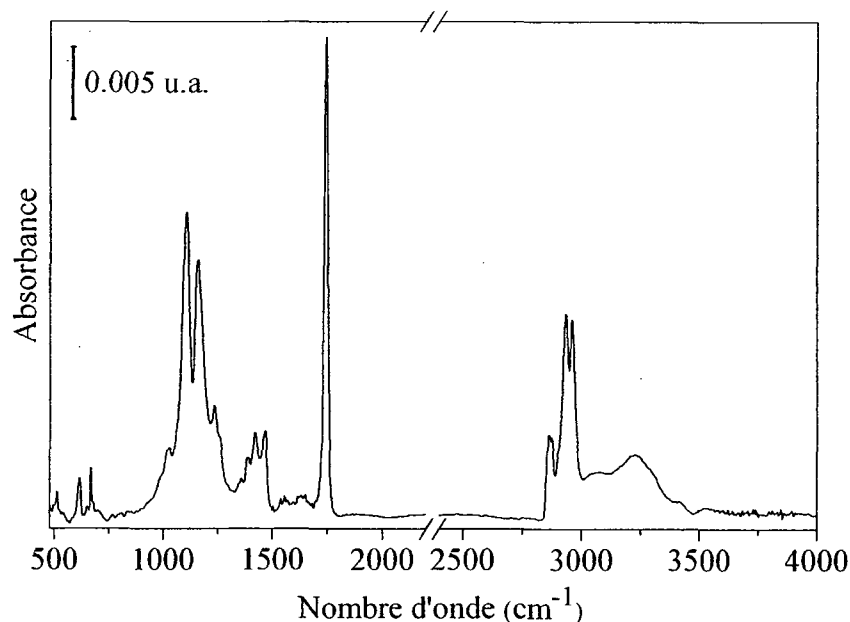


Figure 4. Spectre FTIR de suie de moteur d'avion enregistré à 4 cm^{-1} de résolution.

Ce spectre montre de nombreuses bandes d'absorption correspondant à divers modes vibrationnels de liaisons chimiques et il ne nous est pas possible pour l'instant d'assigner avec certitude tous les signaux. Cependant, la contribution la plus intense à 1730 cm^{-1} peut être attribuée au mode d'élongation de la fonction carbonyle C=O. Les bandes d'absorption visibles entre 3000 et 3600 cm^{-1} sont attribuées à des fonctions hydroxyles (OH) libres d'une part, et associées des groupes fonctionnels alcool et acide carboxylique d'autre part. Le squelette carboné (fonctions alcane -C-C- et alcène -C=C) apparaît avec des bandes d'absorption visibles entre 1000 et 1600 cm^{-1} tandis que les modes vibrationnels des groupes CH_2 et CH_3 sont détectés dans la zone $2800 - 3000\text{ cm}^{-1}$. Nous notons également la présence de bandes liées aux groupes fonctionnels sulfure et disulfure autour de 500 cm^{-1} . L'attribution de nombreux autres signaux reste encore incertaine et une analyse détaillée sera présentée prochainement. Toutefois, nous pouvons remarquer que la nature chimique des groupes fonctionnels détectés est compatible avec la composition chimique élémentaire déterminée par microanalyse de rayons X.

4 CONCLUSION

Nous avons présenté ici une caractérisation expérimentale des propriétés physico-chimiques de particules de suie collectées derrière un moteur commercial d'avion. Nous avons réalisé des analyses MEB et MET qui ont mis en évidence la morphologie sphérique des particules primaires et permis de déterminer leur distribution en taille qui suit une loi log-normale avec un maximum à $(10,2 \pm 0,1) \times 10^{-9}$ m. La composition chimique élémentaire indique que ces particules sont composées essentiellement de carbone, de peu d'oxygène, et de traces de soufre. Différents groupes fonctionnels ont été mis en évidence par spectroscopie infrarouge. Cependant, d'autres analyses combinant de nouvelles techniques de caractérisation complémentaires sont nécessaires pour étudier la réactivité de ces particules de suie afin de mieux étudier et comprendre leurs propriétés de nucléation de la glace.

REFERENCES

- Grieco, W.J., J.B. Howard, L.C. Rainey, J.B. Vander Sande, (2000) Fullerenic carbon in combustion-generated soot, *Carbon* 38, 597-614
- Kärcher, B., J. Hendricks, U. Lohmann, (2006) Physically based parameterization of cirrus clouds formation for use in global atmospheric models, *J. Geophys. Res.* 111, D01205
- Lauer, A., J. Hendricks, I. Ackermann, B. Schell, H. Hass, S. Metzger, (2005) Simulating aerosol microphysics with the ECHAM/MADE GCM - part I: Model description and comparison with observations, *Atmos. Chem. Phys.* 5, 3251-3276
- Lohmann, U., B. Kärcher, J. Hendricks, (2004) Sensitivity studies of cirrus clouds formed by heterogeneous freezing in the ECHAM GCM, *J. Geophys. Res.* 109, D16204
- Petzold, A., F. Schröder, 1998: Jet engine exhaust aerosol characterization, *Aerosol Sci. Technol.* 28, 62-77
- Penner, J.E., D.H. Lister, D.J. Griggs, D.J. Dokken, M. McFarland, (1999) *Aviation and the global atmosphere. A special report of working groups I and III of the Intergovernmental Panel on Climate Change.* Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom, ISBN 0-521-66300-8, 373 pages.
- Popovicheva, O.B., N.M. Persiantseva, M.E. Trukhin, G.B. Rulev, N.K. Shonija, Y.Y. Buriko, A.M. Starik, B. Demirdjian, D. Ferry, J. Suzanne, (2000) Experimental characterization of aircraft combustor soot: Microstructure, surface area, porosity and water adsorption, *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2, 4421-4426
- Popovicheva, O.B., N.M. Persiantseva, B.V. Kuznetsov, T.A. Rakhmanova, N.K. Shonija, J. Suzanne, D. Ferry, (2003) Microstructure and water adsorbability of aircraft combustor soots and kerosene flame soots: Toward an aircraft-generated soot laboratory surrogate, *J. Phys. Chem. A* 107, 10046-10054
- Popovicheva, O.B., N.M. Persiantseva, E.E. Lukhovitskaya, N.K. Shonija, N.A. Zubareva, B. Demirdjian, D. Ferry, J. Suzanne, (2004) Aircraft engine soot as contrail nuclei, *Geophys. Res. Lett.* 31, L11104
- Schröder, F., B. Kärcher, C. Duroure, J. Ström, A. Petzold, J.F. Gayet, B. Strauss, P. Wendling, S. Borrmann, (2000) On the transition of contrails into cirrus clouds, *J. Atmos. Sci.* 57, 464-480
- Schumann, U., F. Arnold, R. Busen, J. Curtius, B. Kärcher, A. Kiendler, A. Petzold, H. Schlager, F. Schröder, K.H. Wohlfrom, (2002) Influence of fuel sulfur on the composition of aircraft exhaust plumes: The experiments SULFUR 1-7, *J. Geophys. Res.* 107, D15, 4247-4274

- Schumann, U., (2005) Formation, properties and climatic effects of contrails, *Comptes Rendus Physique* 6 4-5, 549-565
- Seinfeld, J.H., (1998) Clouds, contrails, and climate, *Nature* 391, 837-838
- Stier, P., J. Feichter, S. Kinne, S. Kloster, E. Vignati, J. Wilson, L. Ganzeveld, I. Tegen, M. Werner, Y. Balkanski, M. Schulz, O. Boucher, A. Minikin, A. Petzold, (2005) The aerosol-climate model ECHAM5-HAM, *Atmos. Chem. Phys.* 5, 1125-1156
- Van Poppel, L.H., H. Friedrich, J. Spinsby, S.H. Shung, J.H. Seinfeld, P.R. Busek, (2005) Electron tomography of nanoparticles clusters : implications for atmospheric lifetimes and radiative forcing of soot, *Geophys. Res. Lett.* 32, L24811

CARACTERISATION DES PARTICULES DE SUIE ISSUES DE LA COMBUSTION DU KEROSENE

(SUR LA CALIBRATION DES MESURES OPTIQUES)

M. Maugendre (*), J. Yon, A. Coppalle et M. Weill

Complexe de Recherche Interprofessionnel en Aérothermochimie, CORIA UMR 6614

Campus du Madrillet - BP 8

76801 Saint-Etienne du Rouvray Cedex

(*)mathieu.maugendre@coria.fr

TITLE

Kerosene soot characterization : optical measurements calibration

ABSTRACT

Quantitative characterization of soot particles production, using methods like Laser Induced Incandescence (LII), requires information on their optical properties. It is useful to provide these data in the near infrared range, because it corresponds to the wavelength at which these methods are used. The aim of our study is to determine the kerosene soot refractive index m and its functions $E(m)$ and $F(m)$. This paper presents the technique we use to evaluate it, and put the stress on the choice of a reference for scattering measurements we have to perform. This choice is critical, as the scattering becomes very low at infrared wavelengths. We show that latex microspheres can be used with good results, if we take well into account the particle agglomeration to interpret their size distributions and estimate their extinction and scattering coefficients.

RESUME

La caractérisation quantitative des particules de suies par des méthodes telles que l'Incandescence Induite par Laser (LII) suppose la connaissance de leurs propriétés optiques. Il est nécessaire de pouvoir fournir ces données dans le proche infrarouge, longueur d'onde à laquelle ces méthodes sont souvent utilisées. Notre étude, réalisée dans le cadre d'un projet européen, vise à déterminer l'indice complexe m pour les suies de kérosène. Nous présentons ici notre méthode de détermination de l'indice complexe, avant de nous focaliser sur le choix d'une référence pour les mesures de diffusion qui interviennent dans cette méthode. En effet la diffusion dans l'IR est trop faible pour utiliser un gaz de référence comme dans le visible. Nos expériences montrent qu'un bon étalonnage est réalisé par l'utilisation d'un aérosol de billes de latex. Nous montrons la manière dont il faut prendre en compte l'agglomération de ces billes dans l'interprétation de leur granulométrie et dans l'estimation de leurs sections efficaces d'extinction et de diffusion, afin de ne pas introduire une surestimation de la diffusion dans les calculs.

1. Introduction

Un intérêt grandissant est porté à la composante particulaire de la pollution atmosphérique résultant de la combustion des hydrocarbures. Ces particules présentent à la fois un impact global du fait de leur propriétés radiatives sur les modifications du climat et un impact sanitaire de par leur faible taille. La combustion dans les moteurs est responsable d'une importante part de la production de suies, dont la caractérisation est primordiale pour en appréhender l'impact. Diverses méthodes optiques permettant d'estimer les concentrations en particules produites par la combustion existent (mesures d'extinction) ou sont en développement comme l'Incandescence Induite par Laser (LII) ([1]). Cependant, elles ne permettent une analyse quantitative qu'à condition de connaître les caractéristiques optiques des particules, parmi lesquelles leur indice complexe de réfraction ($m=n-ik$), propriété de la matière qui caractérise son interaction avec les ondes électromagnétiques. Quelques indices optiques de « référence » sont généralement employés ([2],[3]). Ceux-ci sont en général issus de la combustion de flammes gazeuses ([4]) et le plus souvent pour des longueurs d'onde visibles.

Dans le cadre du projet européen Toward Lean Combustion (TLC), des études sont entreprises dans les chambres de combustion des réacteurs d'avion afin de comprendre et de réduire les émissions polluantes du trafic aérien. Nous nous intéressons donc plus particulièrement aux particules émises par la combustion du kérosène. Ces particules de suie ne sont pas sphériques mais sont constituées de sphérules primaires agglomérées, formant des ramifications. L'objectif des travaux effectués par le Coria, dans le cadre de ce projet, est de déterminer, pour une flamme laminaire d'un spray de kérosène (JET A1) à pression atmosphérique, les caractéristiques morphologiques (dimension fractale, diamètre des monomères...), et l'indice complexe de réfraction m des suies issues de la combustion, qui apparaît usuellement dans les fonctions d'absorption $E(m)$ et de diffusion $F(m)$ (voir équation 1).

$$E(m) = -\operatorname{Im}\left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}\right) \quad F(m) = \left|\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}\right|^2$$

Equation 1 - Fonctions de l'indice complexe m

Par ailleurs, si nous nous intéressons à ces propriétés dans le spectre visible (rouge à 632 nm), nos investigations s'attachent plus particulièrement à les déterminer dans le proche infrarouge (1064 nm), longueur d'onde qui correspond à celle employée dans les diagnostics de type LII. Les informations concernant les suies issues de la combustion diphasique sont rares ainsi que les estimations de l'indice optique dans l'infrarouge.

Nous allons ici exposer brièvement la technique de mesure de l'indice complexe récemment utilisée dans la thèse de Ouf [3]. Ensuite, nous nous focaliserons sur l'amélioration de l'étalonnage des mesures optiques de diffusion.

2. RDG-FA et détermination de l'indice optique - Théorie

Notre étude se base sur la mesure expérimentale de l'extinction (K_{ext}) et de la diffusion à 90° pour une polarisation (verticale-verticale) ($K_w(90^\circ)$) de la lumière par un échantillon de suies prélevées dans la flamme.

Nous utilisons la théorie de la diffusion de Rayleigh pour les agrégats fractals (RDG-FA) [5], à partir de laquelle peuvent être calculés théoriquement ces coefficients. Cette théorie n'est valable que si deux conditions sur l'indice sont vérifiées [5] :

$$|m - 1| < 1 \quad \text{et} \quad \frac{\pi D_p}{\lambda} |m - 1| < 0.3$$

Equation 2 - Critères de validité de la diffusion Rayleigh selon Farias et al.

Dans ces équations D_p est le diamètre des sphérules primaires et λ la longueur d'onde de la lumière.

Pour appliquer la RDG-FA, la population de suies (nombre, taille) doit être connue. Dans les équations 3, les distributions de taille de suies sont utilisées pour le calcul des grandeurs M_{df} , $M_{2df,f}$ et $M_{2df,g}$, assimilables à des moments. La dispersion des diamètres de mobilité des suies est connue par l'intermédiaire de mesures granulométriques effectuées avec un SMPS (Scanning Mobility Particle

Sizer). $N(D_m)$ représente alors la concentration numérique des suies de diamètre de mobilité D_m ; les fonctions f et g sont des facteurs de forme. Ce sont des fonctions de correction qui font intervenir la taille des suies et leur nature fractale. C_a , C_b et C_c sont quant à elles trois constantes dépendant notamment de la morphologie des suies étudiées. Elles sont obtenues grâce à des analyses morphologiques de clichés microscopiques. Les fonctions $E(m)$ et $F(m)$ peuvent être extraites par inversion des équations 3, connaissant les coefficients expérimentaux K_{ext} et $K_{vv}(90^\circ)$, ainsi que les constantes morphologiques C_a , C_b et C_c :

$$K_{ext} = C_a E(m) \underbrace{\sum_{D_m} D_m^{d_f} N(D_m)}_{Mdf} + C_b F(m) \underbrace{\sum_{D_m} D_m^{2d_f} g(\lambda, D_m) N(D_m)}_{M2df,g}$$

$$K_{vv}(\theta) = C_c F(m) \underbrace{\sum_{D_m} D_m^{2d_f} f(\lambda, D_m, d_f) N(D_m)}_{M2df,f}$$

Equations 3 - Expressions des coefficients d'extinction et de diffusion à 90°

3. Mesures expérimentales

La méthodologie permettant la détermination expérimentale des coefficients d'extinction et de diffusion est la suivante : les suies sont prélevées dans la flamme de kérosène et, après dilution à l'azote pour stopper les réactions d'agglomération, sont entraînées jusqu'à notre banc d'analyse EXSCA (pour Extinction-Scattering) ; celui-ci se présente sous la forme de deux cellules fermées permettant la mesure conjointe de signaux d'extinction et de diffusion et de distributions de taille.

La cellule permettant la mesure de l'extinction est une cellule multi-passage (5 passages dans le rouge, 21 dans l'infrarouge) qui permet la mesure de faibles extinctions en allongeant artificiellement le chemin parcouru par la lumière. Connaissant la longueur L du milieu parcouru par le faisceau laser, et les intensités des signaux mesurés par le capteur après passage dans les fumées (I_f) et dans l'air (I_0), on estime K_{ext} par interprétation d'une loi de type Beer-Lambert ; on a :

$$K_{ext} - K_0 = -\frac{1}{L} \ln\left(\frac{I_f}{I_0}\right)$$

Equation 4 - Expression du K_{ext} en fonction des intensités de signaux optiques

K_0 est le coefficient d'extinction de l'air pris en référence, que l'on considère négligeable devant K_{ext} .

Quant à l'estimation du coefficient de diffusion polarisée verticalement à 90° , elle fait intervenir trois mesures d'intensités lumineuses. La lumière diffusée par les suies est captée à 90° dans la cellule de diffusion. Le signal recueilli est proportionnel au coefficient K_{vv} des particules de suie. Pour calibrer la relation entre l'intensité diffusée et l'intensité mesurée, une mesure calibrée est nécessaire (I_{ref} dans l'équation 5). Cette référence est faite sur un aérosol étalon, dont la nature optique et morphologique est bien connue. On prend également en compte le bruit de fond de la cellule en effectuant une mesure d'intensité diffusée avec de l'air filtré (I_0). Le K_{vv} des fumées s'exprime alors :

$$K_{vv} = \frac{I_f - I_0}{I_{ref} - I_0} K_{vv,ref} \exp\left[l(K_{ext}^f - K_{ext}^{ref})\right]$$

Equation 5 - Expression du K_{vv} en fonction des signaux optiques

Dans cette relation, l est le trajet optique entre la source et le détecteur.

On note par ailleurs qu'interviennent dans ce calcul les coefficients d'extinction des fumées et de la référence.

4. Le problème de la détermination de la référence du K_{vv}

Jusqu'à présent, les mesures de diffusion ont surtout été conduites dans le visible. Le corps utilisé en référence est alors souvent un gaz, comme le propane. Cependant, l'intensité diffusée par un tel milieu étant faible, elle nécessite dans le visible l'utilisation de photomultiplicateurs sensibles, qui permettent le comptage de photons. La situation est plus critique dans l'infrarouge ; la section efficace de diffusion d'une particule sphérique telle qu'un atome de gaz, dépend en effet, selon la théorie de Mie pour les petites particules (diffusion Rayleigh), de la longueur d'onde (voir équation 6).

$$C_{vv} = \frac{\pi^4 D_p^6 F(m)}{4\lambda^4}$$

Equation 6 - Section efficace de diffusion

En faisant l'approximation d'une fonction de l'indice complexe $F(m)$ constante, on a :

$$\frac{C_{vv,rouge}}{C_{vv,IR}} = \left(\frac{1064}{632}\right)^4 = 8.03$$

Equation 7 - Comparaison des sections efficace selon la longueur d'onde

La diffusion d'un gaz est donc approximativement huit fois moindre dans l'infrarouge que dans le rouge. Une si faible diffusion pose des problèmes de détection dans l'IR qui n'ont pas lieu avec les suies, qui sont des particules. C'est pourquoi il est plus intéressant de choisir un corps étalon, diffusant davantage qu'un gaz, et si possible dans le même ordre de grandeur que les particules de suies. Notre choix s'est porté sur un aérosol de billes de latex (DUKE SCIENTIFIC) de 200 nm dans des concentrations de l'ordre de 10^5 part/cm³, généré à l'aide d'un atomiseur portable (TSI). La granulométrie d'un tel aérosol est idéalement une distribution fine et monomodale centrée sur le diamètre 200 nm. A priori, la mesure granulométrique de cet aérosol interprétée par un calcul de Mie sur des particules sphériques doit permettre le calcul des coefficients d'extinction et de diffusion de cet aérosol. Ils s'écrivent alors selon les équations 8.

$$K_{ext} = C_{ext} \cdot N$$

$$K_{vv} = C_{vv} \cdot N$$

Equations 8 - Coefficients d'extinction et de diffusion en fonction des sections efficaces

Cela suppose donc de connaître la concentration N en nombre de billes (mesurée par le SMPS), et les sections efficaces d'extinction et de diffusion C_{ext} et C_{vv} , qui pour des sphères sont parfaitement calculées par la théorie de Mie.

5. Sur l'estimation du nombre de billes

Cependant, un second mode apparaît sur les granulométries, introduisant une traîne vers les gros diamètres (voir figure 1). On attribue cette traîne à l'agglomération inévitable dans des conditions de solution concentrée en latex. La figure 1 montre également un cliché microscopique mettant en évidence le phénomène d'agglomération.

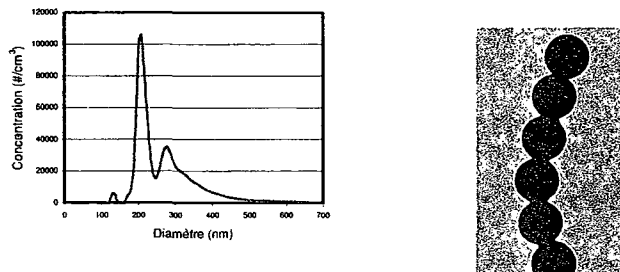


Figure 1 - Granulométrie de billes et mise en évidence de leur agglomération

Comme on le voit grâce au cliché obtenu par microscopie électronique à transmission (TEM), il se forme des chapelets de billes. L'extinction engendrée par cette agglomération ne peut être considérée, ainsi que le supposerait la granulométrie, comme provenant de sphères pleines de plus gros diamètres. Ainsi, un calcul de Mie ne peut convenir. Cela conduirait à surestimer les coefficients de diffusion et d'extinction, la diffusion faisant par exemple intervenir le diamètre à la puissance six (voir équation 6). Il est donc nécessaire de réinterpréter systématiquement ces granulométries relevées au SMPS, en modélisant la traîne par un modèle d'agglomération. Cette modélisation ne peut être faite avec la RDG-FA, qui nécessite un nombre élevé de monomères pour être valable.

La concentration de billes présentes dans la solution est constituée de la somme des concentrations de billes non agglomérées N1 (associée au premier mode), de billes contenues dans les N2 agglomérats de paires de billes (second mode), etc. (voir figure 2). On peut considérer la granulométrie fournie par le SMPS comme la somme des gaussiennes associées aux différents modes d'agglomération, type de répartition qui représente en effet très bien le premier mode. Avec le nombre croissant de billes dans les agglomérats, le nombre de configurations spatiales de ces agglomérats augmente. Ceci explique l'élargissement progressif des gaussiennes vers les gros diamètres, et leur recouvrement qui conduit à cette allure de traîne.

A partir des points de mesure fournis par le SMPS, on cherche donc à modéliser la courbe obtenue par la somme de gaussiennes centrées sur les diamètres des modes, en faisant varier l'ouverture et la population de chacune (voir figure 2). En plus de permettre un fit correct des granulométries mesurées, on vérifie la pertinence de cette modélisation en observant que le nombre total de particules obtenues par son application est pratiquement égal au nombre total de particules comptées par le granulomètre (de l'ordre de 5% de différence au maximum).

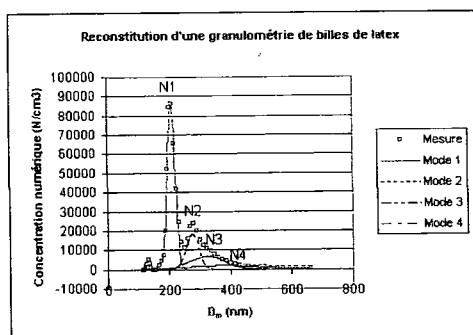


Figure 2 - Modélisation d'une granulométrie de billes

6. Sur la détermination des sections efficaces des agglomérats de billes

Plusieurs théories existent pour calculer les sections efficaces. Cependant, toutes ne sont pas valides dans nos conditions expérimentales. La théorie de Mie se montre inadaptée car elle ne prend pas en compte la structure morphologique complexe des agrégats. Quant à la RDG-FA, comme nous l'avons vu, elle ne permet ces calculs que pour un nombre de monomères conséquent et n'est valide que pour des particules primaires de taille bien inférieure à celle de nos billes. L'impossibilité de recourir à ces modèles conduit à envisager des calculs numériques plus adaptés. Certains calculs permettent la résolution rigoureuse des équations de Maxwell, comme la méthode de résolution T-Matrix [6]. Nous avons pris le parti d'utiliser DDSCAT, code de calcul fournissant un résultat approché qui a l'avantage d'être beaucoup plus rapide. [7] Il consiste à discrétiser l'objet en plusieurs dipôles qui interagissent entre eux.

Le tableau 1 reprend les valeurs des sections efficaces d'extinction et de diffusion calculées à l'aide de ce modèle pour des billes de latex de 200 nm. Dans l'infrarouge, l'indice complexe des billes est $m=1.573-i0.0001$; il vaut $m=1.590-i0.0001$ dans le rouge.

	1 bille	2 billes	3 billes	4 billes	5 billes
$C_{ext, rouge} (m^{-1})$	9.23E-15	2.07E-14	4.40E-14	6.36E-14	8.28E-14
$C_{vv, rouge}$	1.05E-15	2.42E-15	3.75E-15	4.84E-15	5.62E-15
$C_{ext, IR} (m^{-1})$	1.16E-15	3.25E-15	7.63E-15	1.15E-14	1.55E-14
$C_{vv, IR}$	1.33E-16	4.68E-16	8.20E-16	1.15E-15	1.51E-15

Tableau 1 – Sections efficaces d'extinction et de diffusion pour chaque agglomérat de billes et pour les deux longueurs d'onde, calculés sous DDSCAT

7. Exemple de calcul et validation de l'interprétation des granulométries de billes

Pour des distributions telles que nous les avons décrites, les coefficients d'extinction et de diffusion à 90° peuvent s'écrire selon les équations 9 :

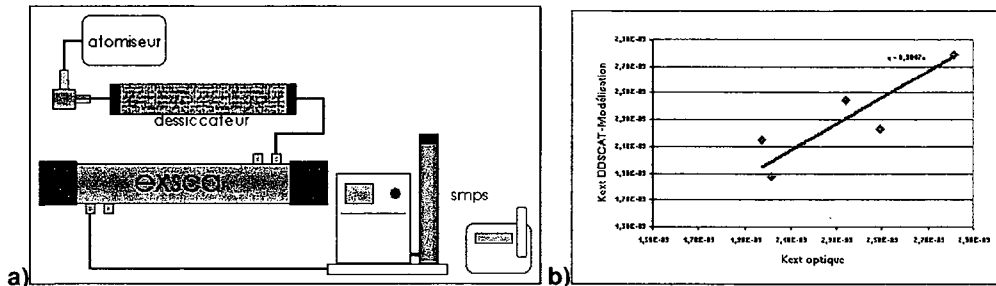
$$K_{ext,\lambda} = \sum_{i=1}^5 C_{ext,\lambda}(i\text{billes}) \cdot N_i \quad K_{w,\lambda} = \sum_{i=1}^5 C_{w,\lambda}(i\text{billes}) \cdot N_i$$

Equations 9 – Coefficients d'extinction et de diffusion à 90° en tenant compte de l'agglomération

Dans le cas présenté ici, on trouve $K_{ext}=1,87 \cdot 10^{-3}$ et $K_w(90^\circ)=2,12 \cdot 10^{-4}$ dans l'infrarouge. Le principe de la méthode de détermination du K_{ext} et du K_w est identique. La validation du calcul du K_w des billes ne peut être faite par mesure expérimentale du K_w , puisque le problème de la référence se pose à nouveau. Par contre, nous avons vu que la mesure d'extinction ne nécessite pas de référence. Afin de s'assurer de la validité de notre méthode, on vérifie donc le bon accord entre les coefficients d'extinction ainsi calculés et ceux déterminés par la mesure optique.

Le système expérimental est présenté sur la figure 5. Le spray de billes est initialement dilué dans un flacon d'eau avant d'être atomisé. Les gouttes d'eau dont la taille est supérieure à la limite de mesure du granulomètre sont récoltées par un impacteur qui a été sélectionné selon le débit imposé par le générateur de billes ; pour un débit de 4,17 l/min, le diamètre de l'impacteur, fixé à 0.8 mm, impose un diamètre de coupure de 445 nm, soit bien inférieur au diamètre des plus petites gouttes d'eau. En aval, un dessiccateur est placé afin d'éliminer les traces restantes d'humidité. On s'assure ainsi que l'ensemble des particules participant à la mesure optique d'extinction sera bien mesuré par le granulomètre.

La comparaison des K_{ext} a été effectuée pour différentes concentrations des particules de latex dans l'eau. Sur la figure sont tracés les coefficients d'extinction calculés par l'approche « DDSCAT-Modélisation » en fonction de ceux mesurés optiquement, dans l'infrarouge.



Le coefficient directeur de la droite (0,984) montre le bon accord entre les résultats. Par ailleurs, on peut remarquer que les points se dispersent légèrement tout autour de la droite, ce qui nous assure du fait qu'aucune des deux méthodes ne surestime systématiquement le coefficient d'extinction par rapport à l'autre. Ceci montre que cette méthode de prise en compte de l'agglomération dans la solution de billes est cohérente et que le calcul approché par DDSCAT est suffisamment précis. L'incertitude quant à l'étalonnage est donc évitée, ce qui permettra l'estimation précise d'indices complexes.

Références Bibliographiques

- [1] Y. Bouvier, E. Therssen, C. Schoemaker, X. Mercier, J.F. Pauwels, P. Desgroux, Proceedings of the European Combustion Meeting 2005, Book of Abstracts, 78 (2005)
- [2] W.H. Dalzell, A.F. Sarofim, J. Heat Transf., 91, 100-104 (1969)
- [3] S.C. Lee, C.L. Tien, 18th Symposium on Combustion, 1159-1166, 1981
- [4] F.-X. Ouf, thèse de doctorat à l'Université de Rouen, IRSN IRSN 2006/62-FR (2006)
- [5] T.L. Farias, Ü.Ö. Köylü, M.G. Carvalho, Applied Optics, Vol. 35, N°33, 6560-6567 (1996)
- [6] M.I. Mishchenko, J.W. Hovenier, L.D. Travis, Academic Press (1999)
- [7] B.T. Draine, P.J. Flatau, Optical Society of America, Vol.11, N°4, 1491-1499 (1994)

ANALYSE DES HYDROCARBURES AROMATIQUES POLYCYCLIQUES NITRES PAR CLHP FLUORESCENCE APRES REDUCTION SUR COLONNE. APPLICATION A L'AEROSOL ATMOSPHERIQUE.

O. Delhomme*, P. Mirabel et M. Millet.

Laboratoire de Physico- Chimie de l'Atmosphère, Centre de Géochimie de la Surface, 1 rue Blessig,
67084 Strasbourg.

*delhomme@illite.u-strasbg.fr

TITLE

Analyse of nitro- Polycyclic Aromatic Hydrocarbons by HPLC fluorescence after post- column derivation. Application to atmospheric aerosols.

ABSTRACT

This paper reports the optimization of an analytical procedure for the separation and quantification of 15 NPAHs present in aerosol samples by liquid chromatography coupled to fluorescence detection. Indeed, the use of fluorescence detection gives a very specific and sensitive alternative to GC-NIMS. However, this method requires on-line reduction of the nitro-PAHs to the corresponding amino-PAHs on account of the weak fluorescence of these compounds. The principal factors affecting the efficiency of this reduction such as the flow rate, the temperature, the position and the packing of the reductive column have been studied. The limit of detection was in the range of 0.06- 1.20 $\mu\text{g.L}^{-1}$. The first results in aerosol sample, in particulate phase for Strasbourg, at two seasons, showed that the compounds were more abundant during winter (average of 534 pg.m^{-3}) than during summer (average of 118 pg.m^{-3}). The 1 nitropyrene is the most abundant compound, independently of seasons.

RESUME

Les hydrocarbures aromatiques polycycliques nitrés (NHAPs) sont particulièrement intéressants dans les analyses environnementales à cause du pouvoir mutagène ($2 * 10^5$ fois) et cancérigène (10 fois) de certains composés comparés à ceux des HAPs, même à faible concentration. Notre étude vise l'optimisation d'une méthode analytique pour séparer et quantifier 15 NHAPs présents dans des échantillons d'aérosols, par chromatographie liquide couplée à un détecteur fluorimétrique. En effet l'utilisation d'une détection par fluorescence est une alternative spécifique et sensible à l'analyse par GC- NIMS. Cependant, cette méthode oblige la réduction des NHAPs en amino- HAPs correspondants, à l'aide d'une colonne réductrice, du fait de la faible fluorescence de ces composés. Les principaux facteurs affectant l'efficacité de cette réduction en ligne comme le débit, la température, la position et le remplissage de la colonne réductrice seront discutés. Les limites de détection des composés obtenus pour cette méthode vont de 0.06 à 1.20 $\mu\text{g.L}^{-1}$. Les premiers résultats sur des aérosols en phase particulaire collectés au niveau de la ville de Strasbourg, sur deux saisons différentes, nous ont permis de montrer que les composés sont plus abondants l'hiver (534 pg.m^{-3} de moyenne) par rapport à l'été (118 pg.m^{-3}). Le 1 nitropyrene est le plus abondant, indépendamment des saisons.

INTRODUCTION

Les NHAPs sont essentiellement des produits directs ou indirects d'une combustion incomplète. Seuls quelques-uns parmi eux sont produits industriellement (nitronaphthalène et le 5-nitroacénaphthène) et sont utilisés comme intermédiaire de synthèse (Bamford *et al.* 2003).

Les NHAPs se forment à partir des HAPs correspondants selon au moins deux processus distincts : par nitration au cours de la combustion (par exemple dans les gaz d'échappement de véhicules à moteur diesel ou essence, dans les émissions d'industries, lors du chauffage ou encore lors de la combustion du bois) et dans l'atmosphère par des réactions en phase gazeuse ou par une interaction hétérogène entre la phase gazeuse et les particules (Schauer *et al.* 2004).

La concentration des NHAPs dans l'air étant faible, de l'ordre du pg.m^{-3} à 1 ng.m^{-3} dans des zones urbaines, une méthode analytique sensible est requise. Plusieurs études sur des échantillons environnementaux ont été mises en œuvre. Actuellement, l'identification se fait par chromatographie gazeuse avec une détection à capture d'électron (Jinhui et Lee 2000), à ionisation chimique négative et positive couplée à la spectrométrie de masse (GC- NIMS) (Jinhui et Lee 2000 ; Niederer *et al.* 1998 ; Dusek *et al.* 2002 ; Bezabeh *et al.* 2003 ; Siegmund *et al.* 2003), ou par détection à ionisation de flamme (Paschke *et al.* 1992). Après dérivation, la chromatographie gazeuse couplée à la spectrométrie de masse avec ionisation par impact électronique a également été utilisée (Scheepers *et al.* 1994).

Notre étude est basée sur l'optimisation d'une procédure analytique pour la séparation et la quantification de 15 NHAPs, présent dans des échantillons d'aérosol, en utilisant la chromatographie liquide à détection fluorescente. En effet cette technique donne une alternative sensible et spécifique à la GC- NIMS. Cependant elle requiert une réduction des NHAPs en leur amino- HAPs correspondant, à cause de leur très faible fluorescence.

Les principaux facteurs affectant l'efficacité de cette réduction qui se fera en ligne, comme le débit (de 0.5 à 1 mL.min^{-1}), la température (de 20 à 110°C), la position (avant ou après la colonne analytique) et le remplissage ($5\% \text{ Pt- Al}_2\text{O}_3$ ou $\text{Zn- Al}_2\text{O}_3$) de la colonne réductrice seront étudiés et optimisés.

Les NHAPS quantifiés dans ces travaux sont le: 1,5-dinitronaphthalène (1.5 dnN), 1-nitronaphthalène (1 nN), 2-nitronaphthalène (2 nN), 5-nitroacénaphthène (5 nAc), 9-nitrophénanthrène (9 nPh), 9-nitroanthracène (9 nA), 1,3-dinitropyrene (1.3 dnPy), 1,6-dinitropyrene (1.6 dnPy), 1-nitropyrene (1 nPy), 1,8-dinitropyrene (1.8 dnPy), 3-nitrofluoranthène (3 nFlu), 7-nitrobenz[a]anthracène (7 nBaA), 6-nitrochrysène (6 nChr), 6-nitrobenz[a]pyrène (6 nBaPy) et le 3-nitropérylène (3 nPer).

Deux campagnes, l'une en Décembre 2005 et l'autre en Août 2006, ont été réalisées à Strasbourg pour étudier la composition de l'aérosol. Bien que les NHAPs puissent être transportés dans l'atmosphère en phase gazeuse, notre étude ne prendra en compte que la phase particulaire.

PARTIE EXPERIMENTALE

Les conditions analytiques pour la détection des NHAPs, sur un système CLHP de marque Kontron, sont décrites ci-dessous. Le four de la colonne analytique est fixé à 25°C , le volume d'injection est de $20 \mu\text{L}$. La séparation des NHAPs est accomplie avec pour phase mobile un mélange méthanol/eau à un débit de 0.8 mL.min^{-1} sur une colonne analytique à phase inverse (Macherey- Nagel EC 250/8/4 nucleosil 100- 5 C_{18} HAP, $250 \times 4 \text{ mm i.d.}$) équipée d'une colonne de garde (CC 8/4 nucleosil 100- 5 C_{18} PAH). Pour la réduction en ligne des NHAPs en leur amino- HAPs correspondant, une seconde colonne ($50 \times 4 \text{ mm i.d.}$) remplie avec un catalyseur platine sur de l'alumine ($5\% \text{ Pt- Al}_2\text{O}_3$) est placée, après la colonne analytique, dans un four dont la température est fixé à 90°C . La longueur des capillaires avant et après la colonne réductrice est de 35 cm .

Les longueurs d'onde d'excitation et d'émission utilisées pour la détection des différents composés ont été déterminées à l'aide d'un spectrofluorimètre et sont résumées dans le tableau 1 ci-dessous. Les limites de détections calculées en prenant en compte, trois fois le rapport entre la hauteur du bruit de fond et du pic pour le standard de plus basse concentration, sont également dans le tableau 1 (Leoz-Garziandia 2000).

Tableau 1. Limite de détection et longueur d'onde des NHAPs étudiés.

Composés	Longueur d'onde (nm) excitation/émission	Limite de détection ($\mu\text{g.L}^{-1}$)
1.5 dnN	230 / 400	0.16
1 nN	230 / 400	0.20
2 nN	230 / 400	0.06
5 nAc	230 / 400	0.75
9 nPh	250 / 440	0.16
9 nA	263 / 505	0.10
1.6 dnPy	369 / 442	0.25
1.8 dnPy	369 / 442	0.22
1 nPy	369 / 442	0.08
1.3 dnPy	369 / 442	0.17
3 nFlu	300 / 530	0.55
7 nBaA	300 / 530	0.45
6 nChr	270 / 430	0.08
6 nBaPy	307 / 500	0.30
3 nPer	230 / 540	1.20

L'échantillonneur d'air, Digital DA80 à haut volume, utilisé pour collecter la matière particulaire (PM 10) était placé à environ 30 m du sol, sur le toit de l'institut botanique de l'université de Strasbourg. Ce site a été choisi, pour être représentatif des conditions urbaines. Les filtres utilisés pour l'échantillonnage étaient en fibre de quartz et les prélèvements duraient 24 h à un débit de $30 \text{ m}^3.\text{h}^{-1}$ ce qui donne un total de $720 \text{ m}^3.\text{h}^{-1}$ par échantillons d'air. Immédiatement après prélèvement les filtres sont extraits par Soxhlet dans un mélange hexane/dichlorométhane (50:50) pendant 20 heures.

RESULTATS ET DISCUSSION

Position de la colonne réductrice

La colonne peut être positionnée avant ou après la colonne analytique. Son positionnement avant, permet une séparation plus facile, du fait de la polarité plus faible des amino- HAPs. En effet dans cette configuration les NHAPs sont réduits avant d'être séparés. Par contre on a remarqué que les temps de rétention et l'efficacité de la réduction n'étaient pas reproductibles. Dans la deuxième configuration où elle est placée après, la séparation des NHAPs, avant leur réduction, est plus délicate du fait d'une part d'une plus grande polarité et d'autre part de la dispersion de ces composés sur la colonne réductrice qui provoque un sensible élargissement des pics. Cependant la résolution des pics est acceptable et il n'y a plus les problèmes rencontrés lors de la première configuration.

Choix du catalyseur

Deux catalyseurs ont été testés pour remplir la colonne réductrice : 5 % de platine ou de zinc sur de l'alumine.

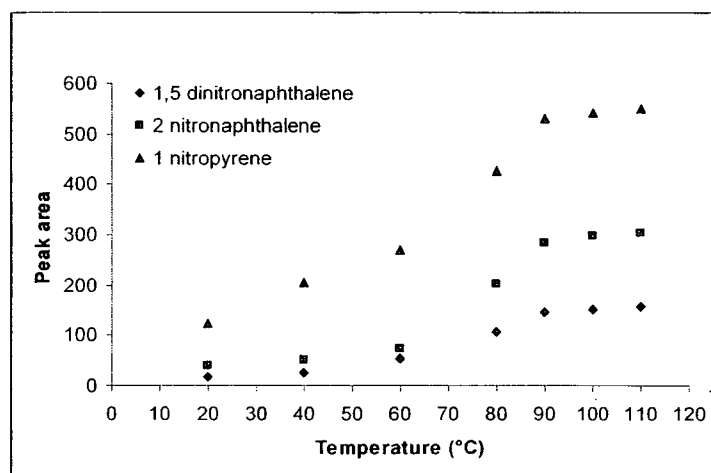
La sensibilité de la colonne réductrice remplie avec du zinc n'était pas satisfaisante. On avait par exemple, comme limite de détection (LD), pour le 1 nPy 0.03 mg.L^{-1} , pour le 1 nN la LD était de 0.05 mg.L^{-1} et le 3 nPer n'était même pas détectable. Différentes expériences ont été effectuées pour augmenter la LD des composés, comme le changement du débit ou de la température de réduction, mais les résultats n'ont pas changé significativement. Par contre l'utilisation de la platine comme catalyseur a permis une détection de tous les composés avec des LD de l'ordre de $0.6 \mu\text{g.L}^{-1}$. En nous basant sur ces résultats la colonne réductrice avec 5 % Pt- Al_2O_3 comme catalyseur sera utilisée.

Température de réduction

Diverses températures, allant de 20 à 110°C, ont été testées sur la colonne remplie de platine d'alumine pour étudier son efficacité. Pour simplifier l'étude, seulement trois composés ont été sélectionnés (1.5 dnN, 1 nPyr et 2 nN). Ces trois composés sont représentatifs des autres NHAPs étudiés en terme de propriétés physiques et chimiques. Les résultats obtenus (Fig. 1) montrent que lorsque la température augmente, l'efficacité de la réduction, pour les trois composés, augmente également. Cependant à 90 °C l'augmentation stagne et l'efficacité de réduction n'a pas de changement significatif. Par exemple, le 1 nPyr dont la variation est la plus importante, a pour valeurs : 528 d'aire de pic contre 549 pour 100 °C.

Le four contenant la colonne réductrice sera fixé à 90°C.

Fig. 1. Effet de la température sur l'efficacité de la réduction pour la colonne 5 % Pt-Al₂O₃.



Conditions: débit = 0.8 mL.min⁻¹; concentration = 5 mg.L⁻¹;
valeurs = moyenne de trois injections

Débit

L'effet du débit, sur la colonne réductrice remplie de platine sur de l'alumine, à 90 °C, pour trois composés (1.5 dnN, 1 et 2 nN), a été étudié.

En regardant les résultats du tableau 2, on remarque que les aires des pics (A), augmentent avec une diminution du débit, mais les largeurs de pics (W) et les temps de rétention (Tr) des composés, augmentent également. Pour le 2 nN à un débit de 0.5 mL.min⁻¹, l'aire est de 518.9 et à un débit de 1 mL.min⁻¹ l'aire est de 253.9, soit environ 49 % de perte pour l'efficacité de la réduction. Parallèlement, la largeur du pic diminue d'environ 45 % pour une diminution de débit de 1 (W = 1.65) à 0.5 (W = 3.69) mL.min⁻¹. La séparation des composés devient délicate avec des largeurs de pic importantes. Un débit de 0.8 mL.min⁻¹ est un bon compromis entre largeur de pic et efficacité de la réduction.

Tableau 2. Effet du débit sur l'efficacité de la réduction pour la colonne 5 % Pt-Al₂O₃.

	D = 0.5 mL.min ⁻¹			D = 0.65 mL.min ⁻¹			D = 0.8 mL.min ⁻¹			D = 1 mL.min ⁻¹		
	Tr	A	W	Tr	A	W	Tr	A	W	Tr	A	W
1.5 dnN	11.13	199	2.97	8.61	157.3	2.24	6.98	123.7	1.83	5.78	97.5	1.46
1 nN	13.77	123.3	2.46	10.70	100.6	1.95	8.65	81.4	1.46	7.12	64.5	1.24
2 nN	16.28	518.9	3.69	12.65	416.0	2.61	10.20	320.8	2.09	8.40	253.9	1.65

D: débit; A: aire du pic; W: largeur du pic et Tr: temps de rétention

Application aux échantillons environnementaux

La méthode a été appliquée pour l'analyse des NHAPs dans 20 échantillons d'aérosol, récoltés pour la moitié au mois de décembre 2005 et pour l'autre moitié au mois d'août 2006. Parmi les 15 NHAPs quantifiés trois sont présents uniquement dans la phase gazeuse (1.5 dnN, 1 nN et 2 nN) du fait de leur forte volatilité. Le 3 nPer et le 5 nAc ont des limites de détection trop élevées, de plus le 5 nAc, composé semi volatil, est réparti entre les deux phases mais avec une majorité dans la phase gazeuse (environ 45 % l'hiver et seulement 10 % l'été). Etant donné la trop faible possibilité de détecter ces derniers composés, ils ne seront pas incorporés dans nos études de terrain. Les résultats sont présentés dans le tableau 3. La concentration des NHAPs varie de 6 à 282 pg.m^{-3} l'hiver et de 8 à 54 pg.m^{-3} l'été. Bien que le nombre d'échantillons reste insuffisant pour comprendre le comportement des NHAPs dans l'environnement, quelques tendances peuvent être observées. Parmi les 10 NHAPs de notre étude, seul les 1.3 dnPy et 3 nFlu ne sont pas quantifiables ni même détectable. Le 1 nPy est le composé le plus abondant pendant les deux saisons. Tous les composés sont plus abondants l'hiver que l'été. Des composés quantifiables en hiver ne le sont plus en été mais restent détectables (9 nPh, 1.6 dnPy, 1.8 dnPy et 6 nChr). La concentration moyenne, des NHAPs quantifiables, est de 534 pg.m^{-3} l'hiver contre 118 pg.m^{-3} l'été. Cela peut s'expliquer d'une part par la plus grande quantité de particules provenant du chauffage domestique et de la formation du phénomène d'inversion de température en hiver, et d'autre part, par une volatilité des HAPs ayant 3- 4 cycles et de la dégradation photochimique des HAPs et NHAPs beaucoup plus importante l'été. De plus la phase particulaire augmente en hiver ce qui accentue une plus forte concentration des composés lors de cette saison. En effet à part les 7 nBaA, 6 nChr et 6 nBaPy, composés peu volatils, qui sont pratiquement toujours en phase particulaire, quelque soit les saisons, la répartition des composés semi volatils dépend de la température. Les concentrations trouvées sont en accord avec d'autres travaux réalisés en phase particulaire même si c'est délicat de comparer des villes entre elles, du fait de l'absence d'une similarité fiable (Schauer *et al.* 2004 ; Bamford et Baker 2003 ; Dimashki *et al.* 2000 ; Reisen et Arey 2005).

Tableau 3. Concentrations (pg.m^{-3}) des NHAPs dans l'atmosphère de Strasbourg au mois de Décembre 2005 et Août 2006.

Composés	Décembre 2005			Août 2006		
	Moyenne (n = 10)	Min	Max	Moyenne (n = 10)	Min	Max
9 nPh	18	11	28	< L.Q.	> L.D.	< L.Q.
9 nA	36	30	48	8	< L.Q.	12.6
1.6 dnPy	14	< L.Q.	21	< L.Q.	> L.D.	< L.Q.
1.8 dnPy	12	< L.Q.	17	< L.Q.	> L.D.	< L.Q.
1 nPy	282	145	492	54	22	97
1.3 dnPy	< L.Q.	< L.D.	< L.Q.	< L.Q.	< L.D.	< L.Q.
3 nFlu	< L.Q.	< L.D.	< L.Q.	< L.Q.	< L.D.	< L.Q.
7 nBaA	102	45	160	20	< L.Q.	28
6 nChr	6	< L.Q.	9	< L.Q.	> L.D.	< L.Q.
6 nBaPy	64	40	118	36	15	65
Totale NHAPs	534			118		

L.D. : limite de détection ; L.Q. : limite de quantification.

CONCLUSION

Nous avons mis au point une méthode sensible et sélective pour quantifier 15 NHAPs en utilisant la CLHP à détection fluorescence après réduction en ligne. Les différents paramètres affectant l'efficacité de la réduction comme le débit, la température et le remplissage de la colonne réductrice ont été optimisés.

Les limites de détections de la méthode varient de $0.06 \mu\text{g.L}^{-1}$ à $1.20 \mu\text{g.L}^{-1}$.

La durée de vie de la colonne réductrice est identique à celle d'une colonne analytique. La méthode donne une bonne reproductibilité de réponse pour des injections successives mais le problème reste la largeur des pics due au fait que les composés traînent sur deux colonnes et se dispersent.

Les premiers résultats obtenus nous ont permis de constater, outre que la méthode est adaptée, que la concentration des NHAPs est plus élevée l'hiver que l'été, avec comme moyenne respective 534 pg.m^{-3} et 118 pg.m^{-3} . Le 1 NPy est le composé le plus abondant aussi bien l'hiver que l'été.

De futures campagnes devront être réalisées pour confirmer et approfondir nos conclusions sur le comportement des NHAPs dans l'atmosphère en phase particulaire. Deux campagnes sont prévues sur Strasbourg au mois de Novembre et d'Avril. Les prélèvements s'effectueront sur le même site mais la journée sera scindée en quatre périodes de six heures (4h- 10h ; 10h- 16h ; 16h- 22h ; 22h- 4h) pour étudier non seulement l'effet saisonnier mais également l'effet temporel. Les substrats obtenus après extraction au Soxhlet, provenant de la même période, seront rassemblés et concentrés pour avoir le maximum de phase particulaire dans l'échantillon. Ce rassemblement de substrat se fera en tenant compte au maximum des conditions climatiques et météorologiques.

REFERENCES

- Bamford, H.A., Bezabeh, D.Z., Schantz, M.M., Wise, S.A. and Baker J.E (2003) *Chemosphere*, 50, pp. 575- 587.
- Bamford, H.A. and Baker, J.E. (2003) *Atmospheric Environment*, 37, pp. 2077- 2091.
- Bezabeh, D.Z., Bamford, H.A., Schantz, M.M. and Wise, S.A. (2003) *Analytical Bioanalytical Chemistry*, 375, pp. 381-388.
- Dimashki, M., Harrad, S. and Harrison, R.M. (2000) *Atmospheric Environment*, 34, pp. 2459- 2469.
- Dusek, B., Hajslova J. and Kocourek, V. (2002) *J chromatogr A*, 982, pp. 127- 143.
- Jinhui, X. and Lee, F.S.C. (2000) *Analytical Chimica Acta*, 416, pp. 111-115.
- Leoz- Garziandia (2000) E. report number DRC/AIRE- 00 23 448- Ele- n°570, Ineris.
- Niederer, M. (1998) *Environ. Sci. Pollut. Res.*, 5, pp. 209- 216.
- Paschke, T., Hawthorne, S.B., Miller, D.J. and Wenclawiak, B. (1992) *J. Chromatogr A*, 609, pp. 333- 340.
- Reisen, F. and Arey, J. (2005) *Environ. Sci. Technol.*, 39, pp. 64- 73.
- Schauer, C., Niessner, R. and Pöschl, U. (2004) *Analytical Bioanalytical Chemistry*, 378, pp. 725-736.
- Scheepers, P.T.J., Velders, D.D., Martens, M.H.J., Noordhoek, J. And Bos, R.P. (1994) *J chromatogr A*, 677, pp. 107- 121.
- Siegmund, B., Weiss, R. and Pfannhauser, W. (2003) *Anal Bioanal Chem*, 405, pp. 175- 181.

IDENTIFICATION ET QUANTIFICATION DES CONTRIBUTIONS RELATIVES DES SOURCES DE POUSSIÈRES FINES EN MILIEU URBAIN.

H.Guégan(1), M.Chavent(2), B.Patouille(2), F.Campagne(3)

(1) ARCANE-CENBG, Le Haut Vigneau, BP120, 33175 Gradignan Cedex.
arcane@cenbg.in2p3.fr

(2) MAB, Université Bordeaux1, 351 cours de la libération, 33405, Talence.

(3) AIRAQ, 13, allée J. Watt 33692 Mérignac.

TITLE

Identification and quantification of fine particles sources contributions in an urban site.

ABSTRACT :

In order to identify fine particulate sources and to quantify their contribution, we have applied a three steps process: collecting of PM_{2.5} with sequential fine particle samplers on the chosen site, measurement of the chemical composition with PIXE method and finally an original mathematical data processing resulting from this PIXE analysis.

This mathematical data processing is itself divided into two steps. First PCA (Principal Component Analysis) with VARIMAX rotation is useful to identify the sources. In a second time, an approximation of the receptor model based on the PMF (Positive Matrix Factorization) method defines quantitatively the sources without any a priori information about the sources. This approximation gives the profile of each source as well as its contribution to airborne particulate matter

RESUME

La réponse à la question de l'identification et de la quantification des contributions relatives des sources de poussières fines à un environnement est apportée par la construction d'un protocole en trois phases : le prélèvement de particules fines sur le site d'intérêt (en optimisant les paramètres d'échantillonnage), l'analyse chimique de ces prélèvements à l'aide d'une technique multi-élémentaire sensible (la méthode PIXE) et enfin un traitement mathématique original des données issues de cette analyse PIXE. Le traitement mathématique est construit en deux temps. Une ACP (Analyse en Composantes Principales) suivie d'une rotation VARIMAX permet dans un premier temps d'identifier les sources. Dans un second temps une approximation du modèle du récepteur basée sur la méthode PMF (Positive Matrix Factorization) définit quantitativement les sources sans que l'on dispose *a priori* d'informations sur celles-ci. Cette approximation fournit pour chaque source identifiée sa composition multi-élémentaire (son profil) ainsi que sa contribution relative à l'empoussièrément sur le site de prélèvements durant la période d'étude.

Introduction

Nous synthétiserons dans cette communication les résultats les plus marquants obtenus lors de cette étude, qui s'est déroulée sur 2 ans et recouvre deux campagnes de prélèvements à des saisons différentes (une en hiver et une en été). Elle est le résultat d'une collaboration entre un organisme agréé de surveillance et de la qualité de l'air, un laboratoire de physique nucléaire spécialisé dans l'analyse élémentaire par faisceaux d'ions de haute énergie et une équipe de statisticiens d'un laboratoire de mathématiques appliquées.

Après avoir décrit la phase de prélèvement et d'analyse des filtres, nous présenterons ici les résultats du traitement mathématique obtenus à partir de la seule connaissance des concentrations élémentaires ainsi mesurées dans les filtres à savoir :

- les sources, identifiées par une méthode d'analyse factorielle (ACP+rotation VARIMAX)
- leurs compositions en éléments chimiques (leurs profils) ainsi que leurs contributions aux filtres ou encore à l'empoussièrément sur la période d'analyse, obtenues à l'aide du modèle du récepteur et de la méthode PMF (Positive Matrix Factorization).

Nous ne donnons ici que les résultats obtenus pour la période hivernale de prélèvements.

I- Prélèvements, analyse chimique et mise en forme des données

Le site de prélèvement choisi est celui d'Anglet. Ce dernier fait partie du réseau des stations fixes de l'Association Agréée de Surveillance et de la Qualité de l'Air de la région Aquitaine. Il a la particularité d'être situé en bordure d'une voie de grande circulation automobile et au cœur d'une agglomération de 170 000 habitants. Il est de plus soumis à l'influence de l'océan Atlantique à l'Ouest et d'un site industriel au Nord comportant entre autre une aciérie. Les prélèvements ont concerné les particules de la classe granumométrique PM2.5 recueillies sur membranes en polycarbonate de porosité 0,8µm par un préleveur de type Partisol+ fonctionnant à un débit d'un mètre cube par heure. Les séquences de prélèvement étaient de 12 heures, un prélèvement nuit de 19h à 7h et un prélèvement jour de 7h à 19h de manière à inclure plus spécifiquement la part du trafic automobile. Deux séries de prélèvements ont eu lieu en juin 2004 et décembre 2005 sur une période de 4 semaines chacune représentant donc au total une soixantaine de filtres par campagne.

L'analyse de ces prélèvements a ensuite été effectuée par technique PIXE (Particle Induced X-ray Emission). Cette méthode a l'intérêt de ne pas nécessiter la destruction de l'échantillon par sa mise en solution et de permettre le dosage d'une douzaine d'éléments majeurs, mineurs et traces de masse supérieure à l'aluminium avec des limites de détection de l'ordre de quelques nanogrammes d'élément par filtre.

Les données de la campagne hiver issues de l'analyse PIXE se présentent sous la forme d'un tableau indiquant pour chaque prélèvement les concentrations élémentaires de 15 éléments chimiques. Pour les principaux éléments détectés par PIXE : silicium, aluminium, fer et soufre, nous avons calculé et introduit dans le tableau le poids d'une de leur forme oxydée SiO₂, Al₂O₃, Fe₂O₃, SO₄. De la masse totale obtenue par pesée du filtre avant et après prélèvement, nous avons soustrait à la fois la masse des éléments simples mesurés et la masse de l'oxygène liée à certains oxydes. La différence obtenue, notée C-Org, représente essentiellement la partie carbonée et organique des particules qui n'est pas détectée par la technique PIXE. Cette mise en forme des données a été nécessaire pour l'interprétation des résultats issus du traitement mathématique.

II- Identification des sources

L'objet de la première partie du traitement mathématique a été de répondre à la question initiale : « Quelles sont les sources participant à l'empoussièrément ? ». Afin de répondre à cette question nous avons utilisé une méthode d'analyse factorielle appelée Analyse en Composantes Principales (ACP). Cette méthode, appliquée à une matrice de concentrations, permet une analyse des corrélations entre les éléments ou constituants chimiques mesurés. On s'intéressera ici aux corrélations entre éléments chimiques proches de 1, traduisant le fait que leurs concentrations augmentent et diminuent en même temps dans les filtres. Un groupe d'éléments ainsi corrélés pourra permettre d'identifier la présence d'une source dans le cas où ces éléments sont par ailleurs les traceurs connus d'une même source.

Cette ACP (suivie d'une rotation VARIMAX) a été appliquée au tableau de données obtenu à partir des prélèvements « hiver ». Les résultats (obtenus avec la procédure FACTOR du logiciel SAS) se présentent sous la forme d'une matrice dite des saturations. Cette matrice représente les corrélations des éléments ou constituants chimiques aux facteurs principaux (système d'axe portant le maximum de l'inertie des données initiales). Nous nous servons de cette matrice de saturation (cf. Tableau 1) pour associer lorsque c'est possible des sources aux facteurs. Pour cela, nous regardons les éléments ou constituants chimiques, fortement corrélés aux facteurs (que nous avons surlignés dans le tableau) et lorsque ces éléments sont des traceurs connus d'une source, nous faisons une première proposition d'association d'une source aux facteurs.

	Al2O3	SiO2	P	SO4	Cl	K	Ca	Mn	Fe2O3	Cu	Zn	Br	Pb	Corg
Factor1	0,98	0,98	0,97	-0,03	-0,15	0,60	0,61	-0,28	0,20	0,21	-0,03	0,49	0,00	-0,02
Factor2	0,09	0,01	0,09	0,77	-0,27	0,72	0,09	0,12	0,28	0,36	0,05	0,62	0,16	0,89
Factor3	-0,04	-0,06	-0,02	0,25	-0,14	0,11	-0,11	0,60	0,29	0,16	0,98	0,10	0,97	0,02
Factor4	0,07	0,10	0,07	0,18	-0,18	0,23	0,56	0,58	0,85	0,82	0,13	0,28	0,13	0,22
Factor5	-0,04	-0,07	-0,09	-0,35	0,88	0,03	0,27	-0,24	-0,11	-0,15	-0,04	0,39	-0,05	-0,16

Tableau 1 : Matrice des saturations

Nous confirmerons ces hypothèses à l'aide de paramètres extérieurs tels que les données météorologiques (températures et direction du vent), les valeurs de NO, NO₂, CO mesurées simultanément sur le site de prélèvement et la périodicité jour/nuit de l'échantillonnage.

Association du facteur 5 à la source marine

Le premier facteur est le plus simple à identifier : l'élément chlore y est très fortement corrélé et du fait de la composition des sels marins NaCl, nous pouvons associer ce facteur à cette source. Cette hypothèse peut être confirmée en regardant la corrélation entre la direction du vent relevée sur la station de Météo-France localisée à 2,5Km au sud du site de prélèvement et le facteur 4. La carte visualisant la géographie du lieu (Figure 1) ainsi que le graphe de corrélation¹ associé (Figure 2) reportés ci-dessous parlent d'eux-mêmes.

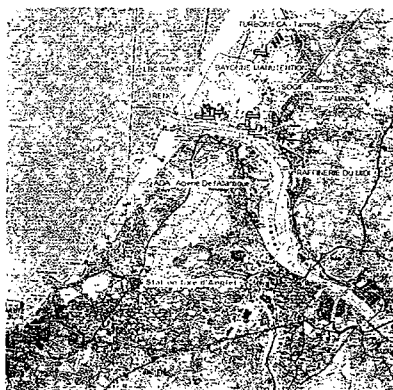


Figure 1 : Carte du site de prélèvement

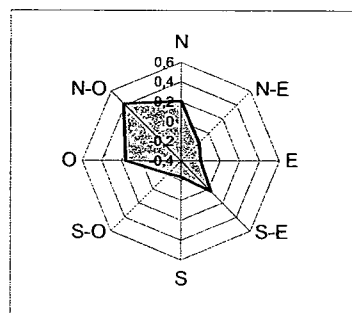


Figure 2 : graphique des corrélations entre les directions du vent et le facteur 5

Association du facteur 1 à la source terrigène

Ce facteur est caractérisé par les éléments aluminium et silicium (traduits sous forme d'oxyde) qui sont révélateurs des aluminosilicates, les traceurs des phénomènes d'érosion de la croûte terrestre. La Figure 3 confirme cette hypothèse et fait apparaître le phénomène bien connu d'effet de Foehn dans le Sud-Ouest de la France qui se caractérise par un apport de poussières qui viennent se redéposer lors d'épisodes pluvieux par vents de secteur Sud. Ce phénomène de transport de matière (sable du Sahara) à longue distance est clairement mis en évidence ici.

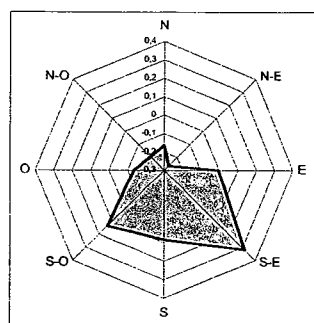


Figure 3 : Graphique des corrélations entre les directions du vent et le facteur 1

Association du facteur 4 à la source automobile

Les éléments les plus fortement corrélés à ce facteur sont les éléments métalliques fer et cuivre dont on sait qu'il peuvent être émis par les phénomènes d'usure de pièces en mouvement dans un véhicule, aussi bien au niveau du moteur que des organes de freinage. Pour conforter cette première hypothèse, nous avons regardé la variation relative de ce facteur sur la période d'échantillonnage en distinguant les prélèvements correspondant aux nuits de ceux correspondant aux jours. On voit alors très nettement sur la Figure 4 que le facteur 4 est toujours plus important le jour (lorsque le trafic automobile est plus intense) que la nuit. Nous avons également utilisé les données concernant les molécules CO, NO, NO₂ mesurées dans le cadre réglementaire en les associant aux autres constituants pour appliquer de nouveau une ACP. Nous avons observé sur la matrice des saturations ainsi obtenue que ces composants, traceurs du trafic automobile, sont effectivement bien corrélés au même facteur que le fer et le cuivre.

¹ Précisons que ce graphique n'est pas la rose des vents classique

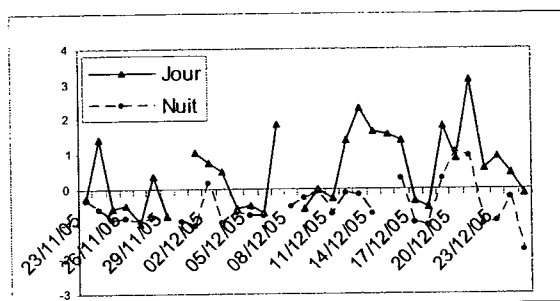


Figure 4 : Evolution Jour/Nuit du facteur 4-hiver associé à la source automobile

Association du facteur 3 à la source industrielle

L'identification de cette source ne pose pas de difficultés dans la mesure où les deux éléments qui sont le plus fortement corrélés à ce facteur (le plomb et le zinc) ne sont pas présents à des quantités élevées à l'état naturel dans l'environnement. En revanche nous disposons de données DRIRE pour l'année 2004 qui font état du rejet dans l'atmosphère des aciéries de l'atlantique situées au Nord du site de prélèvement. Les 13,2 tonnes par an de zinc et 3,2 tonnes pour le plomb sont suffisamment significatives pour permettre une signature non ambiguë de cette source.

Par ailleurs la Figure 5 montre qu'il existe effectivement un lien plus marqué entre ce facteur et la direction Est/Nord-Est. Malgré tout, la localisation de la zone industrielle Bayonnaise est nettement plus au Nord. L'explication de ce graphe n'est ainsi pas complètement satisfaisante, et il se pourrait que l'influence de la géographie locale (notamment à cause de la rivière Adour) permette d'expliquer le phénomène.

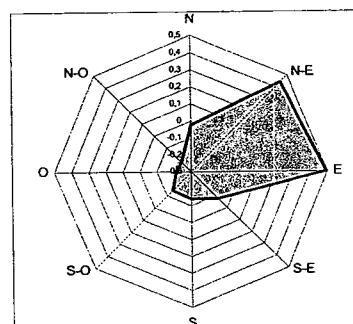


Figure 5 : Graphique des corrélations entre les directions du vent et le facteur 1

Association du facteur 2 à la source phénomènes de combustion

C-Org et SO₄ sont les constituants chimiques les plus fortement corrélés à ce facteur. Ces deux constituants sont d'une façon générale révélateurs de résidus de combustion d'hydrocarbures qui contiennent tous du soufre à des teneurs diverses. Les phénomènes de combustion produisent ainsi des résidus carbonés et soufrés, généralement sous forme de SO₂ qui vont ensuite partiellement se transformer à la suite de processus chimiques complexes en aérosols secondaires de type SO₄ par exemple. Les systèmes de chauffage urbain sont une des composantes possibles de cette source. En effet, sur la période de prélèvement considérée, a eu lieu une forte variation des conditions météorologiques qui s'est traduite par une chute des températures (cf. Figure 6) et nous observons sur la Figure 7 une augmentation simultanée de la part relative de ce facteur, ce qui confirme l'hypothèse initiale d'association du facteur à la source combustion.

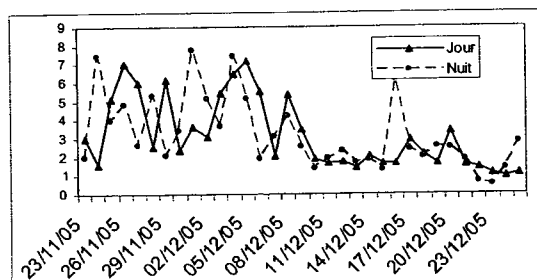


Figure 6 : Evolutions jour/nuit des températures sur la période «hiver»

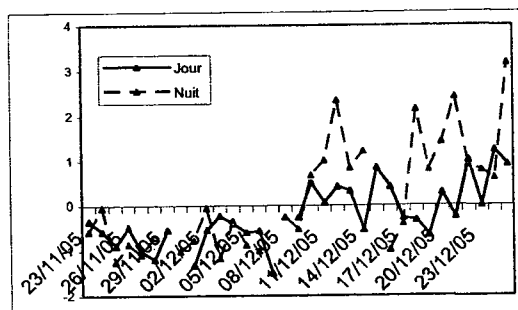


Figure 7 : Evolutions jour/nuit du facteur 2 associé à la source de combustion

III- Quantification

L'ACP, communément employée pour traiter la question de la détection des sources de pollution, permet d'identifier, voire de caractériser les sources mais jamais de les quantifier. Les profils et les contributions des sources ont été obtenus dans la seconde partie du traitement mathématique à partir de l'approximation du modèle du récepteur basée sur la méthode PMF (Positive Matrix Factorization) (Paatero and Tapper, 1994). Le modèle du récepteur permet d'exprimer une matrice de concentrations \mathbf{X} sous la forme $\mathbf{X} = \mathbf{GF} + \mathbf{E}$ où \mathbf{G} est la matrice à partir de laquelle on définira les contributions des p sources aux n filtres, \mathbf{F} est la matrice à partir de laquelle on définira les profils des p sources en fonction des m composants et \mathbf{E} est la matrice des erreurs d'approximation de \mathbf{X} par le produit \mathbf{GF} . Il est important de noter que cette approche nécessite uniquement la connaissance *a priori* du nombre p de sources.

Les résultats numériques présentés ici ont été obtenus en appliquant l'algorithme PMF proposé par Jianhang et Laosheng (2004) sur le même tableau de concentrations que pour l'ACP. Le nombre de sources recherchées étant fixé par l'utilisateur de l'algorithme, nous avons choisi 5 sources, ce choix découlant des résultats obtenus avec l'ACP.

III-1 Profil des sources

La matrice de profils \mathbf{F} (cf. Tableau 2) indique les proportions d'émission de chaque élément pour chacune des sources. L'information apportée par cette matrice est donc la réponse à la question : « Quelles sont les concentrations élémentaires des constituants de chacune des sources ? »

	Al2O3	SiO2	P	SO4	Cl	K	Ca	Mn	Fe2O3	Cu	Zn	Br	Pb	Corg
Terri.	41,6%	18,5%	6,2%	10,1%	0,0%	12,9%	2,4%	0,0%	6,7%	0,3%	0,7%	0,2%	0,3%	0,0%
Auto	0,0%	0,0%	0,0%	15,3%	0,0%	0,0%	1,6%	0,2%	15,0%	0,7%	0,0%	0,1%	0,0%	67,1%
Indust.	0,0%	0,0%	0,7%	59,6%	0,0%	3,6%	0,0%	0,3%	12,7%	0,4%	16,3%	0,2%	6,2%	0,0%
Combu.	0,0%	0,0%	0,0%	12,2%	0,0%	1,5%	0,0%	0,0%	0,2%	0,0%	0,0%	0,0%	0,0%	85,9%
Embr.	0,0%	0,0%	0,6%	22,6%	74,5%	0,1%	1,4%	0,0%	0,0%	0,0%	0,3%	0,5%	0,0%	0,0%

Tableau 2 : Matrice des profils des 5 sources

L'identification de ces sources a été facilitée par l'étude des corrélations entre les variations des facteurs issus de l'ACP et les variations des sources calculées par l'approximation du modèle du récepteur. On observe ainsi que la source embruns est composée majoritairement du chlore composant le sel. La source terrigène est également majoritairement composée des alumino-silicates produits par les phénomènes d'érosion. Le plomb et le zinc qui étaient fortement corrélés à la source industrielle mise en évidence par l'ACP, ne représentent qu'une faible part en masse des particules de cette origine, qui est en fait composée principalement de dérivés soufrés. De la même façon, le fer et le cuivre qui caractérisaient bien la source auto ne représentent qu'une part mineure de sa composition. Ces particules sont en réalité majoritairement constituées de composés organiques et carbonés, ce qui est bien cohérent avec la nature des particules diesel ou essence émises par les moteurs. Enfin la composante plus globale liée aux phénomènes de combustion est également majoritairement composée de carbone, éléments organiques et aérosols secondaires, ce qui est également tout à fait cohérent avec la connaissance que l'on a aujourd'hui de ce type de particules et de leur mode de formation.

III-2 Contribution des sources à l'empoussièrement

La matrice \mathbf{G} des contributions donne les approximations des concentrations dans chaque filtre de chacune des sources précédemment identifiées. A partir de ces contributions on calcule les masses de particules PM2.5 émises par chaque source et recueillies dans chaque filtre. On en déduit le pourcentage de poussières fines émises par chaque source et recueillies dans la totalité des filtres sur la période de prélèvement. Par extrapolation on peut considérer que ces pourcentages correspondent aux contributions des sources à l'empoussièrement sur le site durant la période d'étude. Cette information est la réponse à la question : « Sur la période d'échantillonnage, quelle est la contribution de chacune des sources à l'empoussièrement en PM2.5 ? ». Ces contributions à l'empoussièrement sont données Figure 8.

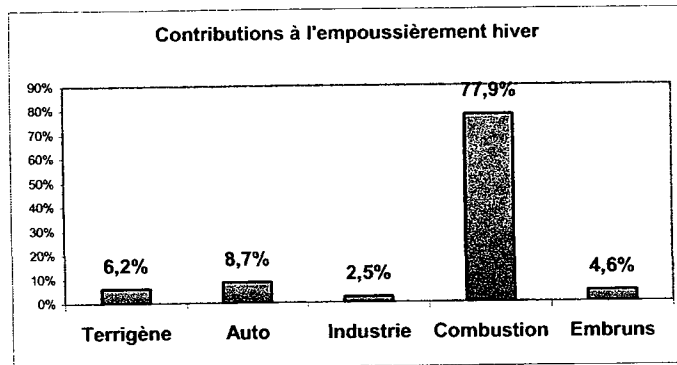


Figure 8 : Contributions des 5 sources à l'empoussièrment

Le phénomène marquant ici est la place prépondérante prise par la source combustion. Ceci s'explique assez facilement par la longue période de basse température et l'augmentation associée de la source de chauffage urbain. La contribution de la source industrielle est très faible comme pouvait le laisser présager sa composition dépourvue de matière carbonée ou organique. En revanche, il est surprenant d'observer que la source naturelle cumulant la source terrigène et la source embruns contribue plus fortement à l'empoussièrment que la source automobile, sur ce site à proximité du trafic. L'explication se trouve en partie dans la masse des atomes constituant les particules. En effet les oxydes d'alumino-silicate et le chlore du sel pèsent en masse bien plus que les composés à base de carbone. Cette réalité exprimée en masse n'est sûrement pas transposable si l'on considère le nombre de particules concernées.

Conclusion

Sur la séquence de prélèvement hivernale, l'application du traitement mathématique à la série de données obtenues, permet de retrouver les 5 grandes sources d'empoussièrment auxquelles on pouvait s'attendre sur ce site choisi à cet effet : une source naturelle se décomposant en source marine et source terrigène, une source trafic automobile, une source industrielle, et une source plus globale que l'on a appelé phénomènes de combustion. Cette dernière regroupe les résidus issus de la combustion d'hydrocarbures qui peuvent eux-mêmes avoir plusieurs origines (chauffage urbain, production d'énergie dans l'industrie). La contribution à l'empoussièrment de la source phénomènes de combustion est très largement prédominante et fortement liée à l'origine spécifique du chauffage urbain. La source industrielle est relativement faible et il est intéressant de noter que malgré le site de prélèvement de proximité automobile, la source naturelle contribue à l'empoussièrment à une hauteur voisine de cette source anthropique.

Au final nous avons retrouvé par le traitement statistique les sources attendues et ce sans utiliser de connaissance a priori sur ces sources (ni leur nombre, ni leur nature ni leur profils). Nous apportons ici les premiers éléments chiffrés concernant l'empoussièrment en particules fines sur un site français, mais il est évident que ces mesures doivent se poursuivre à plus grande échelle en améliorant certains paramètres expérimentaux, en ajoutant éventuellement d'autres marqueurs plus spécifiques.

Références

- Jianhang, L., Laosheng, W. (2004) Technical details and programming guide for a general two-way positive matrix factorization algorithm, *Journal of Chemometrics* 18, pp. 519-525.
- Paatero, P., Tapper, U. (1994) Positive Matrix Factorization: a non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values. *Environmetrics* 5, pp. 111-126.

IDENTIFICATION ET QUANTIFICATION DES SOURCES DE PM10 DANS UNE AGGLOMERATION DE LA GRANDE BRETAGNE A PARTIR D'UNE ANALYSE INDIVIDUELLE DES PARTICULES

A. Khlaifi, A. Ionescu et Y. Candau

Centre d'Etudes et de Recherches en Thermique, Environnement et Systèmes (CERTES),
Université Paris 12 – Val de Marne, avenue du Général de Gaulle F-94010 Créteil Cedex
khlaifi @univ-paris12.fr

TITLE

Identification and quantification of PM10 sources in an urban area of United Kingdom using single-particle analysis.

ABSTRACT

Airborne particles have a strong impact on the environment and they are responsible of health-related effects; that is why there are many European Directives focusing on their level control. To continue the reduction of particles emitted by the industry, it is necessary to ensure that these demands are proportional to their contributions to the level of particulate matter in the environment.

The aim of this work was to identify the potential sources of dust and the contribution of the specific source, the steel industry, to the PM₁₀ levels in an industrial site situated in England. Environmental (receptor) samples were collected at two points. The location of these points was established in order to permit a discriminant analysis according to the wind direction. Single particles data analysis was based mainly on the identification of particles which were predominantly either a single element (e.g. FeO) or a combination of elements indicative of the particle origin. Most of these particles were one of five compounds (NaCl, Al₂O₃.SiO₂, FeO, CaSO₄&CaCO₃, MgCO₃). These compounds accounted together for an average of 81% of particles for the first site, and 69% of particles for the second one.

RESUME

Les particules en suspension ont un impact assez important sur la qualité de l'air et sont à l'origine d'une vaste gamme d'effets biologiques et sanitaires, ce qui explique le nombre important des directives européennes visant le contrôle de leurs niveaux. Pour continuer la réduction des émissions de particules en suspension pour certaines industries, il y a un besoin de s'assurer que ces demandes sont proportionnelles à leurs contributions au niveau enregistré dans l'environnement.

Cette étude s'intéresse à l'identification et à la caractérisation des sources potentielles de poussières en suspension et en particulier à la contribution de l'industrie sidérurgique au niveau global de pollution dans une agglomération de la Grande Bretagne. Des échantillons de mesure ont été rassemblés en deux points. Ces points ont été choisis de façon à permettre une analyse discriminante suivant la direction du vent. L'analyse des particules individuelles a été basée sur l'identification de l'appartenance des particules aux éléments simples (e.g. FeO) ou une combinaison des éléments indicatifs de l'origine de la particule. La plupart des particules ont pour origine cinq composés (NaCl, Al₂O₃.SiO₂, FeO, CaSO₄, CaCO₃, MgCO₃). Ces composés expliquent une moyenne de 81% et 69% des particules, respectivement, du premier et du deuxième point de mesure.

1. Introduction

La pollution atmosphérique prend de plus en plus une préoccupation croissante en raison de ses effets néfastes sur l'environnement mais aussi sur la santé humaine. L'une des espèces principales de pollution se présente dans l'atmosphère sous forme de particules en suspension. Les niveaux de ces particules ayant un diamètre inférieur à 10 microns (PM_{10}) sont pris comme indicateur pour mesurer l'impact sur la santé. Les standards de qualité d'air de l'UE ont défini les niveaux limites auxquels les gens sont exposés (UE 1996, 1999).

Les particules en suspension (PM_{10}) dérivent d'une gamme assez variée de sources : les processus industriels, et en particulier l'industrie sidérurgique, le trafic routier, la combustion domestique etc. Il s'avère donc nécessaire d'identifier les sources les plus importantes en termes de contribution au niveau global mesuré dans l'environnement, afin que des mesures de contrôle puissent être visées efficacement (MARICOPA, 1999).

Le but principal de ce travail est d'identifier la complémentarité entre l'analyse en vrac et l'analyse individuelle pour caractériser les sources d'aérosols (Johnson et al. 1981). Cette caractérisation est basée sur l'identification de l'appartenance des particules aux éléments simples ou à une combinaison d'éléments indicatifs de l'origine de la particule.

2. Site d'étude et mesures

2.1. Site d'étude

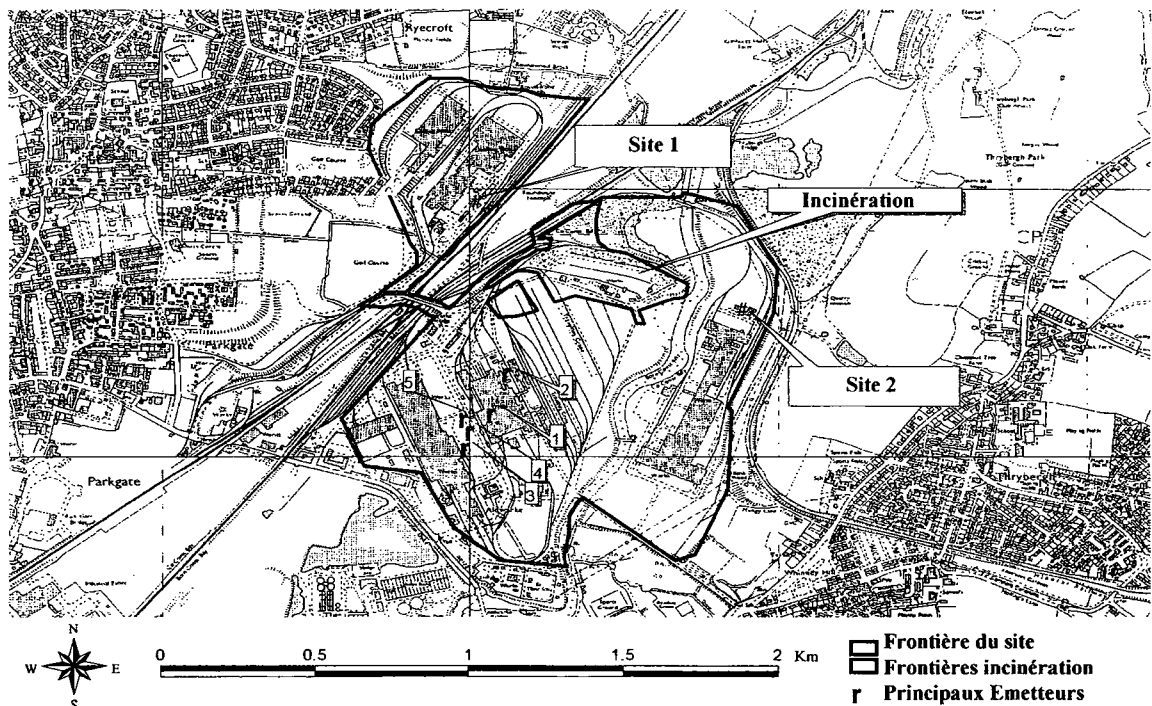


Figure 1: Site d'étude et points de mesure

Les données de mesure dans l'environnement ont été rassemblées à deux emplacements du site d'étude (Figure 1), situé à proximité d'une aciérie de Grande Bretagne. Ces échantillons ont été analysés par la méthode «Scanning Electron Microscopy» (SEM) qui permet d'obtenir la composition élémentaire et atomique de chaque particule (Johnson et Hunt 1995).

Le nombre d'échantillons rassemblés au site 2 est plus important que celui du site 1 : 22 échantillons correspondent à l'analyse de 1074 de particules au site 1 et 37 échantillons correspondent à l'analyse de 1590 de particules au site 2. Ces échantillons ne sont pas pris simultanément pour les deux emplacements de mesure.

Des données météorologiques (direction et vitesse du vent) sont rassemblées durant la même période d'échantillonnage.

2.2. Analyse individuelle des particules

La méthode SEM (Lee et Kelly 1980, Conner et al. 2001) a été employée pour l'analyse chimique des particules dans l'atmosphère. La composition de ces particules sera exprimée sous deux formes : pourcentage élémentaire et pourcentage atomique.

Afin d'expliquer cette composition, il est utile d'exposer la façon par laquelle ces informations ont été acquises. En effet, la technique comprend le bombardement d'un matériel (dans notre cas les particules dans le filtre d'échantillonnage) avec des électrons. Ces derniers causent l'excitation des éléments constitutifs des particules à entrer en fluorescence. Cette fluorescence est alors détectée et comptée par l'instrument. L'instrument est programmé pour chercher des suites d'éléments qui sont définis par l'analyste. Ce procédé renvoie des concentrations très petites ou négatives si un élément n'est pas présent. La limite de détection pour la technique est de 0.2%.

Les résultats pour chaque espèce sont ainsi exprimés soit sous forme de pourcentage atomique soit élémentaire, calculé à base des particules présentes dans les échantillons journaliers (moyenne de mesure sur 24 heures). Chaque particule analysée par la méthode SEM présente la composition de 14 éléments ou atomes (Na, Mg, Al, Si, P, S, Cl, K, Ca, Ti, Mn, Fe et Zn).

3. Résultats

3.1. Site 1

22 échantillons provenant du site 1 ont été examinés et 1074 particules ont été analysées par la méthode SEM. Le résumé de la composition élémentaire des particules, ainsi que la composition suivant les directions du vent les plus fréquentes, sont présentés dans le tableau 1.

Tableau 1 site 1. Résumé des mesures SEM

Direction du vent Propriétés des particules	% Élémentaire													
	Na	Mg	Al	Si	P	S	Cl	K	Ca	Ti	Mn	Fe	Ni	Zn
Toutes les directions (1074')														
Moyenne	6.0	4.9	4.1	9.7	0.2	1.7	4.7	0.9	15.7	0.3	0.7	18.7	0.1	0.4
Ecart Type	12.4	7.6	6.4	11.3	0.7	3.7	9.7	1.6	18.7	2.0	2.0	27.0	1.1	2.7
Max	69.2	57.0	52.0	47.0	12.5	42.5	56.4	13.7	78.1	49.2	29.1	78.0	23.3	65.1
Min	0.0	0.0	0.0	0.02	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Nord (50')														
Moyenne	4.4	3.1	4.1	9.0	0.1	0.8	0.6	0.2	7.3	0.2	0.6	37.5	0.6	0.2
Ecart Type	3.1	5.3	7.3	11.8	0.2	1.2	1.3	0.4	15.6	0.4	1.2	30.0	3.3	0.3
Max	10.4	25.8	34.6	37.7	1.0	5.2	7.3	2.2	72.8	2.3	8.5	78.0	23.3	1.9
Min	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0
Sud Est (476')														
Moyenne	5.2	4.8	4.0	9.7	0.3	1.5	5.4	0.8	16.2	0.3	0.6	18.8	0.0	0.4
Ecart Type	10.5	6.9	5.8	10.9	0.8	3.6	9.8	1.7	18.5	1.9	1.4	27.2	0.0	2.0
Max	63.4	50.6	51.1	46.5	9.4	42.5	47.9	13.7	67.4	37.4	12.7	77.4	0.0	30.1
Min	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Sud Ouest (297')														
Moyenne	7.7	5.1	4.0	9.6	0.2	0.7	6.2	0.6	13.8	0.3	0.7	18.5	0.0	0.6
Ecart Type	14.2	8.6	7.7	12.7	0.5	1.7	12.5	1.2	18.6	3.0	2.1	27.4	0.0	4.4
Max	69.2	57.0	52.0	46.4	5.3	20.0	56.4	9.6	69.5	49.2	18.7	77.3	0.0	65.1
Min	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Ouest (251')														
Moyenne	5.9	5.2	4.6	9.9	0.2	3.4	2.3	1.4	18.4	0.2	0.8	15.0	0.2	0.2
Ecart Type	14.4	7.7	5.7	10.2	0.8	5.2	4.5	2.0	19.4	0.7	2.8	23.8	1.7	0.7
Max	68.5	46.8	46.7	47.0	12.5	33.2	47.5	12.2	78.1	7.3	29.1	76.6	19.6	10.4
Min	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0

Les compositions moyennes montrent que les principales composantes des particules en suspension sont le silicium, le calcium, et le fer. Le sodium, le magnésium, l'aluminium, le soufre et le chlore sont également présents mais au-dessus de 6%. Les valeurs élevées des écarts type, et l'étendu entre les minimums et les maximums, montrent une grande variabilité de compositions des particules dans les échantillons. Ainsi il y a quelques éléments (Zn, Ti) qui contribuent peu à la composition moyenne, mais il est clair à partir des valeurs maxima qu'ils sont les principaux éléments dans quelques unes des particules.

Sur la base de l'information analytique, les composants principaux, probablement à l'origine de la poussière, peuvent être suggérés : plusieurs particules contenant le fer correspondent à l'oxyde de fer. Le calcium est associé au soufre, et est susceptible d'être le CaSO_4 , mais vu que sa majeure partie semble être indépendante des autres éléments analysés, il est probablement du CaCO_3 . Le carbonate est la forme la plus probable de calcium dans la poussière. L'alumine et la silice sont corrélées ; elles sont susceptibles d'être présentes comme aluminosilicate ($\text{AlO}_3 \cdot \text{SiO}_2$).

Le magnésium n'est pas sensiblement corrélé avec d'autres éléments et ainsi sa majeure partie est susceptible d'être présente comme carbonate (MgCO). Le fait que le calcium et le magnésium ne sont pas corrélés avec l'aluminium et le silicium suggère que les scories sidérurgiques ne présentent pas une composante substantielle de la poussière (Panis et al. 1976).

Les résultats de cette interprétation sont montrés dans le tableau 2. Ceci prouve que dans plus de 80% des particules les espèces dominantes étaient l'un de cinq composés suivants : NaCl, $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$, FeO, $\text{CaCO}_3/\text{CaSO}_4$ et MgCO .

Tableau 2 Site 1 : Composants principaux des particules simples

Composants possibles	Pourcentage de toutes les particules (contenant plus de 60% de la composante)				
	Direction du vent				
	All	N	SE	SW	W
	%	%	%	%	%
NaCl	5.2	0	5.5	9.1	1.2
$\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$	19.0	24	18.6	20.6	16.9
FeO	21.7	52.0	22.6	21.3	15.3
Ca CO_3 & CaSO_4	27.7	10.0	30.2	24.0	31.7
MgCO_3	7.4	6.0	7.4	9.8	8.0
Total e %	80.9	92.0	84.2	84.8	73.1
Nombre des particules analysées	1074	50	474	297	251

Le chlorure de sodium est associé au vent du sud et au vent de l'est. Ce composant est moins commune au vent du nord et d'ouest. Il est probable qu'une partie du chlorure de sodium soit d'origine marine, mais la contribution de cette source est susceptible d'être basse, parce que l'emplacement de la mer est à plus de 80km à l'est, et plus de 120 kilomètres à l'ouest. Une source probable d'une partie de chlorure de sodium est le sel employé pour dégivrer les routes. Il n'y a aucune émission spécifique du chlorure de sodium de l'usine sidérurgique du site mais la plupart des routes du site étudié sont au sud du point de prélèvement, et au delà des frontières de l'usine il y a un grand secteur urbain au sud et à l'ouest.

L'aluminosilicate est un composant significatif pour toutes les directions de vent, et on suggère que son origine pourrait être la combustion du charbon. L'usine sidérurgique ne dispose pas d'un four (Cokerie), ainsi on suggère que les sources principales d'aluminosilicate soient extérieures à l'usine sidérurgique, et susceptible d'être l'utilisation industrielle et domestique du charbon. L'alumine et le silice montrent une certaine corrélation avec le potassium, qui est également un composant significatif de cendre de charbon.

Le fer est présent comme proportion élevée dans tous les échantillons, excepté ceux quand le vent souffle de l'ouest. Il n'y a aucune émission significative d'usine sidérurgique à l'ouest, et ainsi on assume que le niveau bas de la direction occidentale représente des niveaux de fond pour le fer. Juste au nord de l'emplacement de prélèvement il y a un laminoir, et ceci est présumé pour être la source des niveaux très élevés du fer dans les échantillons prélevés quand le vent souffle du nord. L'usine sidérurgique de four à arc électrique est au sud-est du point de prélèvement, et on assume que ceci est la source des niveaux élevés dans plusieurs des échantillons prélevés quand le vent souffle dans les directions sud et est (Van Craen et al. 1983, Boudonnet, 1994).

Le calcium est présent dans les échantillons représentant toutes les directions du vent. Le niveau le plus bas se trouve quand le vent souffle du nord. Ceci est conforme au fait que ce secteur du site n'emploie pas des composés de calcium. Les niveaux élevés au sud-est sont conformes à du calcium manipulé et utilisé dans le processus sidérurgique au sud, et également à la manipulation des scories à l'est. Il est peu probable que les niveaux élevés trouvés quand le vent souffle de l'ouest de l'usine sidérurgique, puisque cette usine ne manipule pas des composés de calcium dans ce secteur. On confirme donc que la source de calcium est extérieure à l'usine sidérurgique, et la source la plus probable est la fabrication des réfractaires, situé approximativement à 1 kilomètre sud-ouest du point de prélèvement.

Tableau 3 Site 1. Origine des particules

Composante	Origines possibles	Contribution des particules %		
		Globale	Fond	Sidérurgie
NaCl	La mer Sel de dégivrage	0 - 9	0 - 1	4 - 9
Al ₂ O ₃ .SiO ₂	Géologique, Combustion de charbon	17 - 24	17 - 24	0
FeO	Laminoir, Four à arc électrique	15 - 52	15	7 - 37
Ca CO ₃ & CaSO ₄	Géologique, Acierie Production des réfractaires	10 - 32	10 - 32	0 - 22
MgCO ₃	Géologique, Production des réfractaires	6 - 10	6	1 - 4

Le magnésium, quant à lui, est présent dans les échantillons de toutes les directions du vent. Le niveau le plus bas se présente quand le vent souffle du nord, et on assume que ceci représente le niveau de fond. Il est peu probable que les niveaux les plus élevés au sud et à l'ouest sont en provenance de l'usine sidérurgique, puisqu'il n'y a aucune émission évidente des composés de magnésium dans ce secteur. Il se pourrait cependant qu'il soit en provenance de la fabrication des réfractaires située approximativement à 1 kilomètre sud-ouest du point de prélèvement.

Les résultats SEM du site 1 permettent ainsi d'identifier l'origine des constituants principaux des substances particulaires. Ceux-ci sont récapitulés dans le tableau 3.

3.2. Site 2

33 échantillons en provenance du site 2 ont été examinés. 1590 particules ont été analysées par la méthode SEM. La composition moyenne montre que les composantes principales des particules en suspension sont le sodium, silicium, calcium et le fer. Le magnésium, l'aluminium, le soufre, le potassium, le chlore, le zinc et l'étain sont également présents avec des concentrations inférieures à 1%. Les valeurs élevées des écarts-type et l'étendu entre les minimums et les maximums, montrent l'éventail de la composition des particules dans les échantillons. Ainsi il y a quelques éléments (Zn, Pb), qui contribuent peu à la composition moyenne, mais il est clair que les valeurs maximums mesurées montrent qu'ils représentent les éléments principaux dans peu de particules.

De manière similaire, et dans le but de déterminer l'origine des particules, une analyse plus fine des résultats de la composition des particules a été élaborée. Cette analyse se base sur la discrimination suivant la direction du vent. Elle permet d'estimer l'impact des principaux composés, suivant la direction du vent, au niveau de la composition des éléments simples (tableau 4).

Tableau 4 Site 2: Composants principaux des particules simples

Composantes possibles	Pourcentage de toutes les particules (contenant plus de 60% de la composante)				
	Direction du vent				
	Toutes	N	E	S	W
NaCl	5.1	2.0	3.1	4.5	7.0
Al ₂ O ₃ .SiO ₂	19.6	35.7	37.2	14.6	10.3
FeO	12.4	6.1	7.8	25.8	7.5
CaSO ₄ &CaCO ₃	26.7	31.6	22.4	23.7	30.3
MgCO ₃	5.0	1.0	3.9	4.5	6.6
Total e %	68.7	76.5	74.5	73.0	61.5
Nombre des particules analysées	1579	98	384	426	671

A partir de cette estimation de la composition possible des particules suivant la direction du vent on établit moyennant la position des principaux émetteurs par rapport aux points de mesures, une évaluation de la contribution des origines possibles de ces éléments au niveau de pollution (tableau 5).

Tableau 5 Site 2: Origine des particules

Composante	Origines possibles	Contribution des particules %		
		Globale	Fond	Sidérurgie
NaCl	La mer Sel de dégivrage	2 - 7	2 - 3	0 - 5
Al ₂ O ₃ .SiO ₂	Géologique, Combustion de charbon	10 - 36	10 - 36	0
FeO	Laminoir, Four à arc électrique Autres industries	6 - 26	6 - 8	0 - 20
Ca CO ₃ & CaSO ₄	Géologique, Acierie	22 - 32	22 - 32	0 - 8
MgCO ₃	Géologique, Production des réfractaires	1 - 7	1 - 4	0 - 6

On conclut que les diverses émissions de l'usine sidérurgique ont contribué de manière significative aux substances particulaires qui ont été rassemblées.

4. Conclusion

Les données des deux points de prélèvement montrent des dispositifs semblables. Il y a une quantité significative de chlorure de sodium dont on assume que les deux origines principales sont la mer et le sel de dégivrage. La plus grande contribution aux substances particulaires des émissions d'usine sidérurgique se présente au niveau du fer. Pour des échantillons prélevés du site 1, la contribution en fer de l'usine sidérurgique aux substances particulaires s'est étendue jusqu'à 37 %, et pour le site 2 elle s'est étendue jusqu'à 20%. Dans les deux cas le fer est corrélé avec des émissions des laminoirs. Une contribution séparée de la poussière contenant du fer, mais également contenant du plomb et du zinc, correspond aux émissions de la poussière de gaz d'échappement du four à arc électrique. L'alumine et la silice sont corrélées avec le fond, mais pas à l'aciérie. Les composés de calcium ou de magnésium montrent une certaine corrélation avec des émissions de l'usine sidérurgique ou de la fabrication des réfractaires, mais ces composés sont également présents dans les substances particulaires de fond non liées à ces sources.

Références

- Boudonnet J.Y., 1994. Les laitiers d'aciérie LD. La caractérisation chimique : une étape indispensable. Panorama des connaissances. Laitiers sidérurgiques CTPL n°76, pp 27-43.
- Conner TL., Norris GA., Landis MS., Williams RW., 2001. Individual Particle Analysis of Indoor, Outdoor and Community Samples from the 1998 Baltimore Particulate Matter Study. Atmospheric Environment, 35: 3935-3946
- EU, 1999. Council Directive 1999/30/EC of 22 April 1999 relating to limit values for sulphur dioxide, nitrogen dioxide and oxides of nitrogen, particulate matter and lead in ambient air. Official Journal of the European Communities, L163, p.41.
- EU, 1996. Air Quality Framework Directive. Council Directive 96/62/EC of 27 September 1996 on ambient air quality assessment and management. Official Journal of the European Communities L 296, P. 0055 - 0063
- Johnson D. Hunt A., 1995. Analysis of lead in urban soils by computer assisted SEM/EDX ⁺ method development and early results. In: Beard, M., Iske, S.A. (Eds.), Lead in Paint, Soil and Dust: Health Riskds, Exposure Studies, Control Measures, Measurement Methods, and Quality Assurance,; Special Technical Publication 1226, American Society for Testing and Materials, Philadelphia, PA, pp. 283-299.
- Johnson DL., McIntyre BL., Stevens RK., Fortmann RC., Hanna RB., 1981. A chemical element comparison of individual particle analysis and bulk chemical methods. Scanning Electron Microscopy 1, 469-476.
- Lee RJ., Kelly JF., 1980. Applications of SEM-based automated image analysis In: Wittry, D.B. (Ed.), Microbeam Analysis, San Francisco Press, San Francisco, CA.
- MARICOPA, 1999. The 1999 Brown Cloud Project For The Association Of Governments Area. Portions of the Technical Analysis Were Prepared By: Sonoma Technology, Inc.
- Panis A., mai-juin 1976. Les scories LD, Bulletin de liaison des laboratoires des Ponts et Chaussées, n°83, pp.99-104
- Van Craen J., Denoyer EA., Natusch FS., Adams F., 1983. Surface Enrichment of Trace Elements in Electric Steel Furnace Dust', Environ. Sci. Technol., 17, p435.

ANALYSE PAR OUTILS MOLECULAIRES DE LA BIODIVERSITE MICROBIENNE DES AEROSOLS GENERES PENDANT LE COMPOSTAGE

V. Bru(1), N. Wery*(1), P. Boiron (2), D. Mouni e (2), J.-P. Delgen s(1), J.-J. Godon(1)

(1) Laboratoire de Biotechnologie de l'Environnement, INRA, Avenue des Etangs, 11100 Narbonne.
*weryn@ensam.inra.fr

(2) Universit  de Lyon, Lyon, F-69003, France; Universit  Lyon1, Lyon, F-69003, France; CNRS, UMR5557, Ecologie Microbienne, Villeurbanne, F-69622, France; ISPB, Lyon, F-69373, France ; IFR 41, Lyon, Villeurbanne, F-69622, France.

TITLE

Use of molecular tools to study microorganisms in aerosols produced during composting

ABSTRACT

During treatment of waste such as wastewater, manure or industrial waste, aerosols are produced which contain a microbial diversity yet to be fully explored, both qualitatively and quantitatively. Very little data is available on the effect of these aerosols on workers or on people living close to the treatment plants. This paper outlines the analysis of the microbial diversity of aerosols produced in a sludge composting plant, by using culture techniques and molecular techniques. The results show (i) the difficulties of perfecting a sampling method which enables us to analyse one sample both by culture and by PCR (ii) the very high bacterial and eucaryotic diversity in aerosols produced during composting (iii) the high concentration of *Aspergillus* spp (iv) the very low percentage of cultivability for bacteria in aerosols.

RESUME

Les traitements de d chets tels que les eaux r siduaires urbaines, les effluents d' levage ou les effluents industriels g n rent des a rosols contenant des micro-organismes pouvant pr senter un risque sanitaire, mais dont la diversit  microbienne est cependant peu connue, tant qualitativement que quantitativement. Dans cette  tude, la microflore d'a rosols pr lev s sur une plateforme de compostage a  t  analys e   la fois par des techniques culturelles classiques et par des outils mol culaires. Les principaux r sultats sont : (i) la difficult  de proc der   un  chantillonnage commun pour les approches mol culaires et culture ; (ii) la tr s grande diversit  des  chantillons tant pour les bact ries que pour les eucaryotes (champignons) ; (iii) la pr sence de phylotypes d j   identifi s par des approches similaires sur des  chantillons de compost ; (iv) la forte concentration en *Aspergillus* ; (v) la faible fraction cultivable des bact ries (1%). Enfin, la forte repr sentation d'ADNr 16S isol s de diff rents  cosyst mes permet de faire l'hypoth se de bact ries diss min es par l'air et issues d'environnements vari s.

INTRODUCTION

Les flux de micro-organismes dans l'air extérieur constituent une voie de colonisation importante et, pour les micro-organismes pathogènes de l'homme, des animaux et des plantes, un des principaux vecteurs de dissémination. Malgré leurs fortes implications, la diversité génétique, le potentiel de dissémination et l'écologie des micro-organismes de l'air ont été peu étudiés (Maron et al., 2005). De nombreux procédés de traitement des déchets génèrent des bioaérosols. Ainsi, le compostage des boues d'épuration issues du traitement des eaux résiduaires urbaines produit des bioaérosols qui peuvent présenter des risques par inhalation (Deloraine, 2002). Une meilleure connaissance des bioaérosols générés sur les plateformes de compostage est nécessaire afin d'évaluer les risques d'exposition des populations, et les facteurs de dissémination des bioaérosols générés par l'usine (Herr et al., 2003). Ceci est d'autant plus d'actualité que le compostage des déchets organiques est une filière en essor, avec 680 sites de compostage en France en 2004 (source : ADEME).

Le compostage est un processus dynamique de dégradation de la matière organique réalisée par une communauté microbienne complexe. Les activités métaboliques des micro-organismes modifient la structure physico-chimique du compost, ce qui en conséquence produit des changements au sein des communautés microbiennes. Les microorganismes présents dans les aérosols générés au cours du procédé ont été peu étudiés dans leur globalité, les études portant sur une partie de cette microflore représentée par les actinomycètes, *Aspergillus fumigatus* ou d'autres composés pouvant avoir un impact sanitaire (mycotoxines) (Fischer et al., 1999 ; Sanchez-Monedero et al., 2005). A notre connaissance, aucune étude approfondie de la diversité microbienne des aérosols de compostage n'a été publiée, malgré les impacts sanitaires reconnus sur les travailleurs, et les questionnements encore d'actualité sur l'exposition des populations riveraines des plateformes de compostage.

Cependant, il n'existe pas de mesure d'un bruit de fond microbiologique « naturel » qui puisse servir de base à la mesure d'un changement lié à une nouvelle activité telle que le compostage. L'absence de données résulte notamment des problèmes techniques liés aux difficultés d'observation et de description de la microflore de l'air. Un grand nombre de micro-organismes de l'air sont en effet incultivables par les techniques de microbiologie classique, du fait des stress environnementaux qu'ils subissent. Cependant, les techniques moléculaires permettent aujourd'hui l'observation et la description de cette microflore.

Dans cette étude, une approche regroupant différentes techniques a été choisie, afin d'appréhender à la fois les aspects quantitatifs et qualitatifs de la diversité microbienne (bactérienne et fongique) des aérosols générés pendant le compostage. Des dénombrements de microorganismes ont été réalisés par culture et par microscopie à épifluorescence. L'analyse des espèces microbiennes présentes a été réalisée par culture et par inventaire moléculaire, ainsi que par l'utilisation d'une technique d'empreinte moléculaire, la SSCP (Single Strand Conformation Polymorphism). Il est maintenant reconnu que les approches par culture ne permettent d'étudier qu'une faible fraction de la flore microbienne (Amann et al., 1995 ; Peccia & Hernandez, 2006). L'utilisation des outils moléculaires nous a permis d'obtenir une vision des bioaérosols de compostage plus complète et moins biaisée que celle donnée par les techniques de culture.

MATERIEL ET METHODES

1. Prélèvements

Les prélèvements sont réalisés par filtration sur une plateforme de compostage ouverte sur trois jours consécutifs. Pour les analyses DAPI, une pompe CIP 10, à un débit de 10L/min, est utilisée pendant 30 min. Les prélèvements pour les analyses moléculaires et culturales sont effectués par des pompes Gilair à un débit de 2,5 L/min. Les temps de prélèvements sont de 30 min pour la culture et de 190 à 300 min pour les analyses moléculaires.

2. Dénombrement au DAPI

Environ 300 litres d'air sont filtrés à travers un filtre de porosité 0.2µm en polycarbonate noir. Deux mL d'eau physiologique contenant du formaldéhyde à 10% sont ajoutés après filtration afin de conserver

l'intégrité de l'échantillon lors du transport. Le filtre est ensuite placé sur un système de filtration millipore. 100µL de DAPI (diamidino-4,6-phénylindol-2 dichlorhydrate), un fluorochrome se fixant aux bases A et T des chromosomes, sont ajoutés au système. Le temps d'incubation est de 15 min à température ambiante et dans le noir. Le filtre est ensuite observé grâce à un microscope à épifluorescence et les cellules sont dénombrées.

3. Analyses par culture

Les filtres ont été mis en suspension et agités dans 1 mL d'eau physiologique stérile. Des dilutions du surnageant ont été réalisées etensemencées sur les différents milieux de culture choisis.

Pour le dénombrement des champignons, 100 µL de chaque dilution ont été étalés en double sur gélose à l'extrait de malt à 2 % additionnée de chloramphénicol (0,5 g/L) et les boîtes de Petri ont été mises à incuber à 30 °C. Pour le dénombrement des bactéries totales, 100 µL de chaque dilution ont été étalés en double sur gélose PCA (Plate Count Agar) et les boîtes de Petri ont été mises à incuber à 37 °C. Pour le dénombrement des actinomycètes thermophiles, 100 µL de chaque dilution ont été étalés en double sur gélose de Bennett et les boîtes de Petri ont été mises à incuber à 45 °C. Les colonies bactériennes et fongiques ont été dénombrées après 2 et 5 jours d'incubation.

Les colonies fongiques et d'actinomycètes thermophiles ont été regroupées selon leur aspect morphologique macro et microscopique. Une colonie de chacun des groupes majoritaires a été identifiée par examen microscopique et / ou PCR – séquençage des régions ITS 1 – ITS 4 (White et al., 1990) pour la détermination des champignons ; par PCR de l'ARNr 16 S pour la détermination des *Streptomyces* spp. (Rodriguez Nava et al., 2001) et pour les actinomycètes thermophiles (amorces 91 E et 16S2).

4. Analyses moléculaires

Extraction d'ADN

Le filtre maintenu congelé est broyé à l'aide d'un « mini-potter ». On ajoute 375 µL de guanidine thiocyanate 4M et 125µL de L-Lauryl sarcosine à 10%. L'échantillon de bioaérosol est ainsi placé à -20°C et peut être conservé plusieurs mois. Le protocole détaillé de l'extraction et de la purification de l'ADN total est donné par Godon et al. (1997).

Analyse SSCP (Single Strand Conformation Polymorphism)

Cette technique est fondée sur la structure secondaire propre qu'adopte un fragment d'ADN simple brin, en conditions non dénaturantes, en fonction de sa séquence nucléotidique. Ainsi des fragments d'ADN de séquence nucléotidique différant même d'une seule base adopteront une conformation unique qui permettra de les séparer par électrophorèse grâce à leur différence de mobilité.

A partir de l'ADN total de l'échantillon à analyser, une région variable de l'ADNr 16S ou 18S est amplifiée par PCR (Polymerase Chain Reaction) avec un couple d'amorces spécifiques des bactéries ou des eucaryotes, dont une est marquée par un fluorophore. Le produit d'amplification est dénaturé à chaud pour séparer les brins puis est analysé par électrophorèse capillaire. Les brins fluorescents sont détectés par un système laser en fin d'électrophorèse. Dans le profil de pics obtenu, chaque pic correspond à une espèce bactérienne et la hauteur des pics est proportionnelle à la représentativité de cette espèce dans l'écosystème étudié. Un standard de taille interne permet par la suite d'aligner et de comparer les différents profils entre eux à l'aide d'un logiciel. Les profils SSCP révèlent la diversité. Chaque pic correspond à un ADNr 16S ou 18S, soit une espèce moléculaire, et la hauteur des pics donne une vision semi-quantitative du ratio entre les différentes espèces.

Inventaires moléculaires

Après clonage, une séquence partielle d'environ 500 pb de la molécule ARNr 16S ou d'ARNr 18S a été déterminée pour chaque clone. Chaque séquence a été comparée avec les autres séquences produites et avec les séquences d'ARNr 16S ou d'ADNr 18S disponibles dans les bases de données Genbank en utilisant le programme de recherche de similarité Blast.

RESULTATS ET DISCUSSION

1. Dénombrement de la flore totale

Les concentrations obtenues sont proches pour les prélèvements du 01 et 02/12. Par contre les valeurs sont plus élevées pour le 30/11. Ceci est observable à la fois pour les concentrations cellulaires déterminées par microscopie et pour les concentrations en bactéries cultivables (Tableau 1). Ce résultat montre que les concentrations varient d'un jour sur l'autre, probablement du fait des activités de la plateforme au moment du prélèvement ou de conditions météorologiques différentes, pouvant affecter la survie microbienne dans les aérosols générés.

Tableau 1 : Dénombrement de la flore totale

Echantillons	Concentration cellulaire (nombre de cellules/m ³)	Concentration en bactéries cultivables (UFC/m ³)
30/11/04	1.17 10 ⁶	3 10 ⁴ 1.3 10 ⁴
01/12/04	1.06 10 ⁵	7.7 10 ² 5.2 10 ²
02/12/04	1.02 10 ⁵	6.4 10 ² 2.3 10 ³

Les concentrations en bactéries cultivables sont largement inférieures à celles en cellules totales déterminées par microscopie. Le pourcentage de bactéries cultivables par rapport aux cellules totales varie entre 0.5 et 2.5%. Ces valeurs sont proches de celles obtenues pour d'autres environnements 'air' (Peccia & Hernandez, 2006). Les concentrations cellulaires obtenues par microscopie à épifluorescence après marquage au DAPI sont par ailleurs dans l'ordre de grandeur des valeurs citées dans d'autres environnements 'air' : 10⁵ à 10⁶ cellules/m³.

2. Analyse par inventaires moléculaires de la diversité microbienne d'un aérosol généré pendant le compostage

A partir de 171 séquences d'ADNr 16S, 85 phylotypes bactériens ont été identifiés. Les principales informations de cet inventaire moléculaire sont (i) la très grande diversité, (ii) la forte représentation des *Actinobacteria* (15% des phylotypes et 28% des séquences) et des *Thermoactinomyces* (12% des phylotypes et 17% des séquences) (Tableau 2).

La comparaison des phylotypes avec les bases de données montre que 27 (32%) d'entre eux ont déjà été retrouvés dans des échantillons de compost, 2 dans des environnements 'air' et 40 (47%) dans plusieurs environnements. Cette représentation importante d'ADNr 16S 'voyageur' permet de faire l'hypothèse de bactéries disséminées par l'air dans des environnements variables.

Tableau 2 : Fréquence relative des différents phyla selon les séquences et les phylotypes

Phylum	Phylotypes*		Séquences	
	Nombre	%	Nombre	%
Actinobacteria	13	15%	48	28%
Bacteroidetes	9	11%	10	6%
Chloroflexi	3	4%	3	2%
Cyanobacteria	2	2%	3	2%
Firmicutes	43	51%	78	46%
(<i>Thermoactinomyces</i> sp.)	(10)	(12%)	(29)	(17%)
γ -proteobacteria	3	4%	5	3%
α -proteobacteria	8	9%	17	10%
β -proteobacteria	4	5%	7	4%
Total	85	100%	171	100%

*Chaque phylotype regroupe un nombre variable de séquences identiques ou très proches, c'est à dire avec un pourcentage de similarité supérieur à 97%.

En terme de phylotype, la dominance est représentée par 4 phylotypes qui représentent 51 séquences (30%). Trois d'entre eux sont des thermophiles donc probablement issus du compostage et non des déchets. 22 phylotypes ont moins de 95% de similarité avec des phylotypes déjà identifiés ou des bactéries déjà isolées. Il s'agit d'« espèces » encore jamais décrites. 2 phylotypes ont un pourcentage de similarité inférieur à 90%. Il s'agit de « genres » encore jamais décrits.

Concernant les eucaryotes, 42 phylotypes ont été identifiés à partir de 82 séquences d'ADNr 18S : 39 sont des champignons, avec pour moitié des basidiomycètes puis des ascomycètes (19% des séquences). Contrairement aux bactéries, la comparaison avec les bases de données donne une information valide sur l'identification mais peu ou pas sur le milieu d'origine (très peu d'inventaires moléculaires sont réalisés par les spécialistes des champignons). Ces observations confirment que pour le domaine 'champignon', le plus que peuvent apporter les approches moléculaires n'est pas sur la cultivabilité mais sur les difficultés d'identification des champignons cultivés. Les points les plus marquants sont la présence significative d'*Aspergillus sp.* (8%) et d'oomycètes pathogène (11%).

3. Diversité microbienne d'un aérosol généré pendant le compostage évaluée par culture

Les actinomycètes thermophiles ont été dénombrés par culture. Leur pourcentage par rapport à l'ensemble des flores cultivables est important, et peut atteindre 80% (Tableau 3). Les actinomycètes thermophiles sont un sous-groupe des actinobactéries. Le pourcentage des actinobactéries sur l'ensemble des bactéries obtenu par les techniques moléculaire est plus faible : 28%, ce qui montre que l'importance des actinomycètes est biaisée dans l'approche par culture, du fait de la faible fraction bactérienne cultivable. Les deux techniques d'analyse de la diversité microbienne (culture et moléculaire) ne sont pas réellement comparables. Ce sont deux visions différentes de la flore microbienne.

Tableau 3 : Dénombrement par culture des actinomycètes thermophiles

	30.11.04		01.12.04		02.12.04	
Actinomycètes thermophiles (UFC/m ³)	1,5.10 ⁴	0,6.10 ⁴	640	380	< 250	520
Actinomycètes/bactéries (%)	50%	50%	83%	75%	>40%	22%

Concernant les eucaryotes, les résultats culture/moléculaire ne peuvent être comparés à un niveau quantitatif. Au niveau qualitatif, les différences sont importantes. L'approche moléculaire met en évidence une très grande diversité (39 phylotypes différents), alors que l'approche par culture montre une diversité fongique réduite (2 à 3 espèces de champignons par échantillon) (Tableau 4). Par contre, 4 des 5 espèces identifiées par culture sont retrouvées par techniques moléculaires, ce qui confirme d'une part l'identification et d'autre part la présence non minoritaire de ces champignons. Enfin, *Aspergillus* est dominant à la fois par les techniques culturales et les techniques moléculaires (8% pour *Aspergillus sp.* et 6% pour *Aspergillus fumigatus*).

Tableau 4 : Dénombrement et diversité des champignons, analysés par culture

Date	Champignons (UFC/m ³)	Identification	Pourcentage
30.11.04	2 10 ³	<i>Aspergillus fumigatus</i> 4/15	27%
		<i>Doratomyces sp.</i> 11/15	73%
	1.7 10 ³	<i>Aspergillus fumigatus</i> 4/13	31%
		<i>Doratomyces sp.</i> 9/13	69%
01.12.04	5.2 10 ²	<i>Aspergillus fumigatus</i> 1/4	25%
		<i>Coprinus sp.</i> 1/4	25%
		<i>Athelia bombacina</i> 1/4	25%
		1 PCR -	25%
	7.8 10 ²	<i>Coprinus sp.</i> 2/6	33%
		<i>Athelia bombacina</i> 3/6	50%
		<i>Stereum sp.</i> 1/6	17%
02.12.04	< 2,6 10 ²	<i>Aspergillus fumigatus</i> 1/1	100%
		<i>Aspergillus fumigatus</i> 1/1	100%

4. Analyse de la diversité microbienne des aérosols par SSCP

Les profils SSCP donnent une image de la microflore bactérienne ou eucaryote, en fonction des amorces de PCR choisies. Les profils obtenus les 30/11/04 et 01/12/04 montrent une similarité importante des flores bactériennes et eucaryotes. Ces similarités valident la reproductibilité de la méthode et de l'échantillonnage. Elle montre aussi la stabilité des flores sur un intervalle de temps court (1jour). Les profils montrent une grande diversité avec quelques fortes dominances aussi bien pour les eucaryotes que pour les bactéries.

CONCLUSION

La description de la diversité bactérienne au sein d'aérosols produit pendant le compostage met en évidence une grande diversité, au sein de laquelle dominent les phylotypes appartenant au phylum *Actinobacteria* et au genre *Thermoactinomyces* du phylum des *Firmicutes*. Le pourcentage de cultivabilité des bactéries dans ces aérosols est faible (environ 1%), et parmi les 99% restants, près d'un quart des phylotypes n'ont encore jamais été identifiés. La description des eucaryotes, composés essentiellement de champignons, met aussi en évidence une grande diversité où dominent *Aspergillus* sp. et certains basidiomycètes et oomycètes pathogènes (11%).

Plusieurs questions levées lors de cette étude doivent être approfondies : la variabilité des émissions de bioaérosols dans le temps, liée ou non aux phases du procédé de compostage ; la diversité ou les similarités entre différents composts, notamment au niveau des microorganismes dominants.

REMERCIEMENTS

Cette étude a été financée en partie par l'ADEME (Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie) (contrat n° 0375C0032). Nous remercions l'IHIE pour avoir réalisé l'ensemble des prélèvements.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Amann, R., Ludwig, W. & Schleifer, K.H. (1995). Phylogenetic identification and in situ detection of individual microbial cells without cultivation. *Microbiological Review*, 59, 143-169.
- Deloraine, A. (2002). Etude bibliographique sur l'évaluation des risques liés aux bioaérosols générés par le compostage des déchets. *CAREPS*: 13 pp.
- Fischer, G., Muller, T., Ostrowski, R. & Dott, W. (1999). Mycotoxins of *Aspergillus fumigatus* in pure culture and in native bioaerosols from compost facilities. *Chemosphere*, 38, 1745-1755.
- Godon, J.J., Zumstein, E., Dabert, P., Habouzit, F. & Moletta, R. (1997). Molecular microbial diversity of an anaerobic digester as determined by small-subunit rDNA sequence analysis. *Applied and Environmental Microbiology*, 63, 282-2813.
- Herr, C. E. W., zur Nieden, A., Jankofsky, M., Stilianakis, N. I., Boedeker, R. H. & Eikmann, T. F. (2003). Effects of bioaerosol polluted outdoor air on airways of residents: a cross sectional study. *Occupational Environmental Medicine*, 60, 336-342.
- Maron, P.-A., Lejon, D.P.H., Carvahlo, E., Bizet, K., Lemanceau, P., Ranjard, L. & Mougel, C. (2005). Assessing genetic structure and diversity of airborne bacterial communities by DNA fingerprinting and 16S rDNA clone library. *Atmospheric Environment*, 39, 3687-3695
- Peccia, J. & Hernandez, M. (2006). Incorporating polymerase chain reaction-based identification, population characterization, and quantification of microorganisms into aerosol science: A review. *Atmospheric Environment*, 40, 3941-3961.
- Rodriguez Nava, V., Couble, A., Casoli, E., Bugnard, V., Laurent, F., Sandoval, H. & Boiron, P. (2001). Identification of clinical isolates of *Streptomyces* species using the polymerase chain reaction. *Journal de Mycologie Médicale*, 11, 131-134
- Sanchez-Monedero, M. A., Stentiford, E.I. & Urpilainen, S.T (2005). Bioaerosol generation at large-scale green waste composting plants. *Journal of Air Waste & Management Association*, 55, 612-618.
- White, T.J., Bruns, T., Lee, S. & Taylor, J. (1990). Amplification and direct sequencing of fungal ribosomal RNA genes for phylogenetics. *PCR protocols : a guide to methods and application*. Academic Press, 315-322.

CARACTERISATION DE LA DIVERSITE MICROBIENNE AEROPORTEE DES BIOGAZ

Marina Moletta-Denat * (1), Jean-Jacques Godon (2), Jean-Philippe Delgenès (2)

(1) Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs, Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, 77421 Champs sur Marne. (2) Laboratoire de Biotechnologie de l'Environnement, INRA, 11100 Narbonne.

TITLE

Characterization of biogas-borne microbial diversity

ABSTRACT

In the current context of the increase of waste production, anaerobic digestion and the valorization of biogas thus produced, appears as solutions for waste treatment in future. Among the modes of valorizations of biogas, the injection in the natural gas network constitute an interesting solution. The work presented here consisted is a description using the molecular tools of the microflora transported by biogases in quantitative and qualitative ways. The results showed that, in spite of a constant quantity of micro-organisms in biogases, the airborne microflora of biogases is not a copy of the source microbial community, the anaerobic digester, and it qualitatively differs from one biogas to another. These disparities seem related to behaviors of differential aerosolisation. Thus, the strictly aerobic species, the opportunistic and colonising micro-organisms seem to be preferentially aerosolized by biogas whereas the micro-organisms of the anaerobic digestion ecosystem are preferentially non-aerosolized. Moreover, there is a passive aerosolisation leading to the transport by biogas of anyone of the micro-organisms of the anaerobic digester.

RESUME

Dans le contexte actuel de l'augmentation de la production de déchets, la digestion anaérobie et la valorisation du biogaz ainsi produit, apparaissent comme des solutions d'avenir pour leur traitement. Parmi les modes de valorisations du biogaz, l'injection dans le réseau de gaz naturel est une solution intéressante. Cependant, le biogaz est de par sa production biologique une source potentielle d'aérosols microbiens. Le travail présenté ici a consisté à la description de la microflore transportée par les biogaz à l'aide des outils moléculaires, de manière quantitative et qualitative. Les résultats ont montré qu'en dépit d'une quantité constante de micro-organismes dans les biogaz, la microflore aéroportée des biogaz n'est pas une copie de la communauté microbienne de la source, le digesteur anaérobie et qu'elle diffère qualitativement d'un biogaz à l'autre. Ces disparités semblent liées à des comportements d'aérosolisation différentielle. Ainsi, les aérobies strictes, les micro-organismes opportunistes et colonisateurs semblent être préférentiellement aérosolisés alors que les micro-organismes de l'écosystème Digestion anaérobie sont préférentiellement non-aérosolisés. De plus, il existe une aérosolisation passive permettant potentiellement à tous les micro-organismes du digesteur anaérobie d'être transportés par le biogaz.

ARTICLE

« Fil d'Ariane » entre tous les écosystèmes, l'air est certainement le meilleur vecteur de dissémination pour les micro-organismes et avec 14 m^3 d'air inspiré par jour pour l'Homme, une source de contact microbien non négligeable. Un certain nombre de sources naturelles ou anthropiques ont été identifiées, dispersant des aérosols microbiens par l'air et plus largement les gaz.

Dans le contexte actuel de l'augmentation de la production de déchets, la digestion anaérobie et la valorisation du biogaz ainsi produit, apparaissent comme des solutions d'avenir pour leur traitement. La valorisation du biogaz est au centre d'un double enjeu : augmenter la part des énergies « vertes » dans la consommation énergétique et limiter l'impact du biogaz sur l'effet de serre. Parmi les modes de valorisations du biogaz, l'injection dans le réseau de gaz naturel est une solution intéressante moyennant un certain nombre d'exigences, notamment quant à sa qualité notamment lorsque les besoins locaux en chaleur et en électricité sont faibles. Cependant, alors que les caractéristiques chimiques du biogaz sont connues et que la réglementation est en cours de validation, son mode de production biologique pose la question de sa composition microbiologique. Plusieurs risques peuvent être évoqués tels que l'altération du réseau par des phénomènes de biocorrosion, des fuites dans le réseau sur les lieux de production ou d'utilisation pouvant conduire à

une exposition des personnes à ces aérosols microbiens. Dans le but de connaître la composition microbiologique du biogaz, l'ADEME et Gaz de France se sont associés dans un programme de recherche dans lequel s'inscrit cette étude. Cette étude est une approche préliminaire et n'a pas pour objectifs d'évaluer le risque microbiologique sanitaire et corrosif lié au biogaz. Le but est de faire un état des lieux qualitatifs et quantitatifs de la microflore transportée par les biogaz ; ceci permettant d'orienter de futures recherches.

Cette question a été étudiée dans ce travail à partir de 6 biogaz issus de 5 sites de productions différents. Cette étude a permis de mettre en place une stratégie d'accès à la diversité des aérosols microbiens transportés par les biogaz à l'aide des outils moléculaires, permettant de s'affranchir des biais liés à la cultivabilité des micro-organismes. Les techniques conventionnelles de culture des microorganismes, tels que les comptages sur boîte de pétri ont été largement utilisées pour étudier les bioaérosols. Les études des aérosols par culture sont importantes, notamment pour étudier les réponses intrinsèques des microorganismes dans l'air ou pour déterminer leur viabilité et leur potentiel infectieux. Néanmoins, les biais introduits par la culture pour étudier l'écologie de ces microorganismes sont bien connus. Ainsi, moins de 1% des bactéries des environnements terrestres et aquatiques sont cultivables (Amann, Ludwig et al. 1995), et ce faible pourcentage de cultivables a également été démontré pour les bioaérosols microbiens (Peccia and Hernandez 2006). Les avantages des techniques moléculaires basées sur la PCR (Polymerase Chain Reaction) sont leur sensibilité, leur rapidité, une détection et identification indépendante de toute étape de culture, et le fait que ces techniques sont génériques et peuvent être utilisées pour tout matériel biologique contenant de l'ADN (Stetzenbach, Buttner et al. 2004). Malgré leurs avantages, peu d'études moléculaires ont été réalisées sur les aérosols microbiens.

Dans cette étude, la microflore aéroportée des biogaz a été caractérisée de manière quantitative (comptage en microscopie, PCR quantitative en temps réel) et qualitative (Empreintes moléculaires et Inventaires). Sa comparaison avec la diversité microbienne de la source (le digesteur anaérobie), a fait apparaître des disparités entre les proportions des différents groupes microbiens. Ces disparités semblent liées à des comportements d'aérosolisation différents. Cette question d'écologie a été étudiée de manière plus approfondie par quantification de groupes microbiens choisis comme témoins d'aérosolisation, à l'aide de la PCR quantitative en temps réel.

I Méthodologie

Les sites de prélèvements de cette étude ont été choisis en fonction de 3 critères : le type de déchets traités, le type de procédé réalisant la digestion anaérobie et la température de fonctionnement. 5 sites de différentes localisations ont été choisis selon ces critères. Les digesteurs traitant des biodéchets en digestion anaérobie mésophile (DM1 et 2) et thermophile (DT), des lisiers (DE) et des effluents industriels (DI) ainsi qu'un centre d'enfouissement technique (LD) ont été choisis. La microflore du biogaz a été concentrée par filtration d'un volume de 2 m³ de biogaz à partir de vannes situées sur le réseau du site de production. Un échantillon du contenu de chaque digesteur a été prélevé.

La flore totale du biogaz a été observée et comptée par microscopie à épifluorescence (DAPI). Le protocole d'extraction des acides nucléiques des aérosols microbiens est donné par Moletta *et al* (2005). La totalité de l'ADNr 16S et 18S est amplifiée à l'aide des amorces universelles Bactérie, Archées et Eucaryotes sont amplifiées. L'utilisation de la PCR nichée a permis de réaliser les analyses SSCP (Single Stand Conformation Polymorphism) et les inventaires moléculaires. Un total de 495 séquences Bactérie et 177 séquences Eucaryotes ont été réalisées.

Ces résultats de description de la diversité microbienne aéroportée des biogaz ont permis de définir 5 groupes microbiens, choisis comme témoins de l'aérosolisation différentielle. Ces groupes sont Bactéries, Archées, Synergistes, *Staphylococcus* spp. et *Propionibacterium acnes*. Ils ont été quantifiés par PCRq dans le biogaz et dans sa source, le digesteur anaérobie pour les 6 biogaz et les 4 contenus de digesteur anaérobie.

II Les Résultats

II.1) La description diversité microbienne aéroportée des biogaz

La diversité microbienne transportée par les biogaz a été décrite quantitativement et qualitativement. Les résultats des comptages en microscopie à épifluorescence montrent qu'elle est caractérisée par une quantité de cellules relativement constante autour 10⁶ cellules Procaryotes/m³ et 10⁴ cellules eucaryotes/m³. Ainsi, seule une cellule Procaryote sur 10¹² cellules se retrouve transférée de la source au biogaz. Les micro-organismes sont donc aérosolisés de manière constante par le biogaz quelque soit le procédé (digesteur ou centre d'enfouissement technique) et donc quelque soit

l'agitation globale du milieu. L'analyse globale de la diversité par SSCP montre que les diversités microbiennes des biogaz sont qualitativement différentes et différent également du contenu du digesteur (Figure 1). La microflore Bactérie en aérosol est plus complexe que celles des Eucaryotes. L'identification des espèces Bactérie et Eucaryote présentes dans le biogaz confirme les différences observées par empreintes moléculaires au sein des diversités des biogaz et montre qu'il n'y a pas, en terme de diversité microbienne, « un biogaz » mais « des biogaz ». Cependant, cette diversité présente des points communs à la fois au niveau des phyla, des sous-groupes et des espèces retrouvés dans les différents biogaz

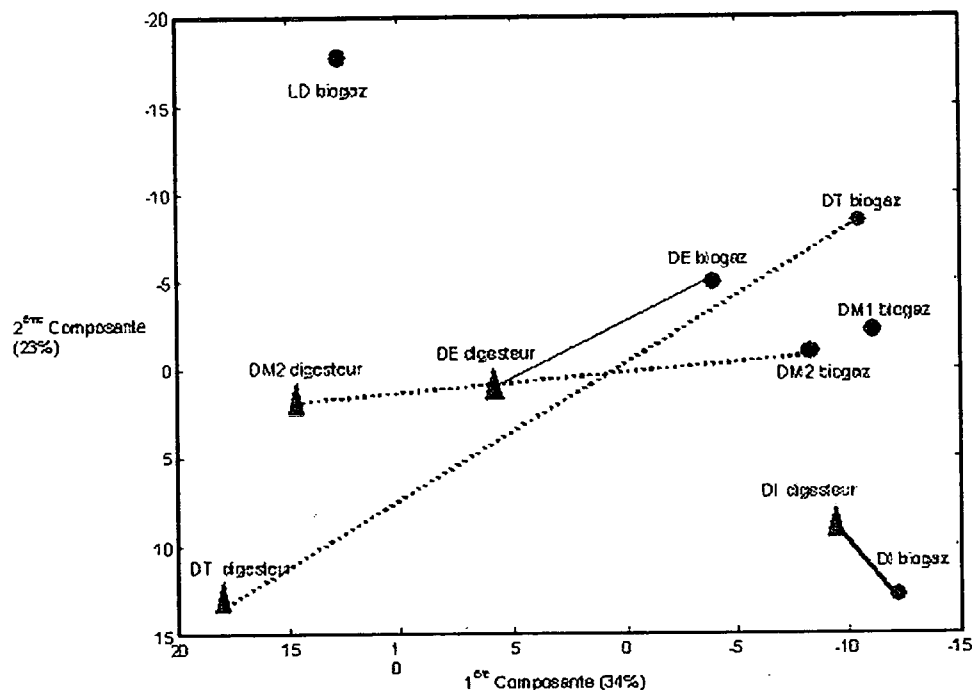


Figure 1 : Analyse en composante principale représentée suivant les deux premières composantes réalisée à partir des profils de l'analyse SSCP.

La somme explique 57% de la variabilité entre les profils SSCP des 6 échantillons de biogaz et de leur digesteur anaérobie source. La figure prend en compte 2 composantes sur les 824. Les lignes en pointillés relient le biogaz et son digesteur anaérobie source. Seul le biogaz a été analysé pour le site LD, pour des raisons techniques.

Les résultats des inventaires moléculaires montrent une grande diversité des espèces présentes dans les biogaz. Pour le domaine Bactérie, 499 séquences d'ARNr 16S ont été réalisées se regroupant en 183 espèces. Parmi les espèces en aérosols dans le biogaz, une proportion de 44% de l'abondance représente une diversité bactérienne inconnue. Les diversités bactériennes des biogaz sont différentes en termes d'espèces présentes. Cependant, elles présentent certaines concordances aux niveaux des phyla. Les phyla *Firmicutes*, *Actinobacteria*, *Bacteroidetes*, *Betaproteobacteria* et *Gammaproteobacteria* sont retrouvés dans tous les biogaz de digesteurs anaérobies. Les *Firmicutes* dominent la plupart des diversités bactériennes des biogaz issues de digesteurs anaérobies mésophiles. Le biogaz issu du traitement des déchets industriels est dominé par le phylum *Bacteroidetes*, représentant 35% de l'abondance, alors que le phylum *Firmicutes* représente 22% de l'abondance. La diversité bactérienne du digesteur thermophile est principalement composée de *Gammaproteobacteria* (39% de l'abondance). Le biogaz issu du centre d'enfouissement technique présente une diversité bactérienne différente de celle des digesteurs anaérobies principalement composée d'*Alphaproteobacteria* (53% de l'abondance et 38% de la diversité). Au niveau des sous-groupes, certains, tels que les groupes *Sphingomonadacea* et *Bacilli*, sont retrouvés dans plusieurs biogaz. Curieusement, une seule espèce est retrouvée dans tous les biogaz issus des procédés mésophiles. Il s'agit de *Propionibacterium acnes* qui représente 2% de la diversité bactérienne totale transportée par le biogaz.

De manière générale, la diversité totale des biogaz décrite à partir des 6 échantillons de biogaz analysés est dominée par le phylum *Firmicutes* avec *Clostridium spp.* et *Bacillus spp.* comme sous-groupes dominants (Figure 2). Les 5 classes de Protéobactéries sont retrouvées avec une dominance des *Alphaproteobacteria* et des *Gammaproteobacteria*, représentant 14% et 12% de l'abondance. Elles sont dominées par *Acetobacter spp.*, *Sphingomonas spp.*, et *Psychrobacter spp.*. Les *Bacteroidetes* représentent 13% de l'abondance totale et sont dominés par les sous-groupes *Prevotella spp.* et *Rickenella spp.*

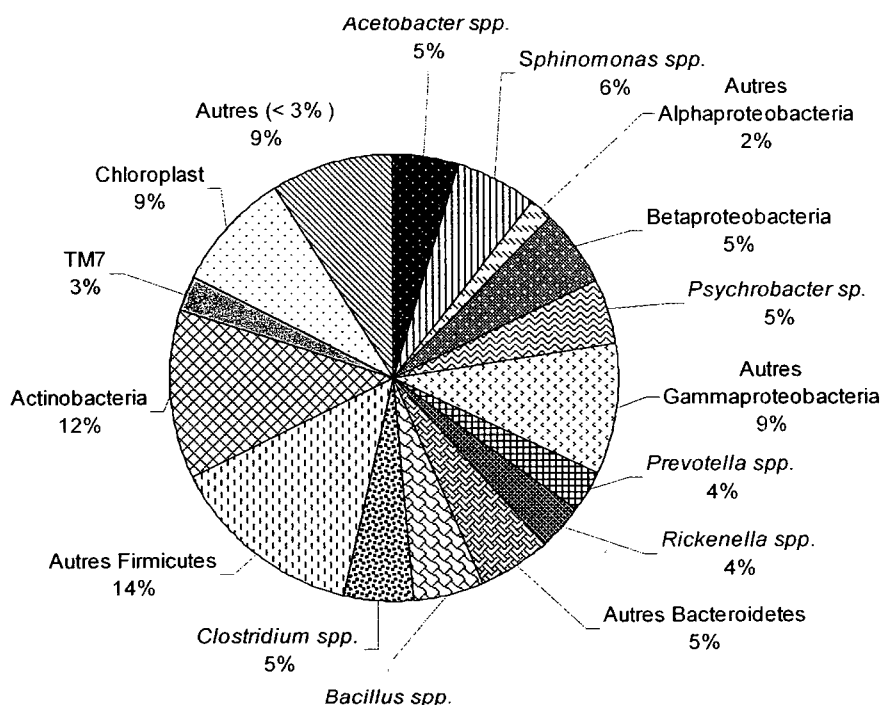


Figure 2 : Groupes bactériens retrouvés dans la diversité bactérienne des biogaz.
Seuls les groupes supérieurs à 3% d'abondance sont représentés. Les groupes *Deltaproteobacteria* et *Epsilonproteobacteria*, *Chlamydia/Planctomyces*, *Synergistes*, *Cyanobacteria*, *Deinococcus/Thermus*, *Acidobacteria*, *Gemmatimonadetes* et *Fusobacteria* ainsi que les groupes n'ayant pas de représentant cultivé OP05, WS06 et WS01 ne sont pas représentés

Dans le cas de la diversité des Eucaryotes, 177 séquences d'ADNr 18S ont été réalisées dont 87 appartiennent au règne des champignons et des levures. Les champignons affiliés aux *Pezizomycota* (44% de l'abondance) et *Hymenomyces* (30% de l'abondance) sont retrouvés majoritairement. Certains groupes ont été retrouvés dans plusieurs biogaz : *Cladosporium sp.*, *Horrea werneckii*, *Trichosporon sp.*, et *Aspergillus terreus*, qui est l'espèce la plus abondante (15% de l'abondance). De plus, *Blumeria graminis*, *Ustiloga hordei*, *Phoma herbarum*, espèces considérées comme phytopathogènes ont été retrouvées dans la diversité Eucaryote des biogaz.

II.3. L'aérosolisation différentielle : Son observation dans le biogaz

La comparaison des empreintes moléculaires Bactérie et Eucaryote des biogaz et de leur source montre que la diversité microbienne transportée par le biogaz n'est pas une copie de la communauté microbienne de sa source. Cette observation est confirmée par les données des inventaires moléculaires. En effet, des disparités importantes sont observées entre les proportions des différents groupes microbiens au niveau du phylum et du phylotype entre le biogaz et son digesteur anaérobie source. Les disparités principales sont :

- Les phyla *Alphaproteobacteria*, *Betaproteobacteria*, *Gammaproteobacteria*, les aérobies strictes, et des groupes microbiens colonisateurs et opportunistes sont préférentiellement aérosolisés dans le biogaz. A l'inverse, les *Archées* et les phyla *Synergistes*, *Deltaproteobacteria*, *Spirochaetes*, *Thermotogae* et les *Chloroflexi* sont préférentiellement non-aérosolisés.

- La diversité bactérienne des biogaz est en termes de phyla présents plus proche de la composition de la diversité bactérienne de l'air que de celle des digesteurs anaérobies.
- Seul 14% des phylotypes du biogaz sont issus d'écosystèmes de digestion anaérobie.
- Bien que les digesteurs anaérobies thermophiles soient dominés par une microflore thermophile, seuls 13% des phylotypes du biogaz issu du digesteur thermophile étudié sont thermophiles

Des comportements d'aérosolisation différents semblent être la cause principale de ces disparités entre les deux diversités microbiennes.

Ainsi, trois comportements ont été mis en évidence dans le biogaz (Figure 3):

- L'aérosolisation « active »: elle caractérise les micro-organismes préférentiellement aérosolisés. L'aérosolisation active a été montrée quantitativement pour *Staphylococcus* spp. et *Propionibacterium acnes* qui sont en moyenne 100 000 fois et 100 fois plus aérosolisés dans certains biogaz que la moyenne des Procaryotes.
- La non-aérosolisation « active »: elle caractérise les micro-organismes non-préférentiellement aérosolisés. La non-aérosolisation active a été montrée quantitativement pour les *Archées* et les *Synergistes* qui sont environ 10 fois moins aérosolisés que la moyenne des Procaryotes.
- L'aérosolisation passive: elle est mise en évidence par la détection dans le biogaz de micro-organismes non-préférentiellement aérosolisés. La présence dans le biogaz de ces micro-organismes montre qu'en supplément des deux comportements « actifs », il existe une aérosolisation passive, probablement essentiellement tributaire de phénomènes physiques conduisant n'importe lequel des groupes microbiens du milieu source à se retrouver en aérosol.

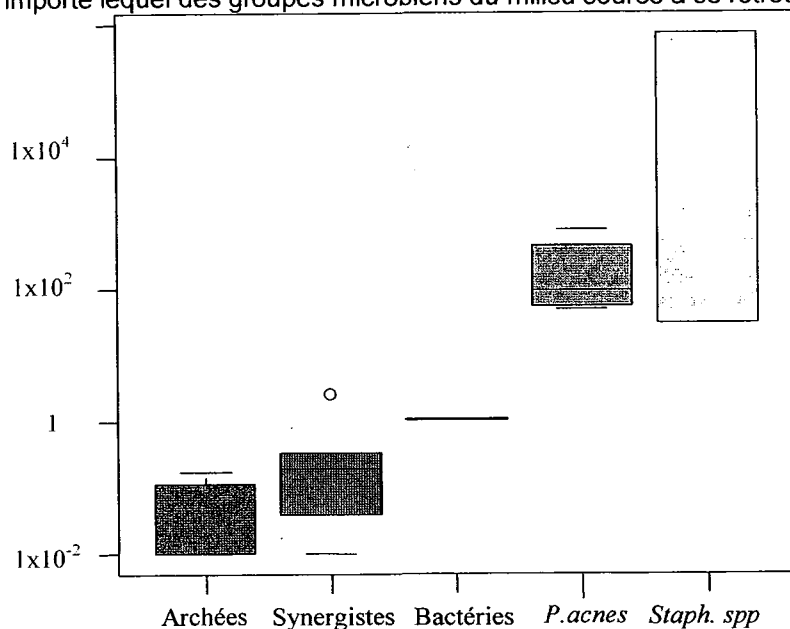


Figure 3 : Comparaison des taux d'aérosolisation de chaque groupe

Les "boîtes à moustaches" représentent la distribution schématique des valeurs du rapport (Proportion du groupe dans le biogaz/proportion du groupe dans le digesteur) des différents groupes choisis comme témoins d'aérosolisation différentielle. La validité de la distribution a été évaluée par le calcul du coefficient de Spearman (0,88).

Plusieurs facteurs, comme la force d'agitation, la consistance des boues et l'alimentation du procédé réalisant la digestion anaérobie, peuvent expliquer les différentes proportions des micro-organismes activement aérosolisés, activement non-aérosolisés et passivement aérosolisés. Ainsi, l'augmentation des échanges, par l'association d'une agitation forte et de la consistance des boues (liquide) augmente le transport passif. A l'inverse, des échanges plus limités, soit par une agitation plus faible, soit par la consistance des boues, laisse une plus grande place à l'expression des comportements actifs d'aérosolisation propres à certains micro-organismes.

L'aérosolisation préférentielle est connue dans la littérature pour certains groupes microbiens (Blanchard *et al*, 1970 ; Angenent *et al*, 2005 ; Marks *et al*, 2001 ; Aller *et al*, 2005) . Les observations sont pour la plupart réalisées *ex situ* par des méthodes de cultures. Les résultats de ce travail

montrent *in situ* de manière qualitative et quantitative 3 types de comportements d'aérosolisation. Le biogaz et le digesteur anaérobie apparaissent être un modèle d'étude pertinent pour étudier les comportements d'aérosolisation. En effet, le système biogaz/digesteur anaérobie est un système fermé dont la diversité microbienne de la source est relativement bien caractérisée.

II.4 Les conséquences sur la diversité microbienne des biogaz

La mise en évidence dans le système procédé « anaérobie/biogaz », des comportements hétérogènes d'aérosolisation induit des conséquences sur la variabilité de la diversité microbienne des biogaz. Il n'est donc pas possible de prévoir la composition microbiologique d'un biogaz par la caractérisation de la diversité microbienne de son digesteur anaérobie source, ni même de considérer la diversité microbienne des biogaz décrite dans ce travail comme exhaustive et figée.

En effet, le comportement d'aérosolisation passive conduisant à la présence dans le biogaz de groupes dominants et sous-dominants de la digestion anaérobie montre que n'importe laquelle des espèces bactériennes présentes dans le digesteur anaérobie peut potentiellement se retrouver en aérosol dans le biogaz, incluant notamment les bactéries sulfato-réductrices (majoritairement affiliées aux *Deltaproteobacteria*). Leur présence dans les biogaz (2% de l'abondance) peut conduire à l'inoculation de cette microflore dans les réseaux. Il serait intéressant lors de futures investigations que ce groupe fonctionnel soit étudié plus précisément notamment à l'aide des approches moléculaires basées sur les gènes de fonctions.

De plus, la majeure partie de la diversité bactérienne des biogaz est composée d'espèces sous-dominantes dans les digesteurs anaérobies (espèces aérobies strictes et espèces opportunistes et colonisatrices). Ces groupes microbiens proviennent probablement de la microflore présente dans l'alimentation du procédé (effluents ou déchets). Ces groupes microbiens peuvent être concentrés dans le biogaz grâce à des comportements d'aérosolisation préférentielle.

III Conclusion

Ce travail a permis de caractériser une diversité microbienne jusqu'alors inconnue. Le biogaz apparaît être un vecteur pouvant transporter n'importe laquelle des espèces composant l'énorme diversité de sa source, provenant soit des déchets soit de la communauté microbienne de la digestion anaérobie. Cependant, la diversité microbienne de l'air que nous respirons ainsi que celle du gaz naturel ne sont pas à ce jour que très peu documentées. Il est donc impossible d'évaluer les conséquences sanitaires et corrosives de l'addition de cette microflore du biogaz à la diversité microbienne déjà présente dans l'un ou l'autre de ces deux environnements.

Cette étude est un point de départ pour de futures recherches qui permettront de donner de plus amples informations sur cette diversité microbienne en termes de dynamique spatiale (de la production à l'injection) et temporelle.

BIBLIOGRAPHIE

- Aller, J.Y., Kuznetsova, M.R., Jahns, C.J., & Kemp, P.F. (2005). The sea surface microlayer as a source of viral and bacterial enrichment in marine aerosols. *Journal of Aerosol Science* 36, 801-812.
- Amann, R.L., Ludwig, W., & Schleifer, K.H. (1995). Phylogenetic identification and in situ detection of individual microbial cells without cultivation. *Microbiological Review* 59, 143-169.
- Angenent, L.T., Kelley, S.T., St Amand, A., Pace, N.R., & Hernandez, M.T. (2005). Molecular identification of potential pathogens in water and air of a hospital therapy pool. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* 102, 4860-
- Blanchard, D.C., & Syzdek, L. (1970). Mechanism to the water-to-air transfert and concentration of bacteria. *Science* 170, 626-628.
- Marks, R., Kruczalok, K., Jankowska, K., & Michalska, M. (2001). Bacteria and fungi in air over the Gulf of Gdansk and Baltic sea. *Journal of Aerosol Science* 32, 237-250.
- Moletta M., (2005). Thèse, Université de Montpellier.
- Peccia, J. & M. Hernandez (2006). Incorporating polymerase chain reaction-based identification, population characterization, and quantification of microorganisms into aerosol science: A review. *Atmospheric Environment* 40(21): 3941.
- Stetzenbach, L. D., M. P. Buttner, & Cruz, P. (2004). Detection and enumeration of airborne biocontaminants. *Current Opinion in Biotechnology* 15(3): 170-4.

Répartition des endotoxines dans les différentes fractions aérodynamiques dans l'air d'un centre de tri des ordures ménagères.

P. DUQUENNE*, R. WROBEL, P. GÖRNER

INRS, LABORATOIRE DE METROLOGIE DES AEROSOLS, INRS, BP 27, 54501 VANDOEUVRE
CEDEX.

(* philippe.duquenne@inrs.fr)

TITLE

Particle size distribution of endotoxins in the air of a solid-waste treatment plant

ABSTRACT

The measurement of the aerodynamic particle size distribution for endotoxins is an important step in determining their potential toxicity and health effects and also for the development of accurate methods of exposure assessment and efficient respiratory protection devices. The aim of the study was to evaluate the Marple cascade impactor for determining an endotoxin particle size distribution in the air of a waste recycling plant. The results show that the endotoxins in this environment are mainly associated with particles over 3,5 μm . Coating the collecting substrate Mylar® with silicone grease clearly affect the mass distribution of the particles over the 8 stages of the impactor. The silicone grease may limit the particles bounce and re-entrainment from higher stages to lower ones but also inhibited the extraction of endotoxins from the greased material and thus modify their aerodynamic particle size distribution. More measurements are required in order to assess the variability of the aerodynamic particle size distribution of endotoxins in that environment. Further investigation are needed about the properties of coating agents used in cascade impactors and their compatibility with the microbial analysis involved in the determination of particle size distribution of bioaerosol components.

RESUME

La mesure de la distribution des endotoxines dans les fractions aérodynamiques des bioaérosols est une étape importante à la fois pour déterminer la toxicité et les effets sanitaires de ces composés et pour développer des méthodes de mesure d'exposition adéquates et des moyens de protection efficaces. L'objectif de notre étude est de déterminer la distribution des endotoxines dans les différentes fractions aérodynamiques d'un aérosol prélevé dans un centre de tri des ordures ménagères à l'aide de l'impacteur en cascade Marple. Il s'agit plus particulièrement d'étudier l'influence de la nature du support de collecte sur cette distribution. Les résultats montrent que les endotoxines sont véhiculées majoritairement par les particules de taille supérieure à 3,5 μm . La présence de graisse silicone sur le support de collecte Mylar® limite le rebond des particules collectées et leur ré-entraînement vers les étages inférieurs et confère, vraisemblablement, une meilleure représentativité de la distribution de la concentration massique des particules collectées. En revanche, elle semble être défavorable à l'extraction des endotoxines à partir des filtres. Il est nécessaire de répéter des mesures dans ce même environnement afin d'évaluer la variabilité de la distribution dans le temps. Par ailleurs, des recherches supplémentaires sont nécessaires pour définir des agents adhésifs compatibles avec l'analyse des microorganismes et de leurs composés à partir des supports d'impaction.

1 INTRODUCTION

L'exposition à des endotoxines dispersées dans l'air des lieux de travail peut être à l'origine de différents symptômes respiratoires et généraux (toux, dyspnée, diarrhées, fièvre, etc...). La profondeur de pénétration et le comportement des particules biologiques dans les voies respiratoires humaines sont fortement influencés par la taille, la forme, la densité ainsi que la composition chimique et réactivité qui les caractérisent [4]. La mesure de la distribution des endotoxines dans les fractions aérodynamiques des bioaérosols est donc une étape importante pour déterminer leur toxicité et leurs effets sanitaires. Mais c'est également un élément fondamental pour développer des méthodes de mesure d'exposition adéquates et des moyens de protection efficaces.

L'objectif de cette étude est de déterminer la distribution des endotoxines dans les différentes fractions aérodynamiques d'un aérosol prélevé dans un centre de tri des ordures ménagères. Il s'agit plus particulièrement d'étudier l'influence de la nature du support de collecte sur cette distribution.

2 MATERIELS ET METHODES

2.1 Déroulement de la campagne

Une série de prélèvements d'air d'une journée a été organisée au cours de l'été 2004 pour comparer différentes méthodes d'échantillonnage des endotoxines et déterminer leur répartition dans différentes fractions aérodynamiques de l'aérosol. Les prélèvements ont été effectués dans un centre de tri et de valorisation énergétique des déchets ménagers de Lorraine, au pied des cabines de tri situées dans le hall principal de l'usine.

2.2 Méthodes d'échantillonnage

2.2.1 L'impacteur Marple

L'impacteur en cascade MARPLE 298 a été utilisé pour déterminer la répartition des endotoxines en fonction de la taille des particules collectées (Tableau 1). Pour l'échantillonnage, l'impacteur était connecté à une pompe individuelle (Gilair, Gillian®) assurant un débit nominal de 2 l/min. Les particules sont impactées sur la surface d'un disque de Mylar® placés sur chacun des 8 étages d'impaction en amont d'un filtre terminal en PVC. Deux impacteurs ont été utilisés dans nos essais. L'un (N° 2663) était équipé de disques de mylar non-graissé et l'autre (N° 2657) était équipé de disques de mylar graissés de silicone (Dow Corning 316 Silicone Release Spray).

N° de l'étage	1	2	3	4	5	6	7	8
D ₅₀ (µm)	21,30	14,80	9,80	6,00	3,50	1,55	0,93	0,52

Tableau 1 : Diamètre de coupure au niveau de 50 % des différents étages d'un impacteur MARPLE 298 au débit de 2 l/min (données tirées du manuel d'utilisation).

2.2.2 Echantillonnage par filtration

L'échantillonnage par filtration a été effectué à l'aide de cassettes porte-filtre en polypropylène de 37 mm de diamètre et constituées de 3 pièces (Millipore, France). Pour l'échantillonnage, les cassettes (orifice d'aspiration d'un diamètre de 4 mm) étaient chacune connectées à une pompe individuelle (Gilair, Gillian®) assurant un débit nominal de 2 l/min. Chaque cassette contenait un tampon (Absorbant pads, Millipore, France) et, soit une membrane en polycarbonate de 37 mm de diamètre et de pores de 0.8 µm (Nuclepore® Polycarbonate, Corning, France), soit un filtre en fibres de verre de 37 mm de diamètre (GF-filter, Whatman®, France).

2.2.3 Echantillonnage d'air par centrifugation liquide

L'échantillonnage par impaction liquide a été effectué à l'aide de l'appareil CIP10-M [7] fonctionnant au débit nominal de 10 l/min. Les coupelles contenaient 1.8 ml d'eau p.p.i. Aucun sélecteur n'était présent sur l'appareil. Au préalable, les coupelles de CIP 10-M ont été désinfectées à l'eau de Javel, abondamment rincées avec de l'eau p.p.i, séchées à l'étuve à 50°C puis stérilisées à l'autoclave à 121°C pendant 30 minutes. Au terme du prélèvement, le contenu de la coupelle a été soigneusement

transféré dans un tube en verre stérile apyrogène. La coupelle a été rincée deux fois et les produits de rinçage ajoutés au premier échantillon.

2.3 Stratégie d'échantillonnage

L'échantillonnage des bioaérosols a été effectué à poste fixe en disposant les appareils de prélèvements sur une barre horizontale de façon alternée et espacés de 15 cm les uns des autres (Figure 1). Un ensemble de 3 cassettes contenant un filtre en fibres de verre, 3 cassettes contenant une membrane en polycarbonate et 3 CIP 10-M, un compteur optique de particules (GRIMM 1105, GRIMM®), le MARPLE 298 (N°2657) et le MARPLE 298 (N°2663) ont été ainsi disposés. Les orifices de captage ont été positionnés à une hauteur d'environ 1,60 m et la position des différents capteurs sur la barre horizontale est schématisée dans la Figure 1. Les échantillonneurs ont été mis en marche simultanément et les prélèvements ont été effectués pendant une durée de 240 minutes.

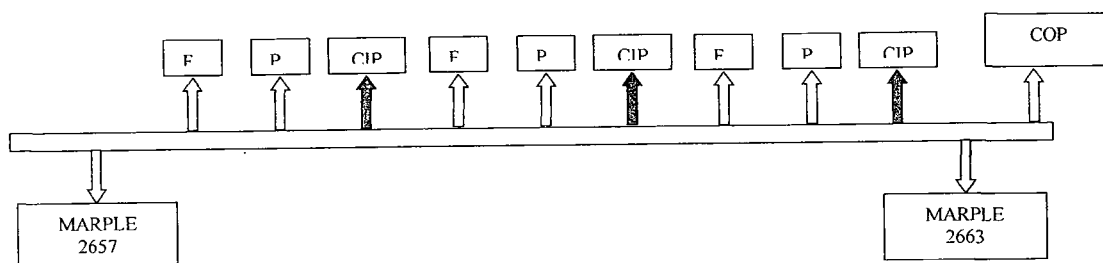


Figure 1 : Dispositif expérimental utilisé pour l'échantillonnage des bioaérosols. **F :** Cassette contenant un filtre en fibre de verre. **P :** Cassette contenant une membrane en polycarbonate. **CIP :** CIP10-M. **MARPLE-2657 :** impacteur en cascade Marple avec disques Mylar® non-graissés. **MARPLE-2663 :** impacteur en cascade Marple avec disques Mylar® graissés. **COP :** Compteur Optique de Particules (GRIMM 1105).

2.4 Transport des échantillons

Les échantillons ont été transportés dans la journée au laboratoire dans une enceinte réfrigérée.

2.5 Analyses des échantillons

2.5.1 Pesée des filtres

Les membranes Nucléopore (utilisées pour les cassettes), les filtres Mylar® et les filtres terminaux (utilisés dans les échantillonneurs MARPLE) ont été pesées avant et après prélèvement afin de pouvoir établir la concentration en masse de particules. Une balance de résolution 0,001 mg (METTLER M3) a été utilisée pour effectuer ces pesées.

2.5.2 Détermination des endotoxines dans les échantillons

L'extraction des endotoxines à partir des filtres a été effectuée dans les 24 heures après les prélèvements. Cette opération a été menée dans des tubes coniques en polypropylène, stériles et apyrogènes (Greiner-50 ml, Greiner-Bio-One,) contenant 5 ml d'eau p.p.i (Eau p.p.i. B. Braun Medical, France). Chaque tube a été agité pendant 1 minute à l'aide d'un vortex (Reax control, Heidolph), puis plongé pendant 20 minutes dans un bain à ultra-sons (Bronson 1210, Bronsonic®, Bronson Ultrasonic Corporation) fonctionnant à 47 KHz et à 60°C. Au terme de la période de sonication, chaque tube a été agité au vortex pendant 1 minute à 2500 rpm. Pour les filtres en fibre de verre, l'extrait a été filtré à l'aide d'unités stériles de filtration contenant une membrane en polyéthersulfone (PES) de diamètre de pores 0.22 µm (Millex®-GP, Millipore, USA). La concentration en endotoxines dans chaque solution a été mesurée par la méthode au LAL [6], avec le kit LAL-Kinetic-QCL™ (lot 3L151M) et le logiciel Win-KQCL™ (version 1.20) de la société Cambrex.

3 RESULTATS ET DISCUSSION

3.1 Concentration en particules

Pendant la durée d'échantillonnage, la température et l'humidité relative dans le hall de l'usine de tri ont varié respectivement de 16,8 à 18,7°C et de 69 à 72%. La température et l'humidité relative à l'extérieur des bâtiments étaient de 15,2°C et de 88%. L'activité de l'entreprise aux abords du lieu de

prélèvement était assez soutenue le matin. Entre 9h30 et 12h30, la concentration en particules a oscillé entre 10000 et 31000 unités par litre d'air (Figure 2). Les travaux effectués (transport des gros déchets et par les moteurs diesel) engendrent des pointes de concentration en particules dispersées dans l'air ambiant. Les pics les plus importants correspondent à la mise en route du broyeur dans le hall.

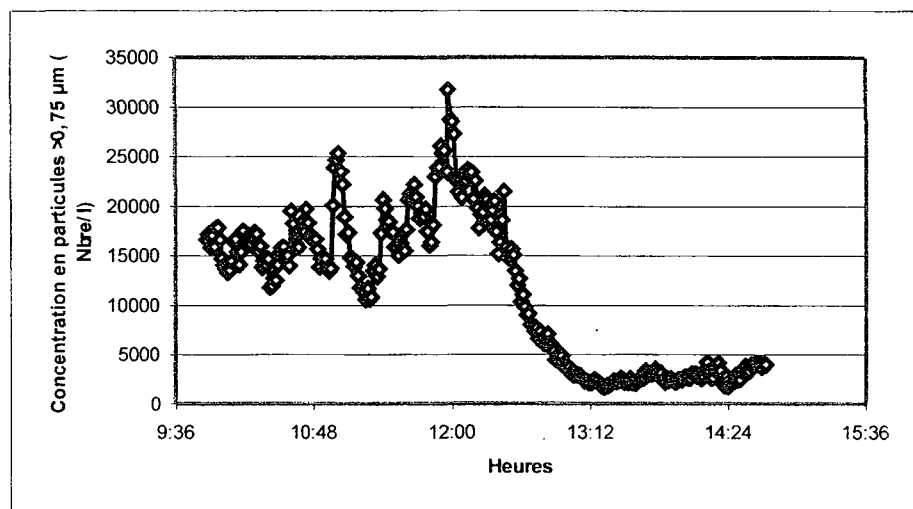


Figure 2 : Evolution de la concentration en particules dans l'air du centre de tri pendant les prélèvements.

Après 12h30 l'activité dans l'entreprise s'est arrêtée et la concentration a diminué progressivement pour atteindre moins de 5000 particules par litre d'air (Figure 2).

3.2 Influence de la méthode d'échantillonnage

Le mesurage des endotoxines dans l'air du hall du centre de tri a été simultanément effectué à l'aide des méthodes par filtration sur membrane en polycarbonate, par filtration sur filtre en fibres de verre et par impaction liquide avec le CIP 10-M.

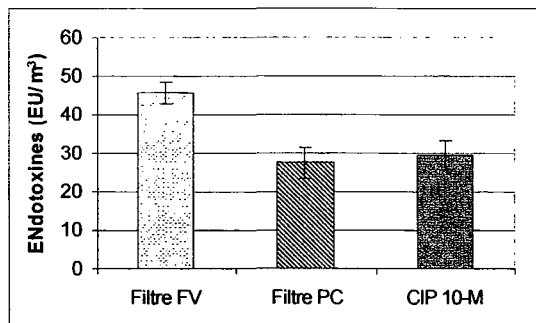


Figure 3 : Résultats de mesurage à poste fixe des endotoxines dans l'air d'un centre de tri des ordures ménagères. Les moyennes ont été calculées à partir de 3 répétitions et les barres représentent les intervalles de confiance à 95%. **FV** : Filtre en fibres de verre, **PC** : membrane en polycarbonate. **CIP 10-M** : échantillonneur CIP 10-M.

Dans ces conditions, les méthodes d'échantillonnage par filtration sur membrane en polycarbonate et par impaction liquide avec le CIP 10-M ont conduit à des mesures très proches en endotoxines (respectivement 27,5 et 29,5 EU/m³) dans l'air (figure 3). En revanche, les mesures obtenues par filtration de l'air sur filtre en fibre de verre étaient significativement supérieures (45 EU/m³). L'effet de la méthode d'échantillonnage sur le mesurage des endotoxines dans l'air est relativement bien documenté dans la littérature ([1, 2]) et les résultats obtenus dans nos essais ne sont pas surprenants. Les filtres en fibres de verre seraient moins favorables à l'adsorption des endotoxines sur leur surface et celles-ci seraient plus facilement remises en suspension lors de l'étape d'extraction.

Les niveaux de concentration en endotoxines sont inférieurs à la valeur de 200 EU/m³ qui a été retenue depuis juillet 2003 comme valeur limite d'exposition professionnelle aux Pays Bas [3].

3.3 Répartition des endotoxines dans les différentes fractions aérodynamiques

La quantité totale de particules impactées sur l'ensemble des supports Mylar® est identique pour les deux impacteurs (1,05 mg/m³) mais la répartition dans les différents étages varie d'un appareil à l'autre (Figure 4). En revanche, la concentration totale en endotoxines mesurée à partir des disques Mylar® graissés (36,67 EU/ m³) est inférieure à celle mesurée à partir des disques non-graissés (48,52 EU/ m³).

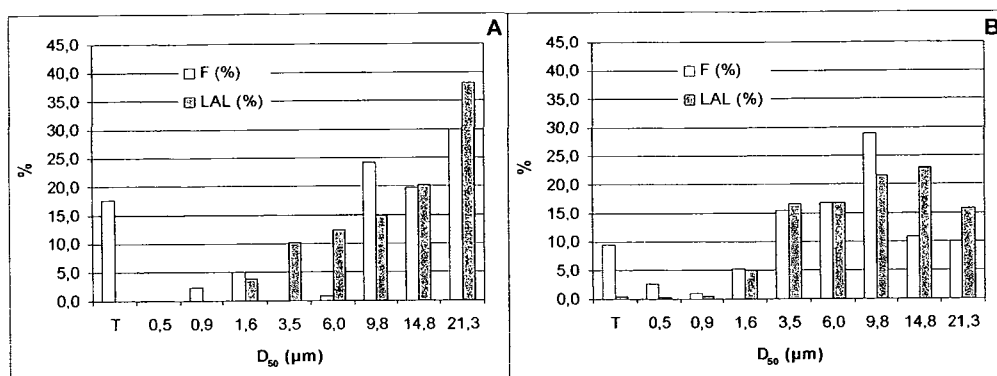


Figure 4 : Répartition massique des particules et des endotoxines dans les différentes fractions granulométriques dans du centre de tri. **F (%) :** Concentration massique. **LAL (%) :** concentration en endotoxines. **T :** Filtre terminal. **A :** mesures obtenues avec l'impacteur MARPLE (N° 2657) monté avec des disques Mylar® graissés. (concentration totale en masse de 1,05 mg/m³ et en endotoxines et 36,67 EU/ m³). **B :** mesures obtenues avec l'impacteur MARPLE (N° 2663) monté avec des disques Mylar® non-graissés (masse totale de particules impactées sur l'ensemble des supports Mylar® non-graissés : 1,04 mg/m³ ; quantité totale d'endotoxines mesurées sur l'ensemble de ces mêmes supports : 48,52 EU/ m³).

L'examen de la distribution massique sur les supports Mylar® graissés (Figure 4A) fait apparaître que l'essentiel de la masse des particules collectées est retrouvé dans les particules collectées dans les étages supérieurs ($D_{50} \geq 9,8 \mu\text{m}$). L'étage terminal de l'impacteur a collecté 18 % de la masse totale des particules échantillonnées. La distribution des endotoxines est sensiblement différente (Figure 4A). Les endotoxines n'ont pas été détectées dans les 3 derniers étages inférieurs de l'impacteur. La quantité d'endotoxines s'élève progressivement de 5 % de la quantité totale d'endotoxines collectées pour le D_{50} de 1,6 μm à 38 % dans le dernier étage ($D_{50} = 21,3 \mu\text{m}$).

L'examen de la distribution massique sur l'ensemble des supports Mylar® non-graissés fait apparaître que l'essentiel de la masse des particules est collecté dans les étages possédant un diamètre de coupure supérieur ou égale à 3,5 μm (Figure 4B). L'étage terminal de l'impacteur a collecté 9 % de la masse totale des particules. Les endotoxines ont été détectées dans tous les étages de l'échantillonneur mais la quantité mesurée est très faible dans les étages inférieurs ($D_{50} \leq 0,9 \mu\text{m}$). La majorité des endotoxines (80 %) a été mesurée dans les cinq étages supérieurs ($D_{50} \geq 3,5 \mu\text{m}$) de l'impacteur (Figure 4B).

Dans les conditions de notre essai, les endotoxines sont majoritairement présentes dans les fractions particulaires supérieures à 3,5 μm . D'autres travaux montrent une répartition majoritaire dans la fraction 3,5-8,5 μm [11] et même dans les fractions plus fines, < 2 μm [10, 12] selon les environnements considérés. A l'évidence, la répartition des endotoxines dans les différentes fractions particulaires d'un aérosol échantillonné sur un site est étroitement liée à la distribution de la taille des particules par lesquelles elles sont portées dans cet environnement. Il est nécessaire de répéter les mesures dans un même environnement pour mieux apprécier cette distribution.

Par ailleurs, la présence de la graisse silicone sur les disques Mylar® modifie sensiblement la distribution massique des particules dans les différents étages de l'impacteur Marple. Cette graisse améliore l'adhérence des particules sur le support de collecte, diminue le rebond de ces dernières et défavorise ainsi leur ré-entraînement vers les étages inférieurs. Pour l'échantillonnage des

bioaérosols, des agents adhésifs sont proposés dans la littérature comme un milieu à base de gélatine glycinée [5], de gels dérivant des produits pétroliers [13] ou encore de milieux de culture gélosés [8]. Ces agents limitent également le stress des microorganismes induit par la déshydratation ou l'impact sur le support de collecte. Ils ont été étudiés essentiellement pour le dénombrement des microorganismes cultivables dans l'air et peu de données sont disponibles dans la littérature concernant leurs effets sur le mesurage d'autres paramètres microbiens. Dans nos essais, la graisse silicone semble diminuer l'efficacité d'extraction des particules pour l'analyse des endotoxines [9] et il est nécessaire d'étudier ce point précis afin de pouvoir exploiter de façon plus rigoureuse les données issues des campagnes répétées d'échantillonnage dans un même secteur d'activité.

4 CONCLUSIONS

L'essai montre que, dans l'air du hall de l'usine de tri des ordures ménagères, les endotoxines sont véhiculées majoritairement par les particules de taille supérieure à 3,5 µm. Néanmoins, il est nécessaire de répéter les mesures dans ce même environnement afin d'évaluer la variabilité de la distribution dans le temps. La présence de graisse silicone sur le support de collecte limite le rebond des particules collectées et leur ré-entraînement vers les étages inférieurs et confère, vraisemblablement, une meilleure représentativité de la distribution massique des particules collectées. En revanche, elle semble être défavorable à l'extraction des endotoxines à partir des disques d'impaction. Ces résultats rappellent l'importance des propriétés adhésives des supports de collecte disposés dans les impacteurs en cascade sur la rétention des particules. Ils indiquent également que des recherches supplémentaires sont nécessaires pour définir des agents adhésifs compatibles avec l'extraction et l'analyse des microorganismes et de leurs composés à partir des supports d'impaction.

5 RÉFÉRENCES

1. Douwes, J., et al., *Influence of various dust sampling and extraction methods on the measurement of airborne endotoxin*. Applied and Environmental Microbiology, 1995. **61**(5): p. 1763-1769.
2. Laitinen, S.K., *Importance of sampling, extraction and preservation for quantification of biologically active endotoxin*. Ann. Agric. Environ. Med., 1999. **6**(1): p. 33-38.
3. DECOS, D.E.C.o.O.S., *Endotoxins : health based recommended recommended occupation exposure limit*. rijswijk : Health Council of the Netherlands. 1998. p. 1-79.
4. Vincent, J.H., *Health-related aerosol measurement: a review of existing sampling criteria and proposals for new ones*. Journal of Environmental Monitoring, 2005. **7**(11): p. 1037-1053.
5. Macher, J.M. and H.C. Hansson, *Personal Size-Separating Impactor for Sampling Microbiological Aerosols*. AIHA Journal, 1987. **48**(7): p. 652-655.
6. INRS, *Fiche METROPOL 089/V01 : Endotoxines*. Recueil -Métropol : <http://www.inrs.fr/>, 2005.
7. Gorner, P., et al., *Bioaerosol sampling by a personal rotating cup sampler CIP 10-M*. Journal of Environmental Monitoring, 2006. **8**: p. 43-48.
8. Meklin, T., et al., *Size distributions of airborne microbes in moisture-damaged and reference school buildings of two construction types*. Atmospheric Environment, 2002. **36**(39-40): p. 6031-6039.
9. DeCosemo, G.A.L., et al., *The assessment of airborne microorganisms*. Journal of Aerosol Science, 1992. **23**(Supplement 1): p. 683-686.
10. Alwis, K.U., J. Mandryk, and A.D. Hocking, *Exposure to Biohazards in Wood Dust: Bacteria, Fungi, Endotoxins, and (1 3)-beta-D-Glucans*. Appl. Occup. Environ Hyg., 1999. **14**(9): p. 598-608.
11. Attwood, P., et al., *Assessment of dust and endotoxin levels in the working environment of dutch pig farmers : a preliminary study*. Annals of Occupational Hygiene, 1986. **30**(2): p. 201-208.
12. Kunjundzic, E., M. Hernandez, and S.L. Miller, *Particle size distributions and concentrations of airborne endotoxin using novel collection methods in homes during the winter and summer seasons*. Indoor air, 2006. **16**: p. 216-226.
13. Madelin, T.M. and M.F. Madelin, *Biological analysis of fungi and associated molds*, in *Bioaerosol Handbook*, C.S.C.a.C.M. Wathes., Editor. 1995, Lewis Publisher: Boca Raton, USA. p. 361-386.

Avantages et limites pour l'utilisation d'un polymère hydrosoluble pour l'échantillonnage des bioaérosols par impaction

P. DUQUENNE*, G. GREFF, V. KOEHLER ET P. GÖRNER

INRS, LABORATOIRE DE METROLOGIE DES AEROSOLS, INRS, BP 27, 54501 VANDOEUVRE
CEDEX.

(*philippe.duquenne@inrs.fr)

TITLE :

Use of a water-soluble polymer for bioaerosols sampling by impaction

ABSTRACT

The « Polym'Air® » is a commercial collection medium containing a water-soluble polymer and designed for sampling of bioaerosols by impaction and subsequent analysis by scanning cytometry. The aim of our study was to investigate the compatibility of the polymer with the measurement of airborne endotoxins, viable (plate count) and total (epifluorescent microscopy with DAPI) microorganisms. The results show that the polymer is suitable for the enumeration of microorganisms in liquid suspension by either plate counts and epifluorescent microscopy with DAPI, but a 100 fold dilution of the sample is required to overcome the interferences during the endotoxins analysis with the LAL method. Thus, high quantification limits values are expected for the measurement of airborne concentration of the parameters ($1,4 \times 10^3$ UFC/m³ et $1,8 \times 10^6$ CELL/m³ and 71 EU/m³, respectively). We were able to measure the airborne bacterial and fungal concentration in a contaminated environment using Petri dishes containing the polymer but not with common culture media. Further work is needed on the physical and biological efficiency of impactors with the product.

RÉSUMÉ

Nous avons évalué un support de collecte commercial (« Polym'Air® ») utilisé avec les impacteurs usuels pour quantifier les microorganismes aéroportés par cytométrie à balayage, pour mesurer la flore cultivable, les endotoxines et les bactéries totales par microscopie à épifluorescence dans l'air. Les résultats montrent que le polymère constituant ce produit est compatible avec le dénombrement des microorganismes par culture sur milieu gélosé et par microscopie à épifluorescence (DAPI) mais une dilution au 1/100^e est nécessaire pour lever l'interférence observée avec le dosage des endotoxines par la méthode au LAL. Les limites de quantification théoriques pour ces paramètres sont importantes ($1,4 \times 10^3$ UFC/m³, $1,8 \times 10^6$ CELL/m³ et 71 EU/m³ respectivement). Dans nos essais, l'emploi des boîtes de Pétri contenant le polymère avec un impacteur Andersen permet de déterminer la concentration en bactéries et en moisissures cultivables dans un air fortement contaminé (10^5 UFC/m³). Des mesures d'efficacité physique et biologique sont nécessaires pour conforter les résultats.

1 INTRODUCTION

L'échantillonnage des bioaérosols à l'aide d'impacteurs à cribles est une méthode couramment employée pour évaluer la concentration en microorganismes viables et cultivables dans l'air. Les particules sont captées à travers un ensemble d'orifices (grille) et viennent s'impacter sur une surface cible, généralement un milieu de culture gélosé, placée sur le trajet du flux d'air.

Si cette méthode présente des intérêts réels, notamment concernant la facilité de mise en œuvre et d'analyse, on lui attribue néanmoins quelques limites. D'abord, le domaine d'application des appareils concernés est réduit dans la mesure où, dans les environnements fortement contaminés, la saturation des milieux ne permet pas de définir la concentration exacte en microorganismes. Ensuite, seules les cellules cultivables sont dénombrées et la fraction non cultivable de la population microbienne présente dans l'aérosol, généralement stressée ou endommagée, n'est pas prise en compte. De plus, il n'est pas possible d'effectuer d'autres analyses sur ce type d'échantillon. Enfin, une seule colonie peut être observable alors que plusieurs cellules ont été déposées au même endroit sur la gélose lors de l'échantillonnage.

Un nouveau support de collecte utilisable dans les impacteurs classiques pour l'échantillonnage des bioaérosols est disponible sur le marché. Il est constitué d'un polymère déshydraté contenu dans une boîte de Pétri standard (90 mm) qui après dissolution dans une solution aqueuse stérile permet le comptage des microorganismes collectés par cytométrie à balayage après marquage avec un fluorochrome adéquat.

L'étude a pour objectifs de déterminer si le produit pouvait être utilisé pour le dosage d'autres paramètres microbiens que ceux pour lesquels il a été développé et également de le comparer aux milieux de cultures classiques utilisés comme support de collecte.

2 MATERIELS ET METHODES

2.1 Le polymère étudié

Les boîtes «Polym'AIR®» sont des boîtes de Pétri au format 90 mm contenant un polymère hydrosoluble déshydraté et stérilisé par rayon gamma. Les boîtes utilisées dans nos essais (lots C6025011 et C6041024) ont été obtenues auprès de la société AES-Chemunex (Combourg, France).

2.2 Milieux de culture gélosé

Les milieux gélosés Tryptone Soja Agar (TSA), Tryptone Soja Agar amandé de 0,08 g/l d'actidione (TSA+act), le milieu Malt Extract Agar (MEA) ont été préparés au laboratoire à partir de milieux en poudre obtenus auprès de la société AES-Chemunex (Combourg, France) conformément aux indications du fournisseur. L'actidione a été ajoutée après stérilisation et toutes les boîtes contenaient, sauf indication contraire, 20 ml de milieux.

2.3 Présentation générale des essais

L'évaluation du polymère hydrosoluble pour le mesurage des bioaérosols a été conduite selon trois axes.

2.3.1 *Compatibilité du polymère hydrosoluble avec les analyses microbiologiques*

Des essais ont été effectués au laboratoire dans le but d'étudier la compatibilité du polymère hydrosoluble avec le dosage des endotoxines et le dénombrement de la flore cultivable et de la flore totale par épifluorescence. Pour réaliser ces essais, le polymère a été dissout, contaminé soit par une solution pure d'endotoxines soit par une suspension bactérienne pure, puis analysé.

2.3.2 *Evaluation du polymère dans un environnement fortement contaminé*

Deux séries distinctes de prélèvements d'air ont été organisées au cours de l'été 2006 pour comparer l'impaction sur le polymère hydrosoluble à l'impaction sur milieux de cultures gélosés. L'une des séries a été consacrée à mesurer la concentration de l'air en bactéries cultivables et l'autre la concentration en moisissures cultivables. Les prélèvements ont été effectués dans un centre de tri et de valorisation énergétique des déchets ménagers de Lorraine. Les prélèvements d'air ont été effectués dans le hall principal de l'usine, au pied des cabines de tri.

2.3.3 Effet du volume de milieu gélosé sur le mesurage des bioaérosols

Nous avons étudié l'effet du volume de gélose présente dans les boîtes de Pétri sur les résultats de mesurage des bactéries et moisissures cultivables dans l'air d'un environnement peu contaminé. Les essais ont été effectués avec des boîtes de Pétri préparées au laboratoire et contenant soit 5 ml, soit 20 ml de milieu de culture. Deux séries distinctes de prélèvements d'air ont été organisées pour étudier l'effet de ce paramètre sur le mesurage dans l'air des bactéries cultivables d'une part et des moisissures cultivables d'autre part. Les prélèvements ont été effectués dans la laverie du laboratoire de microbiologie de L'INRS à Vandoeuvre-les-Nancy.

2.4 Préparation des solutions de polymère pour les essais de compatibilité

Le polymère hydrosoluble contenu dans une boîte « Polym'Air[®] » a été transféré dans un tube conique en polypropylène, stérile et apyrogène (Greiner-50 ml, Greiner-Bio-One) contenant 40 ml d'eau p.p.i. (B. Braun, France lot 5114B16). Pour un même essai, les tubes contenant la solution non diluée de polymère ont été agités simultanément pendant 20 minutes à 2000 rpm (Multi-Reax[®], Heidolph).

2.5 Compatibilité du polymère avec le dosage LAL

Trois tubes contenant la solution de polymère dissout (cf paragraphe 2.4) ont été dilués successivement au 1/10^e et au 1/100^e dans l'eau p.p.i. puis toutes les solutions ont été contaminées par 100 µl d'une solution pure d'endotoxines à 50 EU/ml. Les tubes ont ensuite été agités au vortex pendant 1 minute et la concentration en endotoxines a été mesurée immédiatement. La solution d'endotoxines pure a été préparée à partir d'un flacon d'endotoxine lyophilisée et d'EDSA disponible dans le kit LAL-Kinetic-QCL™ (lot 4L940), conformément aux indications du fournisseur. La concentration en endotoxines dans chaque solution a été mesurée par la méthode au LAL [3], avec le kit LAL-Kinetic-QCL™ (lot 4L940) et le logiciel Win-KQCL™ (version 1.20) de la société Cambrex. La même opération a été effectuée parallèlement avec 3 tubes « contrôles » contenant 40 ml d'eau p.p.i.

2.6 Compatibilité du polymère avec le dénombrement bactérien

Une culture bactérienne pure a été préparée à partir du milieu liquide King B stérile, inoculé par *Pseudomonas fluorescens* (ATCC 13525) puis incubé à 25°C pendant 48 heures sous agitation à 300 rpm. La solution de polymère contenue dans chaque tube préparée conformément aux indications du paragraphe 2.4 a été inoculée avec 2 ml de cette culture diluée au 1/10. La même opération a été effectuée avec 3 tubes « contrôles » contenant 40 ml de tryptone sel stérile (1 g/l de tryptone + 8,5 g/l de NaCl). Les tubes ont ensuite été agités au vortex pendant 1 minute, dilués successivement dans du tryptone sel stérile et leur contenu microbien a été dénombré dans l'heure.

Le dénombrement des bactéries cultivables a été effectué par étalement de 100 µl des dilutions successives sur le milieu TSA puis incubation à 25°C pendant 48 heures

Pour le dénombrement de la flore totale par épifluorescence, chaque suspension à analyser (volume de 9 ml) est mise en contact pendant 10 min avec 1 ml de solution de DAPI à 5µg/ml. L'ensemble est filtré sous vide sur une membrane en polycarbonate noire (Isopore, 47 mm, porosité 0,2 µm, Millipore). La membrane est rincée par deux filtrations consécutives (10 ml d'eau p.p.i), séchée à l'air libre quelques minutes sur une lame de verre puis réhydratée par de la glycérine tamponnée. L'observation se fait en microscopie à épifluorescence à l'aide d'un objectif à immersion (x100) et le comptage dans un carré de surface connue déterminé par le réticule placé dans l'oculaire.

2.7 Méthode et stratégie d'échantillonnage

Les échantillons d'air ont été collectés simultanément à l'aide de deux impacteurs Andersen à deux étages (Graseby Andersen, USA) chacun connecté à une pompe assurant un débit de 28,3 l/min. Les caractéristiques des impacteurs sont données dans le tableau 1.

Numéro de l'étage	Position de la grille	Nombre d'orifice	Diamètre des orifices (mm)	D ₅₀ (µm)
0	supérieure	200	1.5	8.00
1	inférieure	200	0.4	0.95

Tableau 1 : Caractéristiques des impacteurs Andersen utilisés (d'après « le guide d'utilisation de l'impacteur Andersen »).

L'un des deux impacteurs a été équipé de boîtes de Pétri contenant un milieu de culture gélosé (TSA+act ou MEA) et l'autre de boîtes contenant le Polymère. Afin d'éliminer l'effet de l'appareil sur l'échantillonnage chaque impacteur était équipé alternativement de boîtes contenant le milieu de culture, et le polymère. Les deux impacteurs étaient disposés à environ 70 cm de hauteur, posés sur un plan de travail horizontal à 30 cm l'un de l'autre. L'échantillonnage a été effectué pendant une durée d'environ quinze minutes.

2.7.1 Mesures des paramètres de terrain

Les mesures de température et d'humidité relative ont été effectuées à l'aide d'un thermo-hygromètre (Hygropalm, Rotronic). Le compteur optique de particules GRIMM 1109 a été utilisé pour suivre l'évolution au cours du temps de la concentration en nombre de particules par litre d'air.

2.8 Transport des échantillons d'air

Les échantillons ont été transportés dans la journée au laboratoire dans une enceinte réfrigérée.

2.9 Analyses des échantillons d'air

Les boîtes de Pétri contenant les milieux de culture (TSA+act ou MEA) issus de l'échantillonnage ont été incubées à la température adéquate (Voir ci-dessous) dès le retour au laboratoire.

Le gel hydrosoluble de chaque boîte « Polym'Air » a été transféré individuellement dans un tube conique en polypropylène, stérile et apyrogène (Greiner-50 ml, Greiner-Bio-One) contenant 40 ml d'eau stérile. Puis, tous les tubes ont été agités simultanément pendant 20 minutes à 2000 rpm (Multi-Reax[®], Heildolph). L'extrait a ensuite été dilué successivement au 1/10^e dans une solution de tryptone sel stérile. Le dénombrement a été effectué en étalant 100 µl de chaque dilution sur des boîtes contenant le milieu de culture approprié.

Les boîtes contenant le milieu TSA+act, utilisées pour le dénombrement des bactéries aérobies cultivables dans l'air ont été incubées à 37°C pendant 3 jours. Les boîtes contenant le milieu MEA, utilisées pour le dénombrement des moisissures aérobies cultivables dans l'air, ont été incubées à 25°C pendant 5 jours. Le nombre de colonies sur les boîtes a été évalué tous les jours pour déterminer la concentration microbienne dans l'échantillon.

2.10 Expression des résultats et analyses statistiques

Compte tenu du faible nombre de points d'impact colonisés observés sur les boîtes de pétri non saturées après incubation, aucune « correction des trous positifs » n'a été effectuée [1]. Les analyses statistiques ont été réalisées avec le logiciel Stagraphics[®]-Plus, version 5.1. (Statistical Graphic Corp, USA).

3 RESULTATS ET DISCUSSION

3.1 Caractéristiques du polymère

Le polymère hydrosoluble contenu dans les boîtes « Polym'AIR[®] » se présente sous la forme d'un film déshydraté bleu couvrant toute la surface de la boîte. La surface du film laisse apparaître de légères marques d'impacts, vraisemblablement générées par le procédé de séchage. Le film se retire facilement de la boîte à l'aide d'une pince stérile. Le produit se conserve à température ambiante (18-25°C) pendant 6 mois selon le fournisseur. L'épaisseur du film dans les boîtes est de 0.38 mm (+/- 0.08 mm) contre une épaisseur de gélose de 3,34 mm (+/- 0,11 mm) pour les boîtes contenant 20 ml de milieu qui sont préparées au laboratoire (soit un écart de 3 mm pour la distance « orifice-support de collecte »).

3.2 Compatibilité du Polymère hydrosoluble avec les analyses microbiologiques

Les essais de laboratoire ont révélé un effet significatif du polymère sur les résultats de dosage LAL (Figure 1). En effet, lorsqu'il n'est pas dilué, le polymère inhibe fortement le dosage LAL et la concentration en endotoxines mesurée ne représente que 25 % de la quantité initialement introduite. Le logiciel signale d'ailleurs une interférence. L'interférence est levée dans les dilutions au 1/10^e et au 1/100^e. La quantité d'endotoxines dans les solutions est sous-estimée à la dilution au 1/10^e et légèrement sur-estimée à la dilution au 1/100^e. Le taux de récupération dans l'eau p.p.i est proche de 100 % (Figure 1).

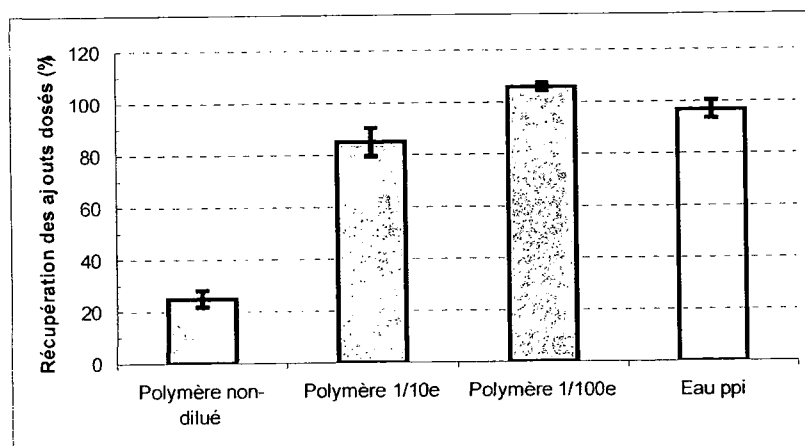


Figure 1 : Résultats de dosage LAL dans des solutions préalablement contaminées par des endotoxines. Les solutions sont de l'eau p.p.i et une solution de polymère, non diluée ou diluée au $1/10^6$ et au $1/100^6$. La quantité d'endotoxines introduite initialement était de 0,5 EU/ml dans toutes les solutions. Les barres représentent l'intervalle de confiance au seuil de 5%.

En revanche, nos résultats montrent que la présence du polymère dans la suspension bactérienne (*P. fluorescens*) n'affecte pas de manière significative les résultats de dénombrement et ceci, quelque soit la méthode utilisée pour le dénombrement (Tableau 2). Le polymère est donc compatible avec le dénombrement de cette souche par culture sur milieu gélosé et n'interfère pas avec la microscopie à épifluorescence utilisant le DAPI comme fluorophore.

	Flore cultivable [log(UFC/ml)]		Flore totale [log(Cell/ml)]	
	Moy	IC	moy	IC
Eau ppi	8,29	(0,039)	9,55	(0,002)
Polymère	8,36	(0,201)	9,51	(0,073)

Tableau 2 : Influence du polymère hydrosoluble sur le dénombrement d'une culture de *P. fluorescens* par étalement sur milieux gélosés (Flore cultivable) et par microscopie à épifluorescence après marquage au DAPI (Flore totale). Les résultats présentés dans le tableau sont les moyennes obtenues à partir de trois répétitions et l'intervalle de confiance (IC) est donné au seuil de 5%.

Dans les conditions dans lesquelles les échantillons ont été analysés lors de nos essais, la limite de quantification était de $1,4 \times 10^3$ UFC/m³ pour le flore cultivable, $1,8 \times 10^5$ CELL/m³ pour le flore totale par épifluorescence et 71 EU/m³ pour les endotoxines.

3.3 Comparaison impaction sur polymère / impaction sur milieu gélosé

La concentration en microorganismes viables dans l'air d'un centre de tri a été évaluée simultanément avec les deux supports de collecte. L'échantillonnage par impaction directe sur le milieu TSA+act ne permet pas de mesurer précisément la concentration totale en bactéries cultivables du fait de la saturation des milieux (Tableau 3). Au contraire, l'utilisation de boîtes contenant le polymère hydrosoluble a permis de mesurer des concentrations en bactéries cultivables comprises entre $4,3 \times 10^4$ et $2,7 \times 10^5$ UFC/m³ pendant l'essai (Tableau 3). La concentration la plus élevée a été obtenue pour le prélèvement qui a débuté à 10h42 juste avant un pic de concentration en particules relevé avec le compteur Grimm et correspondant à la période de fonctionnement du broyeur de déchets dans le hall.

Heure de prélèvement	Bactéries cultivables (UFC/m ³)	
	TSA+act	Polymère
10:04	> 471	9,42 x 10 ⁴
10:23	> 471	4,33 x 10 ⁴
10:42	> 471	2,71 x 10 ⁵
11:00	> 471	9,80 x 10 ⁴
11:17	> 471	1,21 x 10 ⁵

Tableau 3 : Evolution de la concentration en bactéries cultivables dans l'air du centre de tri : Mesurage par impaction directe sur milieu TSA+act et sur le polymère.

Pour la majorité des prélèvements effectués, la concentration en bactéries cultivables mesurée sur l'étage supérieur ($D_{50} = 8 \mu\text{m}$) est environ deux fois supérieure à celle mesurée sur l'étage inférieur ($D_{50} = 0.95 \mu\text{m}$) (données non montrées). Les bactéries cultivables semblent donc d'avantage associées aux particules de taille importante. Des résultats comparables ont été obtenus avec les moisissures cultivables (données non montrées).

3.4 Effet du volume de gélose

Les résultats de mesurages comparés des microorganismes dans l'air de laverie du laboratoire après impaction sur des boîtes contenant deux volumes différents (20 et 5 ml) de milieux de cultures gélosés sont présentés dans la Figure 2. La concentration en bactéries (Figure 2A) ou moisissures (Figure 2B), cultivables tend à être plus importante lorsqu'elle est mesurée par impaction sur les boîtes de Pétri contenant 20 ml de milieu de culture.

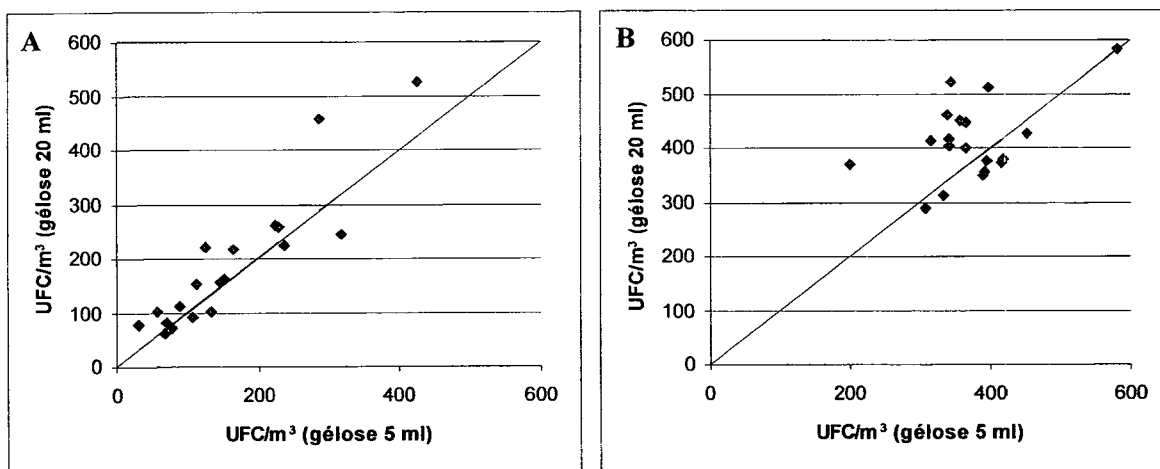


Figure 2 : Effet du volume de gélose présent dans les boîtes de Pétri sur les résultats de mesurage des bioaérosols par impaction directe. **A :** bactéries cultivables. **B :** moisissures cultivables. La courbe pleine représente la bissectrice.

L'analyse statistique confirme cette tendance et révèle, au niveau de confiance de 95 %, un effet significatif du volume de gélose présent dans les boîtes pour les bactéries ($P = 0.029$) et pour les moisissures ($P = 0.033$). Il faut néanmoins signaler que cet effet n'est pas fortement marqué. On peut supposer que la quantité de nutriments disponibles n'est pas un facteur limitant et l'augmentation de la distance « orifice-support de collecte » pourrait être invoquée pour expliquer ces résultats [2].

4 CONCLUSIONS

Le polymère hydrosoluble que nous avons étudié a été développé pour le comptage des microorganismes collectés par cytométrie à balayage. Notre étude montre que ce polymère est également compatible avec le dénombrement des microorganismes par culture sur milieu gélosé et par microscopie à épifluorescence mais interfère avec le dosage des endotoxines par la méthode au LAL. Toutefois, les seuils de sensibilité des méthodes d'analyse que nous avons utilisées dans nos essais révèlent des limites théoriques de quantification importantes pour le mesurage de ces paramètres dans l'air. En particulier, pour le dosage des endotoxines, une dilution au 1/100^e est nécessaire pour lever l'interférence. Il serait intéressant de poursuivre les travaux dans le but d'identifier d'autres paramètres microbiologiques d'intérêt (ADN, ergostérol, [1,3]- β -D-glucanes) compatibles avec ce polymère. L'emploi des boîtes de Pétri contenant le polymère pour l'échantillonnage des bioaérosols s'est avéré pratique et permet d'entrevoir l'utilisation des impacteurs à cribles pour déterminer la concentration en microorganismes cultivables dans des environnements fortement contaminés.

Des travaux complémentaires sont néanmoins nécessaires afin de préciser le domaine d'application du polymère pour le mesurage des microorganismes cultivables (culture sur gélose) et totaux (épifluorescence au DAPI) et des endotoxines dans l'air. D'abord, il apparaît nécessaire d'adapter le processus analytique de ces paramètres afin de diminuer les limites de quantification et d'étendre son utilisation aux milieux faiblement contaminés. Ensuite, une comparaison de l'impaction sur le polymère à une autre méthode d'échantillonnage est nécessaire pour conforter les valeurs de concentration obtenues dans nos essais. Enfin, il semble indispensable d'effectuer des mesures de l'efficacité physique et biologique et, particulièrement, de préciser l'influence de la faible épaisseur de film sur la collecte des microorganismes.

5 RÉFÉRENCES

1. Macher, J.M., *Positive-Hole Correction of Multiple-Jet Impactors for Collecting Viable Microorganisms*. Aihaj, 1989. **50**(11): p. 561-568.
2. Marlpe, V.A. and K.L. Rubow, *Theory and Guidelines*, in *Cascade impactor : sampling and data analysis*, J.P. Lodge and T.L. Chan, Editors. 1986, American Industrial Hygiene Association: Akron. p. 79-101.
3. INRS, *Fiche METROPOL 089/V01 : Endotoxines*. Recueil -Métropol : <http://www.inrs.fr/>, 2005.

Etude des dispositifs épurateurs appliqués à la gestion de la qualité microbiologique de l'air des environnements intérieurs

S. DELABY^(1,3), E. ROBINE⁽¹⁾, P. PETINGA⁽²⁾, P. PETIT⁽²⁾, E. GEHIN⁽³⁾

⁽¹⁾ Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs, CSTB, Département du Développement Durable, Champs sur Marne

⁽²⁾ Laboratoire Qualité des Ambiances Intérieures, Centre Recherche&Innovation CIAT, Culoz

⁽³⁾ Centre d'Etudes et de Recherche en Thermique, Environnement et Systèmes, Université Paris XII, Créteil.

TITLE

Study of air cleaning devices applied to the management of the microbiological quality of the indoor air

ABSTRACT

Numerous techniques have been developed over the years for reducing aerosol exposure in indoor air environments. In this study, a portable air filter devices was evaluated, in realistic conditions, in experimental chamber "ASTERIA". This air cleaning device reduces significantly the human exposure to airborne particles. Indeed, the exposure of occupants decreases by $(73,0 \pm 0,4)$ % for particles (about 0,3 to 3 μm) when the portable air filter operates with a flow of $(253 \pm 10) \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$.

We developed a methodology to evaluate the effectiveness of microbiological air treatment devices in the exposure of occupants. With this intention, we developed an experimental approach on three steps: To validate, in laboratory, processes of purification; To evaluate the effectiveness of air cleaning devices; To evaluate the impact, in realistic conditions, of air cleaning devices on the exposure of occupants.

RESUME

Nous étudions l'impact d'un dispositif épurateur autonome, en conditions réalistes, vis-à-vis de l'exposition des occupants d'un environnement intérieur. Ce dispositif épurateur fonctionne sur le principe de la filtration. Celui-ci est placé dans l'enceinte expérimentale, où il aspire l'air ambiant et souffle un air traité à un débit de $(253 \pm 10) \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. Les premiers résultats expérimentaux démontrent une réduction significative de l'exposition des occupants. En effet, l'exposition du mannequin « témoin » diminue de $(73,0 \pm 0,4)$ % pour les particules de 0,3 à 3 μm .

Ces travaux expérimentaux menés dans l'enceinte expérimentale, ASTERIA, s'inscrivent dans une démarche d'évaluation de l'efficacité des dispositifs épurateurs. La démarche expérimentale développée s'appuie sur trois volets : (1) Valider, en laboratoire, les procédés d'épuration ; (2) Evaluer le rendement des dispositifs épurateur ; (3) Evaluer l'impact des dispositifs épurateur, en conditions réalistes, sur l'exposition des occupants.

INTRODUCTION

La transmission aéroportée des agents pathogènes dans les environnements intérieurs constitue une problématique aiguë, remise en lumière par la crise sanitaire du SRAS en 2003, et aujourd'hui, par les menaces d'une pandémie grippale.

La majorité des infections respiratoires sont transmises par l'air à l'occasion d'émissions rhinopharyngées diffusant, dans l'environnement, des agents pathogènes sous forme d'aérosol. C'est le cas, par exemple, du virus SRAS-CoV responsable du syndrome respiratoire aigu sévère [1]. Sous forme aéroportée, les virus conservent leur capacité à infecter les organismes vivants. A 20°C et à 50% d'humidité relative, la demi-vie du coronavirus humain 229E est de (67 ± 8) heures [2].

Le rôle de la ventilation sur la transmission aéroportée est, aujourd'hui, peu documenté. Cependant, une étude comparant des données épidémiologiques de l'apparition des malades du SRAS dans un hôpital avec un modèle CFD décrivant le transfert particulaire démontre, sans équivoque, l'intervention de la ventilation sur la transmission de l'agent infectieux [3].

Face à ce constat, les moyens techniques pour s'en prémunir sont de deux ordres, soit la mise en œuvre, au niveau des individus, d'une protection physique par l'emploi de masques, de gants et de lunettes, ainsi que la vaccination lorsque celle-ci est possible, soit à l'échelle du bâtiment, l'instauration d'une gestion de la qualité microbiologique de l'air avec notamment l'emploi de systèmes d'épuration de l'air. De nombreux principes d'épuration de l'air sont applicables à la gestion de la qualité de l'air et notamment la filtration, l'ionisation, la filtration électrostatique [4], la photocatalyse hétérogène [5] et les rayonnements ultraviolets [6]. Notre étude vise à explorer l'option de la gestion microbiologique de l'air, par l'utilisation du principe de la filtration, afin d'en juger la pertinence.

La démarche expérimentale adoptée pour évaluer l'efficacité des dispositifs épurateurs s'appuie sur trois axes :

Validation des principes épurateurs : Ce volet de l'évaluation est réalisé en laboratoire à échelle réduite. Cette première étape expérimentale tient lieu d'étape de validation du principe employé pour inactiver les entités microbiologiques, avant d'étendre nos investigations à l'échelle du dispositif, puis du bâtiment.

Evaluation du rendement du dispositif épurateur : Au terme de cette première étape, si celle-ci est concluante (i.e. si le principe étudié induit un abattement significatif sur la survie des microorganismes), nous étudions alors l'efficacité du dispositif épurateur en conditions dynamiques. Celui-ci est soumis à un flux contrôlé d'aérosols microbiologiques, dans une veine aéraulique.

Impact du dispositif épurateur, en situation réaliste, sur l'exposition des occupants : Dans ce dernier volet de la démarche expérimentale, nous abordons la notion d'efficacité des épurateurs vis-à-vis de l'exposition des individus. Aussi, le dispositif est mis en application dans un environnement intérieur contrôlé et réaliste (ASTERIA), où l'exposition aux aérosols microbiologiques, d'un occupant « Témoin », est suivie et analysée.

MATERIELS ET METHODES

L'enceinte expérimentale - L'enceinte expérimentale est un volume ventilé (5,8×5,0×3,1 m), dans lequel se situe un environnement multizone de type tertiaire (Figure 1). Cet environnement de bureau est constitué de trois compartiments, soit deux bureaux et un couloir. Le faux-plafond situé à 2,50 m du sol couvre la surface totale des bureaux et du couloir, soit une surface de 28,7 m². L'espace compris entre le faux-plafond et le plafond de l'enceinte expérimentale constitue une zone non ventilée, d'un volume total de 17,2 m³. Le renouvellement d'air horaire moyen dans chacun des bureaux peut varier entre 2,8 h⁻¹ et 3,8 h⁻¹ (en conservant une pression différentielle nulle entre l'enceinte expérimentale et l'environnement extérieur).

Le confinement de l'enceinte est réalisé par une double enveloppe l'entourant entièrement. Un SAS permet l'accès à l'enceinte expérimentale et à la double enveloppe. La double enveloppe et le SAS sont respectivement maintenus à +45 et +25 Pa. Ces surpressions produisent des entrées d'air au niveau des fuites de l'enceinte expérimentale. Afin de caractériser le débit de ces entrées d'air, nous avons mesuré l'étanchéité de l'enceinte expérimentale par la méthode de mesure décrite dans la norme ASTM Standard E779 [7]. Lorsque l'enceinte expérimentale est en dépression à -45 Pa par rapport à l'environnement extérieur, nous constatons un débit de fuite de 0,3 m³.h⁻¹.m⁻², soit un débit de fuite globale de 12 m³.h⁻¹.

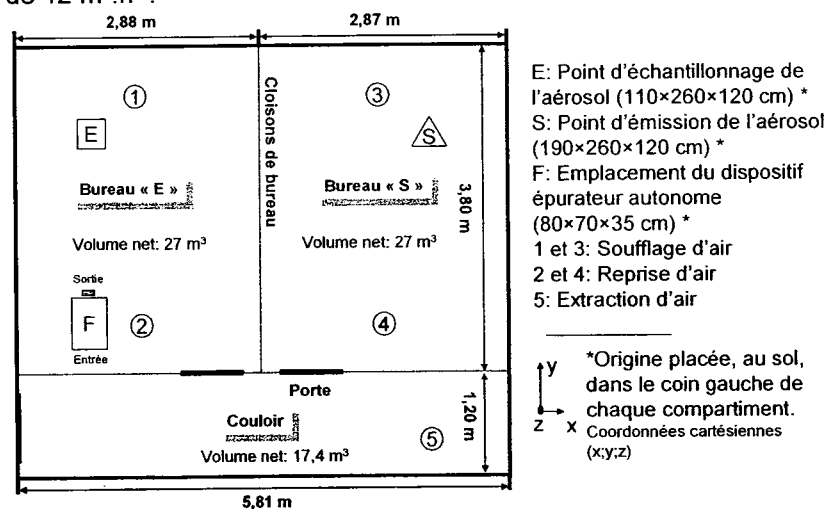


Figure 1 : Plan de l'enceinte située dans la halle expérimentale ARIA (CSTB Champs³/ Marne). La zone quadrillée représente le faux-plafond (2,50 m du sol). Le plafond de l'enceinte expérimentale est situé à 3,10 m du sol. Les voies d'entrée et de sorties d'air se trouvent au niveau du faux-plafond. (Attention: La double enveloppe et le SAS d'accès ne sont pas représentés).

La ventilation - Chacun de ces compartiments est alimenté en air par une centrale de traitement d'air (CTA). Une voie de soufflage et de reprise, ainsi qu'une voie d'extraction d'air, placée au fond du couloir, assure le renouvellement d'air dans les différents compartiments de l'enceinte expérimentale (Figure 2). Les ventilateurs de la CTA et du caisson d'extraction sont pilotés par des variateurs permettant la gestion des débits d'air circulant dans l'enceinte expérimentale. Les débits d'air appliqués dans l'enceinte expérimentale suivent les recommandations du code du travail, soit un débit d'air neuf minimal de 25 m³.h⁻¹ pour ce type d'environnement (bureaux, locaux sans travail physique). L'ensemble du réseau aéraulique système de ventilation est instrumenté par des sondes thermo-

anémométriques afin de suivre les flux aérauliques dans l'enceinte. Toutes ces mesures sont centralisées et enregistrées sur une unité d'acquisition reliée à un ordinateur

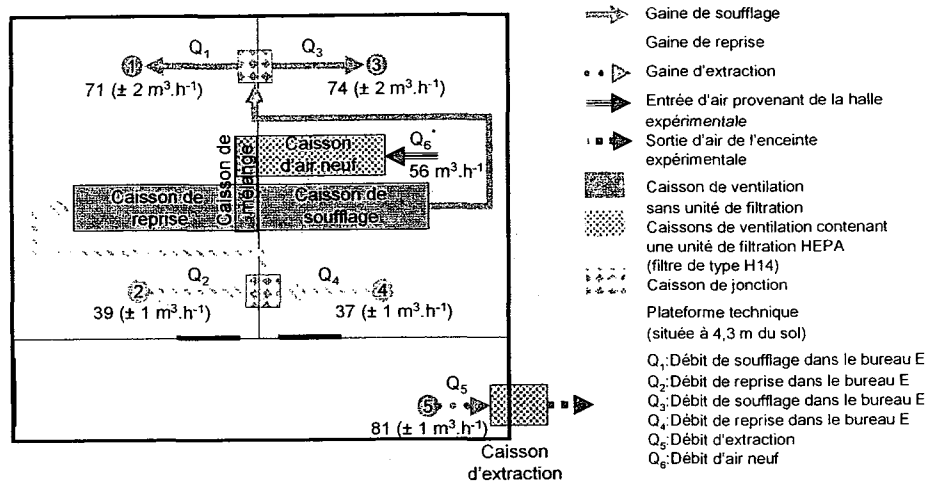


Figure 2 : Représentation schématique du système de ventilation et du réseau aéraulique alimentant l'enceinte expérimentale. Le système de ventilation est installé sur une plateforme technique surplombant l'enceinte expérimentale « ASTERIA ». La CTA est entièrement entourée par un sarcophage (non représenté sur ce schéma) maintenu à + 10 Pa. (* : Le débit d'air à l'entrée d'air neuf est mesuré à l'aide d'une tôle perforée calibrée)

Description du dispositif épurateur – Le dispositif épurateur (80x65x50 cm) fonctionne sur le principe de la filtration. Celui-ci contient un pré-filtre F7 placé en entrée et un filtre H14 en sortie. L'efficacité des filtres H14 est de l'ordre de 99,995% pour les MPPS (Most Penetrating Particle Size), évalué selon la méthode d'évaluation décrite dans la norme NF EN 1822. L'entrée d'air est de forme rectangulaire (55x30 cm) et la sortie de forme circulaire ($\varnothing=20$ cm). Le débit minimum et maximum du dispositif épurateur est de respectivement $(253 \pm 10) \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ et $(2270 \pm 20) \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$.

Mesure de l'aérosol – Pour l'ensemble des essais expérimentaux, la concentration et la distribution en taille de l'aérosol sont mesurées à l'aide d'un compteur optique (Grimm Technology, modèle 1.108). La mesure de l'aérosol est effectuée sur un pas de temps de 6 secondes pour les 16 canaux de mesures allant de 0,3 à 30 μm . Le débit du compteur optique est de 1,2 $\text{l} \cdot \text{min}^{-1}$.

Production d'aérosols et dispositif d'injection - L'aérosol produit durant les expérimentations est obtenu à partir d'une solution saline composée de KCl, NaCl, MgCl, CaCl, K_2PO_4 et KPO_4 (produit pharmaceutique, Artisial®). Nous observons trois modes différents, le premier est inférieur à 0,5 μm , le second entre 0,8 et 1 μm , et enfin, le troisième compris entre 1,5 et 4 μm (Figure 3). La concentration de la source particulaire est identique pour l'ensemble des manipulations. Un générateur pneumatique Collison 3 jets (BGI Inc., Waltham, MA, USA) auquel nous appliquons une pression de 1 bar, produit l'aérosol à partir de 20 ml de solution saline. L'aérosol est déshydraté à l'aide d'air sec filtré circulant à 15 $\text{l} \cdot \text{min}^{-1}$. A un débit total de 20 $\text{l} \cdot \text{min}^{-1}$ et à une humidité relative de $(27,0 \pm 1,4) \%$, l'aérosol est émis dans le bureau S.

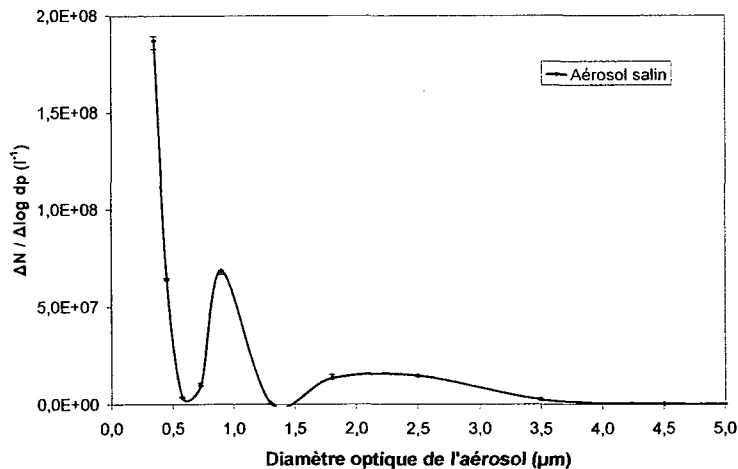


Figure 3 : Courbe granulométrique de l'aérosol salin produit à l'aide d'un générateur pneumatique Collison 3 jet sous une pression de 1 bar et dont le réservoir contient 20 ml de suspension saline (Débit d'air sec de dilution : 15 $\text{l} \cdot \text{min}^{-1}$; débit total de l'aérosol : 20 $\text{l} \cdot \text{min}^{-1}$); les barres d'erreur représentent les minima et les maxima et le point correspond à la médiane; 3 répétitions de la mesure réalisée avec un compteur optique Grimm 1.108.

Après une phase de stabilisation des concentrations particulaires, durant 3 minutes, la production d'aérosol reste stable durant les 15 minutes d'injection de l'aérosol dans l'enceinte expérimentale (Figure 4). Seule la production des particules de 1,0 à 1,6 μm est instable durant la période d'injection. Nous ne tiendrons donc pas compte de cet intervalle granulométrique.

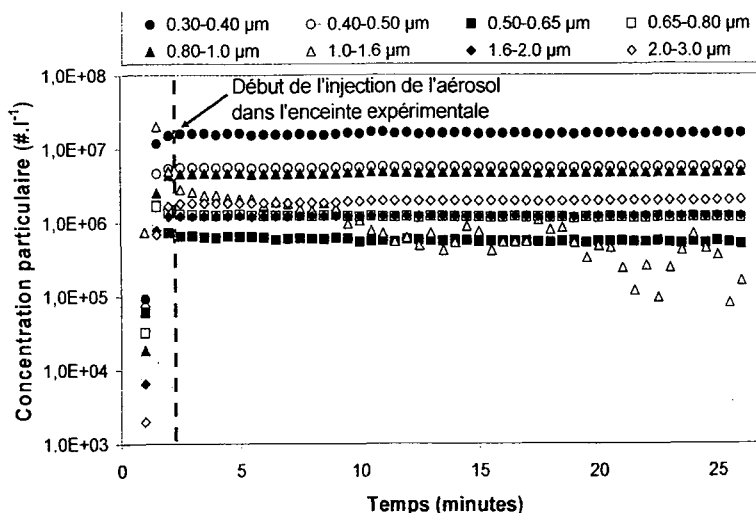


Figure 4 : Mesure de la concentration particulaire (en $\#.\text{l}^{-1}$), mesurée à l'aide d'un compteur optique Grimm 1.108, au niveau de la production d'aérosols. La zone hachurée correspond à la phase de stabilisation et la zone unie, à la phase stationnaire de la production d'aérosols.

Un mannequin instrumenté, de taille réaliste, appelé occupant « source », placé dans le bureau S, simule une présence humaine. La chaîne de production de l'aérosol est située en dehors de l'enceinte expérimentale, en amont de celui-ci. L'aérosol produit est acheminé jusqu'au mannequin par une tubulure d'une longueur de 7 mètres. Les pertes particulaires occasionnées par cette tubulure ont été estimées expérimentalement et sont prises en compte dans l'analyse de nos données.

Dispositif d'échantillonnage - Un mannequin instrumenté, de taille réaliste, dénommé l'occupant « témoin » est installé dans le bureau E. Celui-ci est muni d'une sonde de prélèvement, à bord mince, de 15 mm de diamètre interne, relié par une tubulure de 7 mètres au dispositif d'échantillonnage installé en dehors de l'enceinte expérimentale. Le dispositif d'échantillonnage est constitué d'un système déprimogène dont le débit est réglé à $20 \text{ l}.\text{min}^{-1}$ par un débitmètre à bille et d'une sphère d'homogénéisation. Au niveau de cette sphère, nous mesurons la concentration et la distribution en taille de l'aérosol. Les paramètres de fonctionnement du dispositif d'échantillonnage (soit le débit et les dimensions de la sonde de prélèvement) répondent aux exigences de la convention inhalable relative à la norme NF EN 481 et sont similaire à l'outil validé CalTool [8]. Ce dispositif d'échantillonnage permet la réalisation d'un échantillonnage représentatif d'une exposition humaine aux aérosols.

Procédure expérimentale – Avant chaque manipulation expérimentale, nous effectuons une mise à blanc particulaire de l'enceinte expérimentale. La mise à blanc de l'enceinte expérimentale consiste à augmenter le taux de renouvellement d'air, en ventilation « tout air neuf », afin d'atteindre le bruit de fond particulaire. Une fois cette étape réalisée, nous instaurons les conditions de ventilation expérimentales et nous commençons la mesure de la concentration particulaire, au niveau de l'occupant « témoin ». La concentration particulaire relevée alors, pendant une période minimale de 15 minutes, constitue notre bruit de fond particulaire (Tableau 1).

Intervalles granulométriques							
0,3-0,4 μm	0,4-0,5 μm	0,5-0,65 μm	0,65-0,8 μm	0,8-1,0 μm	1,0-1,6 μm	1,6-2,0 μm	2,0-3,0 μm
78 \pm 28	15 \pm 9	13 \pm 5	10 \pm 2	10 \pm 2	5 \pm 1	3 \pm 2	1 \pm 1

Tableau 1 : Concentration particulaire moyenne ($\#.\text{l}^{-1}$) observée durant la mesure du bruit de fond (n=5 répétitions de la manipulation)

Nous opérons ensuite, l'aérocontamination de l'enceinte expérimentale, par l'injection de l'aérosol. L'instant de l'injection dans l'enceinte expérimentale correspond à notre $t=0$ seconde, où nous commençons à suivre la concentration particulaire au niveau de l'occupant « témoin ». L'injection de l'aérosol dure 15 minutes et les concentrations particulaires à la source sont mesurées. L'exposition de l'occupant « témoin » est suivie durant la totalité du phénomène de contamination de l'enceinte expérimentale, soit jusqu'au retour au bruit de fond particulaire initial.

Détermination de l'efficacité de l'épurateur - Dans un premier temps, nous évaluons l'exposition de l'occupant « témoin » en l'absence de l'épurateur. Puis, nous réalisons l'expérience, dans les mêmes conditions opératoires avec le dispositif épurateur en fonctionnement. Pour chaque expérimentation, nous intégrons les courbes décrivant l'évolution de la concentration particulaire au niveau de l'occupant « témoin », L'efficacité de l'épurateur vis-à-vis de l'exposition de l'occupant « témoin » ($\eta_{Epurateur}$) est calculé, par la formule suivante définie par Lai (2004) [9] :

$$\eta_{Epurateur} = \frac{A_{Off} - A_{On}}{A_{Off}} \times 100$$

Avec,

A_{On} et A_{Off} : Intégration de la courbe décrivant l'évolution de la concentration particulaire, respectivement, en présence et en absence de l'épurateur.

RESULTATS

Transfert particulaire dans l'enceinte expérimentale – La Figure 5 représente l'évolution du rapport entre les concentrations particulières relevées en différents points de l'enceinte expérimentale (au niveau des différentes voies de distribution d'air, ainsi qu'au niveau de l'occupant « témoin ») et la concentration particulaire au niveau de l'occupant « source » (C_{max}). Cette expérimentation nous permet d'appréhender la dynamique de la contamination particulaire dans les différents compartiments de l'enceinte expérimentale.

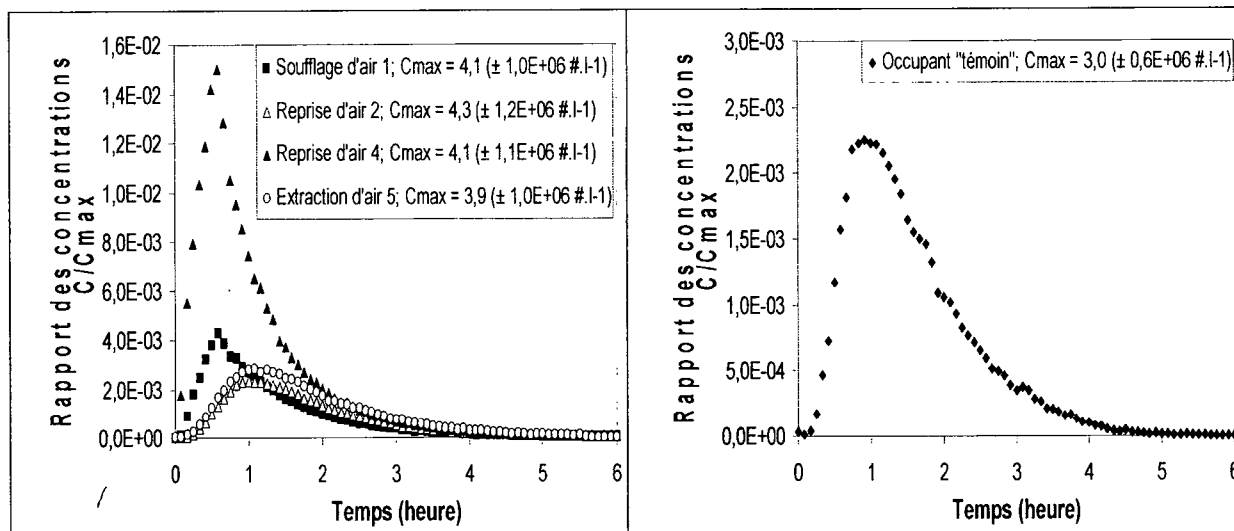


Figure 5 : Evolution des rapports C/C_{max} en fonction du temps, en différents points de l'enceinte expérimentale. La concentration C_{max} correspond à la concentration particulaire moyenne mesurée à la source. L'évolution des concentrations particulières ($0,3$ à $3 \mu m$) suivie à l'aide d'un compteur optique Grimm 1.108.

Nous constatons, fort logiquement, que les concentrations particulières maximum observées et les temps nécessaire pour les atteindre sont différents dans les voies de distribution d'air et au niveau de l'occupant « témoin ». Le Tableau 2 ci-dessous synthétise les données respectives à chacune des courbes C/C_{max} :

	Occupant « témoin » (bureau E)	Reprise d'air 2 (bureau E)	Extraction d'air (couloir)	Soufflage d'air 1 (bureau E)	Reprise d'air 4 (bureau S)
Valeur maximum du rapport C/C_{max}	$2,45 \cdot 10^{-3}$	$3,11 \cdot 10^{-3}$	$3,75 \cdot 10^{-3}$	$5,21 \cdot 10^{-3}$	$1,72 \cdot 10^{-2}$
Comparaison des rapports avec l'occupant « témoin »	1	1,3	1,5	2,1	7,0
Temps nécessaire à l'obtention de la valeur maximum du rapport C/C_{max} (minute)	53,0	56,5	74,1	35,3	32,3

Tableau 2 : Données relatives aux courbes décrivant l'évolution du rapport C/C_{max}

La configuration spatiale dans l'enceinte expérimentale et les pertes particulières sur les surfaces (environnement et système de ventilation) expliquent les différences d'évolution particulaire observées au niveau des points de mesure.

Impact de l'épurateur sur l'exposition de l'occupant témoin - L'application de l'épurateur d'air réduit l'exposition des occupants. L'efficacité $\eta_{\text{Epurateur}}$ est égale à 72,7% (valeur médiane) pour les particules de 0,3 à 3 μm . La manipulation a été répétée 3 fois, fournissant une valeur maximale et minimale d'efficacité égale, respectivement, à 72,0% et 72,9%. De plus, on constate que l'action de l'épurateur est uniforme, avec pour chaque intervalle granulométrique, de 0,3 à 3 μm , un écart-type de 0,36% de l'efficacité. Les courbes d'évolution des concentrations, présentées dans la Figure 6, démontrent l'impact du dispositif épurateur sur l'exposition de l'occupant « témoin ».

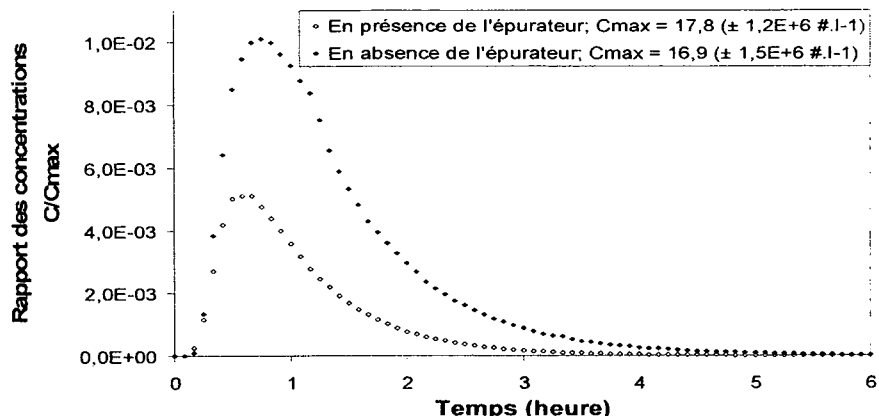


Figure 6 : Evolution des concentrations particulaires (0,3 à 3 μm) au niveau de l'occupant « témoin », en absence et en présence du dispositif épurateur. Les concentrations particulaires émises au niveau de l'occupant « source » (C_{max}) et les temps d'émission sont identiques pour les deux expérimentations. Le comptage particulaire a été réalisé à l'aide d'un compteur optique Grimm 1.108.

À la vue des courbes présentées dans la Figure 6, nous constatons une diminution de 49% de la concentration particulaire maximale observée. De plus, les constantes de décroissance de la concentration particulaire sont, en absence et en présence du dispositif épurateur, respectivement, égales à 1,2084 h^{-1} et 1,5127 h^{-1} . Ainsi, l'utilisation de l'épurateur diminue le temps d'exposition de l'occupant aux polluants particulaires.

CONCLUSION

Les premiers résultats présentés démontrent l'écart existant entre l'efficacité du filtre H14 testé en veine aéraulique (99,995% pour les MPPS) et l'impact d'un dispositif de filtration, mis en situation, sur l'exposition des occupants d'un bâtiment. Cette différence observée démontre l'intérêt de la démarche expérimentale employée et demande d'autres investigations sur les conditions d'utilisation des dispositifs épurateurs (débit de fonctionnement et emplacement dans l'environnement).

L'approche expérimentale de l'analyse des transferts particulaires dans l'enceinte expérimentale sera complétée par une approche numérique. De plus, les prochains travaux seront menés avec un aérosol microbiologique, afin d'évaluer l'impact des épurateurs fonctionnant sur un principe d'inactivation (i.e. photocatalyse, rayonnement ultraviolet, plasma froid).

REFERENCES

1. Booth T. F., Kournikakis B., Bastien N., Ho J., Kobasa D., Stadnyk L., Li Y., Spence M., Paton S., Henry B., Mederski B., White D., Low D. E., McGeer A., Simor A., Vearcombe M., Downey J., Jamieson F. B., Tang P., and Plummer F., Detection of airborne severe acute respiratory syndrome (SARS) coronavirus and environmental contamination in SARS outbreak units. *J Infect Dis*, 2005. 191(9): p. 1472-7.
2. Ijaz M. K., Brunner A. H., Sattar S. A., Nair R. C., and Johnson-Lussenburg C. M., Survival characteristics of airborne human coronavirus 229E. *J Gen Virol*, 1985. 66 (Pt 12): p. 2743-8.
3. Yu I. T., Wong T. W., Chiu Y. L., Lee N., and L. Y., Temporal-spatial analysis of severe acute respiratory syndrome among hospital inpatients. *Clin Infect Dis*, 2005. 40(9): p. 1237-43.
4. Offermann, F.J., R.G. Sextro, W.J. Fisk, D.T. Grimsrud, W.W. Nazaroff, A.V. Nero, K.L. Revzan, and J. Yater, Control of respirable particles in indoor air with portable air cleaners. *Atmospheric Environment (1967)*, 1985. 19(11): p. 1761.
5. Vohra, A., D.Y. Goswami, D.A. Deshpande, and S.S. Block, Enhanced photocatalytic disinfection of indoor air. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2006. 64(1-2): p. 57.
6. Kethley T. W. and Branch K., Ultraviolet lamps for room air disinfection. *Arch. Environ. Health*, 1972. 25: p. 205-214.
7. ASTM Standard E779, Standard test method for determining air leakage by fan pressurization. *American Society of Testing and Materials*, 1999.
8. Witschger O., Mark D., Aitken R., Beaumont G., Lidén G., Koch W., and Komhout H., Développement d'un outil pour l'évaluation in situ des performances des échantillonneurs individuels d'aérosols. *Congrès Français sur les aérosols*, 2001: p. 148-154.
9. Lai, A.C.K., Modeling of airborne particle exposure and effectiveness of engineering control strategies. *Building and Environment*, 2004. 39(6): p. 599.

L'EXPLOSION DE POUSSIÈRES :

UN VIEIL ENNEMI AUX NOUVEAUX VISAGES

O. Dufaud, L. Perrin, S. Chazelet et D. Thomas

Nancy-Université
Groupe SISYPHE, Sécurité Industrielle et SYstèmes Particulaires HÉTérogènes
Laboratoire des Sciences du Génie Chimique, UPR 6811 - CNRS
1 rue Grandville, BP 20451, 54001 Nancy, France
dufaud@ensic.inpl-nancy.fr

TITLE

DUST EXPLOSIONS: AN EVERLASTING AND CHANGEABLE FOE

ABSTRACT

That is common knowledge that flammable gas or vapours could explode (Feyzin, Flixborough...), but the explosivity of dusts is not well-known. However, major accidents as those of Corpus Christi or Gullaug demonstrate the gravity of such phenomenon.

Dust explosions have been scientifically studied for 250 years, when the first dust explosion has been documented in Turin. These researches demonstrated that dust explosion severity and sensibility depend on several factors as the combustible concentration, the particle size, the turbulence, the ignition source... Nevertheless, due to new materials appearance or use, these researches seem to turn onto other themes as nanoparticles, solid/solid mixtures or vapour/dusts hybrid mixtures...

This article will provide keys to understand and counter this phenomenon. Then, some trends in dust explosions research will be underlined.

RESUME

S'il est de notoriété publique que des gaz combustibles ou des vapeurs de solvants peuvent s'enflammer jusqu'à produire une explosion (Feyzin, Flixborough...), le caractère explosif des poussières est d'emblée moins évident, bien que la survenue d'accidents majeurs le rappelle trop fréquemment (mines de Courrières, Corpus Christi, silos de Blaye...).

L'étude de ces risques majeurs, commencée dès la fin du XVIII^{ème} siècle, semble connaître un tournant avec l'apparition de nouveaux matériaux pulvérulents, l'utilisation de plus en plus courante de particules de tailles nanométriques et l'emploi de mélanges hybrides solvants/poudres ou solides/solides...

Cet article dresse donc un portrait synthétique des explosions de poussières et des moyens d'analyse et d'actions afférents. Un éclairage particulier sera proposé sur l'étude de certaines thématiques émergentes ayant, après validation des méthodes et appareillages existants, dégagé des tendances originales.

Introduction

Ignorées par certains, méconnues par beaucoup, les explosions de poussières ont longtemps fait figure de serpent de mer dans le domaine de la sécurité industrielle ; cette thématique ne réapparaissant qu'à l'occasion d'accidents d'une gravité remarquable. Néanmoins, à quelque chose malheur est bon, et la nécessité de considérer ces phénomènes à leur juste importance n'est désormais plus discutable. Pourtant, l'ennemi d'hier n'est plus tout à fait celui d'aujourd'hui et les mutations des activités industrielles ont façonné le nouveau visage des risques d'explosions de poussières. Nanoparticules d'aluminium, mélanges hybrides de principes actifs et d'excipients, synthèses de produits pulvérulents en milieux organiques volatils... les recherches en sécurité ne peuvent se contenter de filatures, elles doivent également devancer le prochain méfait de cet ennemi public sempiternel mais versatile.

1. Un vieil ennemi

1.1. Son portait-robot

Indices après indices, il a été possible de dresser un portait impressionniste mais fidèle d'une explosion de poussières. En voici quelques traits remarquables.

Les explosions de poussières résultent de l'inflammation de matières inflammables organiques ou métalliques à l'état divisé, en suspension dans un milieu gazeux comburant - le plus souvent l'air. Tout matériau solide pouvant brûler, dans une atmosphère propice, le fera avec d'autant plus de violence et de rapidité que le degré de subdivision du matériau augmentera. Si le degré de subdivision est suffisant pour que ces particules puissent être mises en suspension dans une gamme de concentrations explosives au sein d'une atmosphère comburante, la vitesse d'oxydation du matériau sera telle que la combustion sera qualifiée d'explosion de poussières. Lorsque l'inflammation de la poussière se produit dans un espace confiné, elle s'accompagne d'effets thermiques importants mais également d'effets mécaniques qui dépendent de la surpression induite par l'explosion et de la vitesse d'augmentation de la pression. Le « degré de subdivision » est notamment précisé dans l'article R232-5-1 du Code du Travail où le terme « poussière » est conféré à « toute particule solide dont le diamètre aérodynamique est au plus égal à 100 μm ou dont la vitesse limite de chute, dans les conditions normales de température, est au plus égale à 0,25 mètre par seconde ». La qualification de la NFPA - NFPA 654 - est plus vaste puisqu'elle inclut toute particule de diamètre inférieur à 420 μm (NFPA, 2006).

Ce phénomène, moins fréquent et moins documenté que les explosions de gaz dans la vie courante, nécessite une touche de persuasion pour faire accepter l'idée qu'une poussière manipulée dans une installation présente, de par ses caractéristiques techniques et les conditions de sa manipulation, un risque d'explosion de poussière quantifiable.

Pourtant, une étude de l'Institution of Chemical Engineers rapporte qu'en moyenne une explosion de poussières par jour se produit en Europe. Ce risque a été amplifié par l'industrialisation, l'augmentation des capacités de stockage, l'accroissement des productivités mais surtout par le nombre croissant de produits pulvérulents à faibles granulométries. La fréquence de ces explosions varie grandement selon la nature des produits : un tiers de ces phénomènes a lieu en présence de bois ou de céréales, un quart est dû aux produits alimentaires et un cinquième aux poudres métalliques. Quant à leur localisation, les filtres et cyclones génèrent près de 20 % des explosions de poussières, contre 17 % pour les broyeurs et moulins et 15 % pour les sècheurs.

1.2. Son casier

Dire que la première explosion de poussières s'est produite en 1785 reviendrait à fixer l'origine de l'humanité en 1440, au temps de Gutenberg. Néanmoins, il s'agit bien de la date de la première explosion de poussières référencée à Turin dans la boulangerie de Mr Giacomelli. Cette explosion de farine fit pour la première fois l'objet d'un récit circonstancié dans les Mémoires de l'Académie des Sciences de Turin.

Nous pouvons déplorer à ce jour de nombreux accidents meurtriers liés aux explosions de poussières, parmi lesquels nous notamment pouvons citer (Eckhoff, 2003) :

- la destruction de l'usine de Gullaug et la disparition de cinq de ses salariés lors de l'explosion de poussières d'aluminium (1973, Norvège) ;
- l'explosion de sorgho de Corpus Christi, tuant 9 personnes et en blessant 30 autres (1981, Texas). Les dégâts sont estimés à 30 millions de dollars ;
- l'explosion de poussières de lin à Harbin qui ôta la vie de 58 personnes et en blessa 117 autres (1987, Chine).

En France, une étude rapide de la base de données ARIA du BARPI montre que près de 110 accidents peuvent être recensés pour une période allant de 1980 à 2005 ; sans pour autant que cette information soit exhaustive. Les explosions plus récentes des silos de Blaye en 1997 (11 morts, 1 blessé) et de Metz en 1982 (12 décès), ne doivent pas faire oublier le coup de poussier(e) de la mine de Courrières, le 10 mars 1906 (1099 morts).

1.3. Sa surveillance

Si le premier signalement détaillé d'une explosion de poussière a été fourni en 1785, les premières études visant à reproduire et analyser ce phénomène ont été plus tardives. Signalons notamment qu'en 1875, Vital comparait de façon relative des poussières à partir de la longueur et de la forme de la flamme qu'elles produisaient au contact d'un gaz enflammé (Barknecht, 1989). Le premier appareil de mesure de l'explosivité d'une poussière a été quant à lui répertorié entre 1933 et 1935 en Allemagne. La simplicité des appareillages de la première heure et la subjectivité des critères d'études ont conduit à la création d'un parc fourni d'appareillages dédiés à la caractérisation de ces combustions. Les contributions plus récentes du Bureau of Mines des Etats-Unis (bombe de Hartmann) et de Siwek (sphère d'explosivité de 20 L) méritent d'être soulignées.

2. Mieux faire sa connaissance

2.1. Grain par grain

A l'instar d'une enquête policière ou d'une instruction judiciaire, le travail de recherche concernant l'explosivité de matériaux pulvérulents doit être rigoureux et les conditions opératoires parfaitement maîtrisées sous peine d'obtenir des résultats discutables ou non transposables. Comme pour elle, des précautions doivent être prises afin que ses acteurs puissent travailler dans les meilleures conditions de sécurité qui soient (masques FFP2 ou FFP3, système d'extraction des poussières, abattage des effluents gazeux...).

L'étude préliminaire d'une poudre oxydable ne se résume pas essentiellement à la caractérisation de sa distribution granulométrique, bien que cette connaissance soit indispensable. Des paramètres tels que la pureté (présence d'additifs, d'impuretés...), le degré d'oxydation (présence d'une couche de passivation...), la forme ou l'état de surface (observé au microscope électronique à balayage) doivent aussi être collectés.

Sous réserve de se trouver en présence de poussière - définie comme telle - l'analyse granulométrique des poudres (menée par exemple par granulométrie laser) permet de déterminer leurs diamètres caractéristiques. Si les représentations en diamètre volumique moyen d_{50} sont coutumières, maintes études ont démontré que les paramètres influents étaient en fait le d_{10} et le diamètre de Sauter $d_{3,2}$: le premier soulignant l'importance des fines particules dans le processus d'inflammation et le second mettant en exergue la surface réactionnelle disponible pour le processus d'oxydation.

Après une éventuelle étape de filtration, l'affinité des échantillons de poussières et de l'humidité est ensuite testée. En effet, bien que ce paramètre soit trop souvent omis des études et les normes, il a été démontré qu'une incertitude de quelques pourcents sur l'humidité relative ou la teneur en eau des composés peut grandement modifier les résultats d'explosivité ; en corollaire, l'absence de ces informations rend ces mêmes données quasi-inexploitables. Le lien entre l'humidité relative et la teneur en eau des produits (isotherme de sorption) est fourni à l'aide d'une balance de sorption. En général, les poudres sont séchées sous vide avant analyse ; toutefois, certaines études peuvent nécessiter le stockage préalable des composés sous atmosphère contrôlée ou l'adjonction d'eau lors du processus d'explosion.

Enfin, des analyses thermiques (ATD) et thermogravimétriques (ATG) sont fréquemment menées afin de cerner les paramètres cinétiques d'oxydation des poussières.

Par convention, une explosion de poussière est souvent caractérisée par deux paramètres nommés « sensibilité » et « sévérité » (ou violence).

2.2. Un tempérament impulsif...

La sensibilité à l'inflammation de matériaux pulvérulents est définie par la combinaison des trois paramètres suivants : l'énergie minimale d'inflammation (EMI), la température minimale d'inflammation (TMI) et la concentration minimale explosive (CME). Un indice de sensibilité peut être proposé en prenant le charbon de Pittsburgh comme référence (Jacobson, Cooper and Nagy, 1964) :

$$I_{\text{Sens}} = \frac{(EMI \cdot TMI \cdot CME)_{\text{Charbon de Pittsburgh}}}{(EMI \cdot TMI \cdot CME)_{\text{Echantillon}}}$$

L'énergie minimale d'inflammation correspond à la plus basse énergie électrique capacitive permettant d'enflammer facilement un nuage de poussières combustible - air à pression atmosphérique et à température ambiante. Les mesures se font généralement à l'aide du tube Hartmann modifié (Kühner AG) selon la norme IEC 1241-2-3 (IEC, 1994b). Elles consistent à faire jaillir une étincelle électrique entre deux électrodes au cœur du nuage de poussières mis en suspension dans l'air et à examiner l'occurrence ou non d'une inflammation dans ce volume donné. L'EMI des nuages de poussières se situe globalement entre 10^{-1} et 10^5 mJ.

L'augmentation de la température d'un mélange poussière combustible - air revient à accroître son énergie. Il est donc concevable qu'il existe une valeur de la température pour laquelle la réaction de combustion s'amorce spontanément en produisant un phénomène dit d'auto inflammation. Expérimentalement, la TMI est la température minimale de l'atmosphère interne d'un four au contact de laquelle un nuage de poussières combustible s'enflamme spontanément (Siwek and Cesana, 1995). A titre d'exemple, la TMI en nuage du sucre glace est d'environ 540°C. Les mesures peuvent être réalisées au regard de la norme internationale IEC 1241-2-1 (IEC, 1994a) à l'aide d'un four vertical Godbert-Greenwald (Chilworth Technology). Il s'agit d'introduire la poudre dans le four grâce à un système de dispersion pneumatique. Le mélange poussières - air transverse alors un tube vertical en silice chauffé électriquement. La base du tube débouche à l'atmosphère à l'aplomb d'un miroir incliné qui permet d'observer d'éventuelles inflammations.

La concentration minimale explosive est la concentration en dessous de laquelle une explosion ne peut plus se produire par défaut de combustible. Elle est mesurée soit à l'aide du tube de Hartmann modifié, soit grâce à la sphère de 20 L dont la description suit. Des valeurs typiques de l'ordre de 30 à 250 g.m⁻³ sont retenues pour les poussières combustibles.

2.3. Et violent

La sévérité des explosions de poussières est définie en référence au charbon de Pittsburgh par combinaison de deux caractéristiques P_{max} et $(dP/dt)_{max}$ (Jacobson, Cooper and Nagy, 1964) :

$$I_{Sev} = \frac{(P_{max} \cdot dP/dt_{max})_{Echantillon}}{(P_{max} \cdot dP/dt_{max})_{Charbon\ de\ Pittsburgh}}$$

Ces deux paramètres sont le plus souvent déterminés à l'aide d'une sphère d'explosion de 20 L (Kühner AG) qui permet de suivre la progression de la pression en fonction du temps lors d'une explosion (figure 1) (Callé et al., 2005). La courbe obtenue permet d'identifier la vitesse maximale de montée en pression $(dP/dt)_m$ au point d'inflexion, ainsi que la pression maximale P_m . Les maxima de ces valeurs en fonction de la concentration en poussières se nomment respectivement $(dP/dt)_{max}$ et P_{max} (Laurent, 2003). Des pressions maximales de 17 bars et des vitesses optimales de montée en pression approchant 2500 bar.s⁻¹ sont quelquefois atteintes pour des poudres métalliques (magnésium, aluminium...).

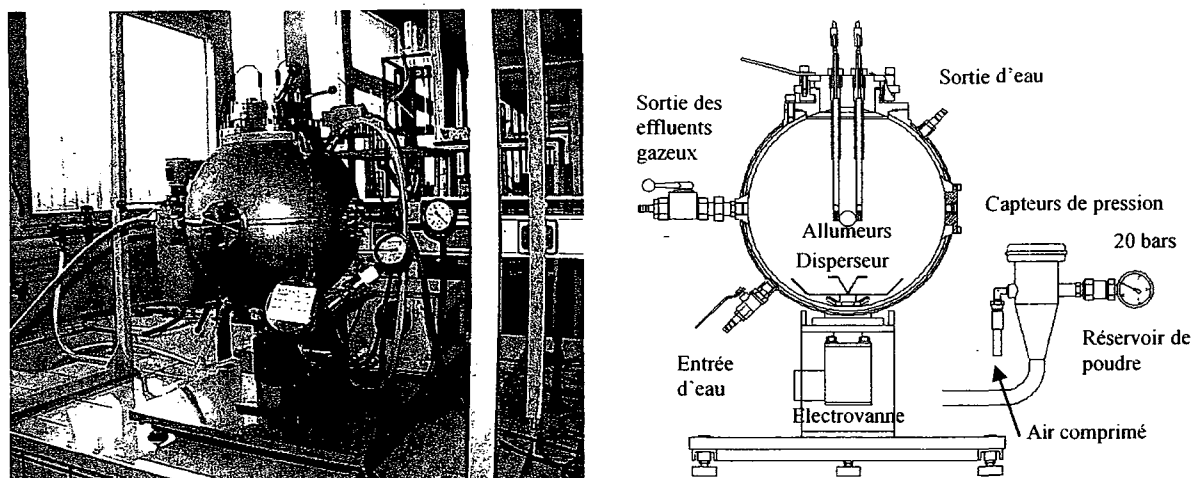


Figure 1. Photographie et schéma de la sphère d'explosion de 20L.

Les essais sont conduits en introduisant une masse de poudre donnée dans un réservoir de 0,6 litre, pressurisé à l'air sous 20 bars selon les normes internationales ISO 6184/1 (ISO, 1985) ou ASTM E1515 (ASTM, 2006). La poudre est mise en suspension dans la sphère via une électrovanne à ouverture rapide permettant sa dispersion par un jet d'air comprimé. La source d'inflammation, constituée de deux allumeurs pyrotechniques de 5 kJ chacun, est placée au centre de la sphère. Une

double enveloppe permet d'évacuer l'énergie libérée durant les explosions par circulation d'un fluide caloporteur. Deux capteurs de pression permettent de recueillir l'évolution temporelle de la pression interne de la sphère.

Au final, la connaissance de l'inflammabilité et de la violence d'explosion d'une poussière permet de définir l'indice d'explosion, qui sert à définir le danger relatif d'une poudre, allant de faible à sévère (Jacobson, Cooper and Nagy, 1964) :

$$I_{\text{Explosion}} = \frac{(EMI \cdot TMI \cdot CME)_{\text{Charbon de Pittsburgh}} \cdot (P_{\text{max}} \cdot dP/dt_{\text{max}})_{\text{Echantillon}}}{(EMI \cdot TMI \cdot CME)_{\text{Echantillon}} \cdot (P_{\text{max}} \cdot dP/dt_{\text{max}})_{\text{Charbon de Pittsburgh}}}$$

Ainsi et de manière globale, les explosions de sucre glace ou de farine seront qualifiées de faibles alors que celles de poussières métalliques se verront très probablement attribuer l'adjectif sévère.

2.4. Sous influence

Les caractéristiques précédemment citées sont loin d'être immuables. Si elles varient de manière évidente avec la nature du produit pulvérulent, elles sont également dépendantes de facteurs aussi variés que la distribution granulométrique, la turbulence du milieu, la température, la concentration en oxygène (Cashdollar, 2000) (Pilão, Ramalho, and Pinho, 2006a) (Proust, 2006)...

Nous noterons de manière synthétique que la violence et la sensibilité des explosions croissent lorsque la taille des particules s'amenuise. Cet aspect sera évoqué ultérieurement lors de l'examen des propriétés des nanoparticules. La concentration en poussières, comme celle d'un gaz combustible, présente une zone pour laquelle l'explosion est chimiquement possible., comprise entre CME et concentration maximale d'explosion. La proximité de la concentration stoechiométrique assure généralement une forte sensibilité et sévérité des explosions déclenchées dans cette zone. Enfin, une augmentation notable de la turbulence du nuage de poussières, de la pression initiale ou de l'énergie délivrée par la source d'inflammation auront tendance à promouvoir l'explosion.

3. Ses nouveaux visages

Il n'existe pas d'explosions de poussières « types » tant leurs caractéristiques varient en fonction des conditions opératoires. Cette variabilité et le grand nombre de paramètres influents conduiraient à étudier pléthore de cas. L'un des enjeux actuels majeurs consiste d'ailleurs à modéliser au mieux les explosions de poussières dans toute la richesse de leurs phénomènes afin contenir cette diversité (Callé et al., 2005). Par conséquent, nous avons décidé de n'aborder ici que quelques aspects représentatifs de thématiques émergentes au sein du microcosme de la recherche sur les explosions de poussières (Eckhoff, 2005).

3.1. Comme deux gouttes d'eau

La présence d'humidité en terme d'explosion de poussières est souvent considérée comme un bienfait. Qu'elle entraîne l'agglomération et donc la sédimentation des particules, qu'elle inhibe le processus d'inflammation ou qu'elle absorbe une partie de la chaleur libérée par ces réactions exothermiques, l'eau est quelques fois présentée comme le meilleur des remèdes (Nagy & Verakis, 1983). Or, si ces bénéfices sont patents avec la plupart des produits organiques (farine de bois, poudres polymères...) - hormis en présence de réaction d'hydrolyse ou de fermentation -, ils sont loin d'être évidents pour les poussières métalliques.

Des études ont notamment été menées afin de déterminer l'impact de l'humidité sur les explosions de poussières d'aluminium. Afin de découpler les effets inhibiteurs et promoteurs de l'eau, deux séries d'expériences ont été proposées : d'une part, des explosions d'aluminium séché sont générées dans la sphère en présence d'une atmosphère à humidité contrôlée (figure 2) ; d'autre part, l'aluminium est mis en équilibre dans une atmosphère à humidité contrôlée avant d'être testé dans la sphère d'explosion (figure 3). Cette double procédure a nécessité la modification de la sphère de 20 L afin de lui adjoindre un système d'injection de liquide.

La première méthode permet de vérifier l'effet inhibiteur de l'eau sans modifier la structure des matériaux étudiés. En effet, le temps de contact est ici insuffisant pour tenir compte de la sorption de l'eau sur les poudres d'aluminium. Bien que les quantités d'eau introduites soient relativement faibles (le volume de saturation étant de 0,3 mL), la pression maximale d'explosion est réduite de près d'un bar à saturation (figure 2). Néanmoins, en considérant l'enthalpie de vaporisation de l'eau, un tel volume devrait conduire à une baisse de P_m de 0,2 bars. Le seul point de vue thermodynamique n'est donc pas suffisant pour expliquer cet effet inhibiteur. D'autres manipulations, considérant particulièrement le paramètre $(dP/dt)_m$, ont démontré l'effet inhibiteur de l'eau sur l'inflammation des particules et sur la cinétique d'oxydation. Cette tendance s'amenuise progressivement une fois la saturation passée.

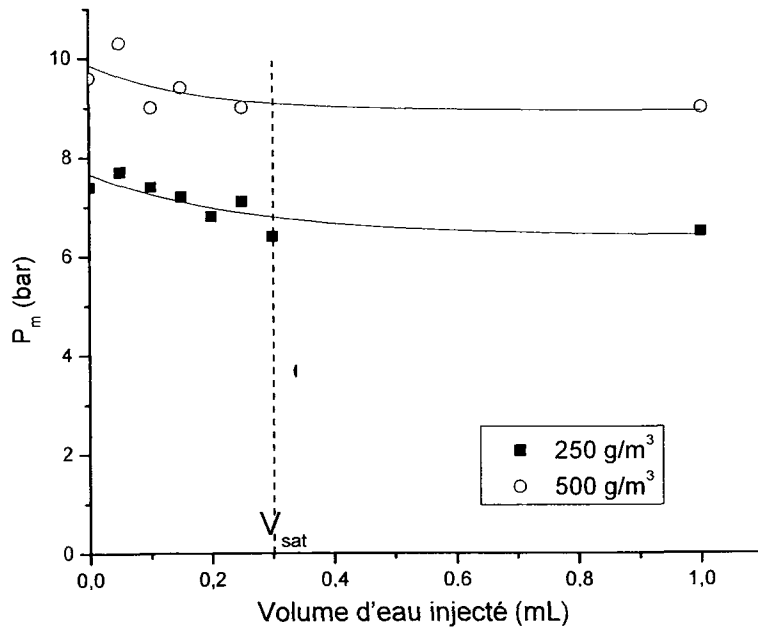


Figure 2. Influence de l'humidité relative de l'atmosphère sur l'explosivité des poussières d'aluminium de 7 µm de diamètre pour deux concentrations de 250 et 500 g/m³

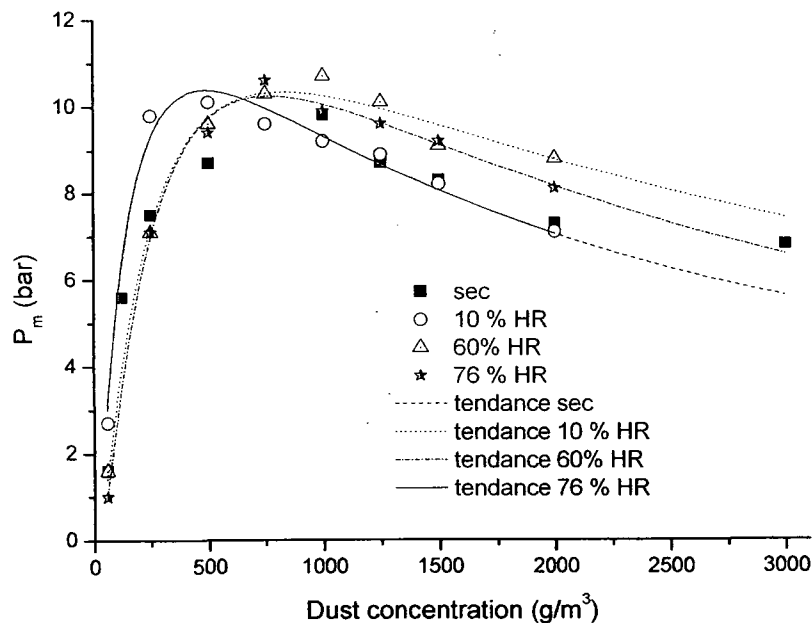


Figure 3. Influence de l'humidité relative sur l'explosivité des poussières d'aluminium, de 7 µm de diamètre, stockées en atmosphère contrôlée.

Toutefois, le caractère amphotère de l'aluminium s'exprime lorsque les poussières séchées sont mises en contact avec une atmosphère humide pendant deux heures, puis enflammées en atmosphère sèche. La figure 3 montre que les conditions de stockage ont un impact notable sur la pression maximale d'explosion, notamment à 60 et 76 % d'humidité relative. Cette promotion, observée également pour la vitesse de montée en pression, est due à une réaction entre l'eau et l'aluminium qui libère de l'hydrogène (Kwok et al., 2002). Des vitesses de montée en pression considérables, de l'ordre de 2500 bar.s⁻¹, ont été observées à cette occasion. L'interaction de l'eau et de la poussière métallique est attestée par l'isotherme de sorption de l'aluminium : les quantités adsorbées (de l'ordre de 0,53 g d'eau pour 100 g d'aluminium) sont sensiblement les mêmes pour 60 et 76 % d'humidité relative, ce qui explique la concordance des valeurs en figure 3. Cet exemple montre qu'il est ô combien dangereux d'éluder l'influence de l'eau lors des analyses de risques, tant d'un point de vue quantitatif que d'un point de vue qualitatif. Cette remarque vaut

également pour bon nombre de normes et de standards qui écarte ce paramètre sans autre forme de procès.

Enfin, mais avant tout, notons que lorsque l'humidité n'est pas spécifiée, la comparaison des valeurs d'explosivité est délicate, si ce n'est impossible.

3.2. Association de malfaiteurs

Les produits industriels, même si nous nous limiterons ici aux matériaux pulvérulents, sont fréquemment rencontrés sous la forme de mélanges : mélanges d'excipients dans l'industrie pharmaceutique, de céréales en minoterie, de pigments en peinture... Or, la propension à l'inflammation d'un mélange combustible est certes fonction de la source d'ignition, mais également de la nature et de la concentration de chacun des produits. Cependant, il est peu commun de tenir compte de l'évolution de l'énergie minimale d'inflammation de ces combustibles en fonction de leurs proportions. La plupart du temps, seul le composé majoritaire est considéré. Qui plus est, d'après la littérature, une composition moyenne de 50 à 80 % massique en solide pulvérulent inerte dans une poussière inflammable suffit à rendre le mélange inerte (Laurent, 2003). Pourtant, la pratique nous démontre quelques fois qu'une faible proportion de composés extrêmement inflammable (à hauteur de 5% en masse) modifie foncièrement l'inflammabilité du mélange.

Ainsi, des travaux ont été initiés sur l'inflammabilité des mélanges hybrides solide/solide - rappelons qu'un mélange est considéré comme hybride dès qu'il met en présence deux composés inflammables, quelles que soient leurs proportions. Afin de mener à bien cette étude, nous avons donc mis au point un protocole permettant d'obtenir les valeurs les plus représentatives possibles, en s'assurant de la répétabilité et de la reproductibilité des mesures de TMI et d'EMI (granulométrie, humidité, mélange...). Les expériences menées au laboratoire du groupe Sisyphe sur les mélanges MCC (Cellulose microcristalline) – Niacine et MCC - Soufre ont en particulier montré que les valeurs de 50 et 80 % avancées précédemment sont assez approximatives, voire largement sous estimées, et ne doivent en aucun cas être généralisées. Nous avons estimé que ces mélanges sont effectivement « inertés » pour des compositions massiques en MCC (composé le moins inflammable) de 95% et 85%, respectivement (figure 4).

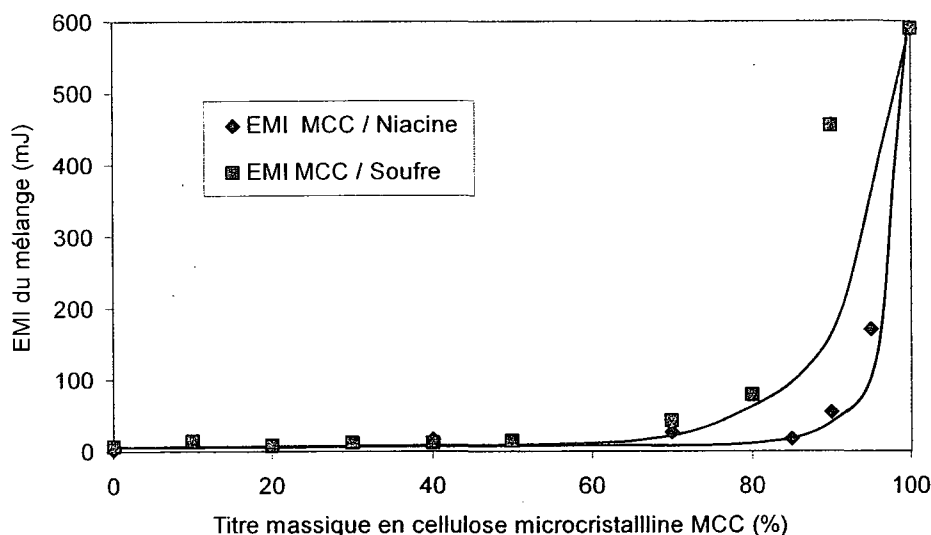


Figure 4. Effet du titre massique en cellulose microcristalline sur l'énergie minimale d'inflammation EMI des mélanges MCC/Niacine et MCC/Soufre. Poudres séchées avant essai – concentrations de 750 g.m^{-3} .

La figure 4 montre que l'EMI chute rapidement pour le mélange MCC - Niacine jusqu'à atteindre une vingtaine de millijoules dès 85% en MCC. En revanche, pour le mélange MCC - Soufre, la chute de l'EMI est plus faible jusqu'à des teneurs avoisinant 85%, avant de diminuer brutalement à 79 mJ pour une composition massique de 80% en MCC. Par la suite, les EMI chutent progressivement jusqu'à des valeurs de 3 et 7 mJ, correspondant aux produits purs.

Ainsi, l'EMI des mélanges hybrides semble répondre à un phénomène à seuil de type percolation. Plusieurs hypothèses peuvent être soumises afin d'expliquer ce comportement. Signalons notamment que ce phénomène est aussi observé pour la conductivité d'un mélange hybride solide/solide.

L'hypothèse d'une séparation physique balistique significative des particules de granulométries différentes ne peut également pas être totalement écartée.

En conséquence, la préconisation d'un inertage par un solide incombustible ou moins inflammable introduit à hauteur de 50 à 80 % massique devrait être reconsidérée.

3.3. De vieux complices

Les explosions de gaz, de vapeurs ou de poussières ont été abondamment documentées et étudiées depuis de nombreuses années. Il n'en est pas de même des explosions de mélanges hybrides : gaz ou vapeurs combinés à des poussières (Pilão, Ramalho, and Pinho, 2006b) (Pellmont, 1979). Pourtant les exemples de procédés ayant recours à ces mélanges sont nombreux : dans les industries graphiques (pigments et solvants), les mines (poussières et méthane), les minoteries (céréales et gaz de fermentation)... Fréquents sont également les incidents ou accidents inhérents à ces combinaisons (Le Boulou - 1989 : liège et vapeurs de colle, Bon-Encontre - 2004 : principes actifs pulvérulents et isopropanol...). Or, lors des analyses de risques, ces mélanges bénéficient rarement de traitements spécifiques.

Les recherches du groupe Sisyphe se sont focalisées sur des produits pharmaceutiques allant des excipients (stéarate de magnésium), vitamines (B3, niacine) aux principes actifs (antibiotique). Des sphères d'explosion de différents volumes ont été modifiées et utilisées afin d'étudier les influences des concentrations en poudre et en solvants usuels (éthanol, toluène, acétone, éther diisopropylique...) et de la température sur la sensibilité à l'inflammation et la sévérité des explosions. Comme nous pouvons le constater sur la figure 5, les résultats expérimentaux démontrent clairement le particularisme de ce type de mélanges. Des effets de synergie entre la poussière et le solvant sont observés, principalement au niveau de la cinétique de développement des explosions et de l'inflammabilité du mélange.

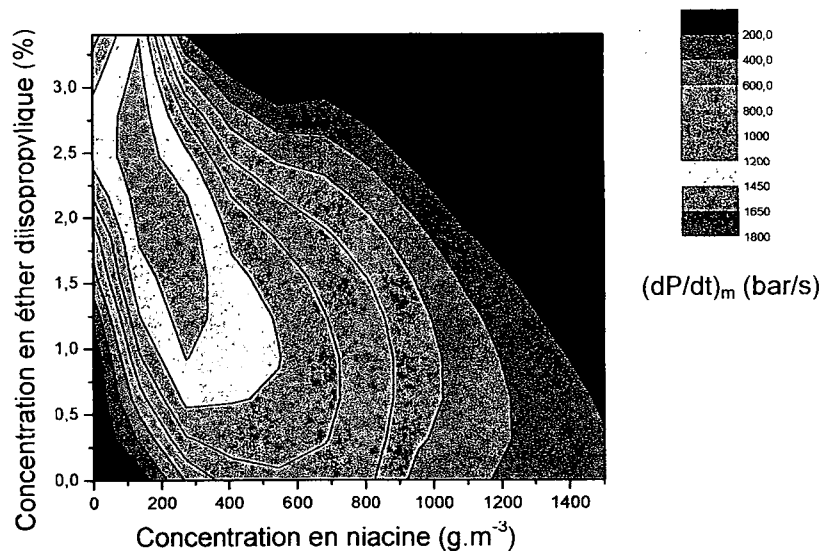


Figure 5. Evolution de la vitesse maximale de montée en pression dP/dt_m du mélange hybride niacine - éther diisopropylique en fonction de la concentration en poussières et de la teneur en solvant. Poudres séchées avant essai – température initiale de 15°C.

Ainsi, l'introduction d'une faible quantité de vapeurs inflammables, même en deçà de la LIE a notamment un impact significatif sur la concentration minimale explosive du mélange, ainsi que sur sa vitesse de montée en pression dP/dt_m . En ce qui concerne ce dernier paramètre, un effet de synergie entre la poussière et le solvant a été observé, ce qui conduit à une vitesse maximale d'accroissement de la pression plus importante que les deux dP/dt_m , du solvant et de la poussière, prises séparément. Ces modifications d'explosivité peuvent donc entraîner des aménagements notables en terme de moyens de prévention et de protection (dimensionnement d'événements, par exemple). Cette étude aspire donc à développer la prise de conscience du caractère spécifique des mélanges hybrides. Elle conduira à une meilleure identification de ces dangers, à une évaluation adéquate de ces risques et à la proposition de plans d'action appropriés.

3.4. Se faire tout petit

Les perspectives économiques considérables liées aux applications des nanomatériaux et les superlatifs dithyrambiques employés pour qualifier cette émergence - d'aucuns parlent déjà de « nouvelle révolution industrielle » - font figure d'Everest devant les quelques pierres qui ont été posées en matière de recherche des dangers potentiels de ces produits.

Depuis plusieurs années déjà, nombre de sites de production et d'applications industrielles ont vu le jour. Pourtant, les connaissances relatives aux dangers de ces nouveaux matériaux sont actuellement assez restreintes et leur développement industriel ne peut se dispenser d'une évaluation approfondie des risques professionnels et environnementaux.

En terme de dangers, si la toxicité inhérente aux nanoparticules est fréquemment mise en exergue, l'inflammabilité et l'explosivité de ces produits ne doivent pas être négligées. Or, les caractéristiques d'inflammabilité et d'explosivité des poudres sont essentiellement accessibles pour les matériaux de taille micrométrique. Les questions de l'extrapolation de ces données au domaine nanométrique et de la pertinence de la transposition des fréquences et effets de ces phénomènes sont alors posées (Pritchard, 2004) (Kwon et al., 2003).

L'exemple présenté ici a trait aux nanoparticules d'aluminium. Au vu de la figure 6 et de résultats complémentaires, il est notable que P_m et dP/dt_m augmentent lorsque le diamètre médian des particules décroît sur une gamme micrométrique. Cette évolution était attendue du fait de l'accroissement de la surface spécifique des poudres et donc de leur plus grande réactivité. Il faut toutefois signaler que le paramètre le plus significatif se révèle être le d_{10} - 10 % de la distribution a un diamètre inférieur ou égal à d_{10} - car les fines tendent à imposer leurs mécanismes réactionnels (Cashdollar, 2000). De plus, l'influence de la taille des particules sur la vitesse de montée en pression est plus marquée que sur la pression maximale d'explosion (Matsuda et al., 2001).

Les courbes décrivant les explosions de nanoparticules d'aluminium viennent s'intercaler entre celles des poudres d'aluminium de 11 et de 27 μm , avec une plus grande similitude avec celles de 11 μm . Cette valeur, si elle n'est absolument pas en accord avec le diamètre annoncé par le fournisseur de ces poussières - de l'ordre de 100 nm - correspond à celle identifiée après passage des nanoparticules dans les divers systèmes de dispersion. L'agglomération de ces fines particules est donc un élément à envisager.

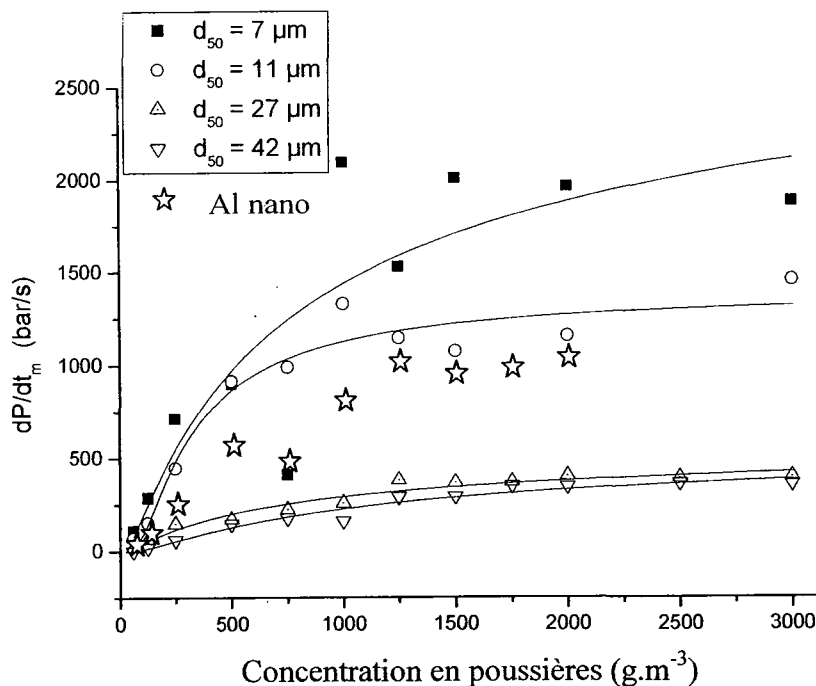


Figure 6. Effet de la taille des particules d'aluminium sur la vitesse maximale de montée en pression lors d'explosions de poussières. Poudres séchées avant essai.

Cette étude préliminaire des nanopoudres d'aluminium montre qu'il est difficile d'extrapoler les résultats obtenus pour les micropoudres aux nanopoudres.

En effet, ces recherches ont permis de dégager certaines tendances spécifiques aux nanopoudres, notamment au niveau de la sensibilité à l'inflammation qui paraît accrue. Néanmoins, il semble que la diminution de la taille des particules jusqu'au domaine des nanoparticules (100 nm) ne s'accompagnent pas d'une augmentation significative de la sévérité des explosions et qu'un plateau

soit atteint. Cette évolution pourrait s'expliquer par la formation d'agglomérats micrométriques, ce qui diminue leur surface spécifique et rend les nanoparticules moins réactives. Cette agglomération et la modification de l'état de surface des particules nanométriques, par le biais de l'humidité ou de l'oxydation de l'air, pourraient donc conduire à une sous estimation des dangers d'inflammation et d'explosion.

Il faut également souligner que les appareillages classiques ainsi que les procédures et normes habituellement utilisées pour l'évaluation du risque d'explosion des poudres (comme la sphère de 20L et le tube de Hartmann modifié) ont été modifiés et testés afin de tenir compte des spécificités des nanoparticules.

D'autres expériences ont été menées sur des matériaux organiques avec des conclusions similaires. Afin de mieux appréhender les mécanismes de combustion, des essais de thermogravimétrie et d'analyse thermique différentielle sont en cours de réalisation. Ils permettront de procéder à la modélisation du comportement cinétique de ces poussières lors de leur oxydation et de mieux cerner les mécanismes mis en œuvre.

4. Comment lui dire adieu ?

4.0. Au nom de la loi...

Qu'il s'agisse de textes réglementaires ou de standards, les conseils et dispositions permettant de se prémunir de ce type de phénomènes sont incontournables. Nous pouvons notamment citer les diverses normes de la National Fire Protection Association (NFPA) qui préconisent des plans d'actions afin de manipuler certains matériaux pulvérulents en toute sécurité (pour la France, voire aussi les documents de l'INRS et l'INERIS). Les directives ATEX, 94/9/CE et 99/92/CE contiennent des dispositions permettant de définir les mesures nécessaires afin d'éviter la formation de sources d'inflammation et conduisant au classement en zones où une atmosphère explosive est susceptible d'apparaître. De manière plus spécifique, le risque d'explosion de poussières inhérent aux silos est pris en compte par « l'arrêté silo » de 2004 (Arrêté du 29 mars 2004 relatif à la prévention des risques présentés par les silos de céréales, de grains, de produits alimentaires ou de tout autre produit organique dégageant des poussières inflammables).

4.1. Un Homme averti...

Hormis le strict respect des règles et des lois, d'autres moyens de prévention sont à disposition de l'animateur sécurité ou du préventeur. Des actions peuvent être entreprises au niveau du combustible, soit par adjonction d'une grande quantité de solides inertes (délicat, en particulier pour les produits alimentaires), soit par diminution de sa concentration en suspension (nettoyage, extraction, agglomération...) (Amyotte, 2006). L'inertage par un gaz tel que l'azote, le dioxyde de carbone ou la vapeur d'eau peut également être proposé.

Enfin, conformément aux directives ATEX, la suppression des sources d'inflammation au sein des zones d'apparition d'atmosphères explosibles est une étape obligatoire. Une attention toute particulière sera portée aux sources d'origine électrostatique.

4.2. Se protégera

Les moyens de se prémunir et de se protéger de ce type d'accident sont nombreux... encore faut-il qu'ils soient employés à bon escient.

L'action peut porter sur le phénomène de montée en pression. Sa réduction jusqu'à une pression résiduelle acceptable est essentielle afin de protéger les conduites et capacités. Elle peut être obtenue grâce à l'installation d'événements – disques de rupture ou soupapes – sur les enceintes sensibles. Le dimensionnement de ces équipements de sécurité est décrit au travers de guides ou de normes telles que la NFPA 68 (USA), la VDI 3673 (Allemagne) ou l'AFNOR NFU 54-540 (France).

Les moyens de protection peuvent porter plus particulièrement sur l'aspect thermique et notamment la propagation des flammes. Des dispositifs d'arrête-flamme, de suppression de flamme de type Q-Rohr ou d'extincteurs déclenchés peuvent être ainsi employés (Laurent, 2003).

Dans les cas spécifiques de faibles volumes de produits toxiques, la construction d'une enceinte résistante à la pression est à envisager.

Enfin, après avoir traité le développement du phénomène explosif de manière locale, il faut aussi veiller à son confinement dans une zone géographique restreinte. Cet isolement est obtenu par l'installation de vannes guillotine à déclenchement rapide, de vannes Ventex ou d'écluses rotatives...

Conclusions

Meuneries, silos céréaliers, travail des métaux, transports pneumatiques de granulés polymères... autant de lieux ou d'activités soumis au risque d'explosions de poussières. Toutefois, par

méconnaissance du danger ou mauvaise appréciation du risque, la prise en compte de ce phénomène demeure trop souvent inversement proportionnelle à son pouvoir de nuisance.

Pourtant, des moyens accessibles et de mise en œuvre simple existent afin de s'en prémunir ou, à tout le moins, d'amenuiser les conséquences de sa survenue : formations, stricte application des lois et règlements, quantification systématique et raisonnée du risque...

Dans le but de répondre à ces besoins, les recherches sur les explosions de poussières s'orientent vers des thématiques non pas nouvelles, mais émergentes, mettant en lumière des tendances originales (« inertage » des mélanges solides/solides pour de très fortes concentrations en composé peu ou ininflammable), insoupçonnées (évolution de l'explosivité des nanoparticules) ou négligées (influence de l'humidité).

Cette âpre confrontation avec ce vieil ennemi n'a donc rien d'insoluble car il suffit de peu, d'un grain, pour qu'il morde enfin la poussière.

Remerciements

A l'ensemble du groupe SISYPHE et de ses collaborateurs permanents, notamment André Laurent - Professeur émérite à l'INPL - et occasionnels, dont les doctorants Mamadou Traoré et Alexis Vignes. A Jacques Bouillard, INERIS, pour son partenariat dans le cadre de l'étude des nanoparticules.

Bibliographie

- Amyotte, P. (2006) Solid inertants and their use in dust explosion prevention and mitigation. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 19, 161-173.
- ASTM (2006): Standard Test Method for Explosible Concentration of Combustible Dust. ASTM E1515, American Society for Testing and Materials.
- Barknecht, W. (1989) *Dust explosions – Course, prevention, protection*. Berlin: Springer Verlag.
- Callé, S., Klabá, L., Thomas, D., Perrin, L., and Dufaud, O. (2005) Influence of size distribution and concentration on wood dust explosion. Experiments and reaction modelling. *Powder Technology*, 157, 144-148.
- Cashdollar, K. L. (2000) Overview of dust explosibility characteristics. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 13, 3-5, 183-199.
- Cleuet, A., Gros, P., and Petit, J. M. (1994) *Les mélanges explosifs gaz et vapeurs, poussières, liquides et solides*. 4^{ème} édition. Volume ED 335, Paris : INRS.
- Eckhoff, R. K. (2003) *Dust explosions in the process industries*. 3rd edition. New-York: Gulf Professional Publishing.
- Eckhoff, R. K. (2005) Current status and expected trends in dust explosion research. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 18, 4-6, 225-237.
- IEC (1994a). Norme internationale 1241-2-1: Matériels électriques destinés à être utilisés en présence de poussières combustibles-partie 2 : méthodes d'essai – section 1 : méthodes de détermination de la température minimale d'inflammation de la poussière. International Electrotechnical Commission, Genève.
- IEC (1994b) Norme internationale 1241-2-3: Matériels électriques destinés à être utilisés en présence de poussières combustibles - partie 2 : méthodes d'essai – section 3 : méthodes de détermination de l'énergie minimale d'inflammation des mélanges air/poussières. International Electrotechnical Commission, Genève.
- ISO (1985): Explosion protection system. Method for determination of explosion indices of combustible dusts in air. ISO Method 6184-1, International Organization for Standardization.
- Jacobson, M., Cooper, A. R., and Nagy, J. (1965) *Explosibility of metal powders*. Report of investigation 6516, Bureau of Mines, U.S. Department of the Interior.
- Kwok, Q. S. M., Fouchard, R. C., Turcotte, A., Lightfoot, P. D., Bowes, R., and Jones, D. E. G. (2002) Characterization of Aluminium Nanopowder Compositions. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 27, 229-240.
- Kwon, Y., Gromov, A. A., Ilyin, A. P., Popenko, E. M., and Rim, G. (2003) The mechanism of combustion of superfine aluminium powders. *Combustion and Flame*, 133, 385-391.
- Laurent A. (2003) *Sécurité des Procédés Chimiques - connaissances de base et méthodes d'analyse de risques*. Chapitre 6 : Explosions de poussières. Paris: Tec&Doc.
- Matsuda, T., Yashima, M., Nifuku, M., and Enomoto, H. (2001) Some aspects in testing and assessment of metal dust explosions. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 14, 6, 449- 453.
- Nagy, J., and Verakis, H. C. (1983) *Development and control of dust explosions*. Occupational Safety and Health. New York: Marcel Dekker.

- NFPA (2006). Standard for prevention of fire and dust explosions from the manufacturing, processing and handling of combustible particulate solids. NFPA 654, National Fire Protection Association.
- Pellmont, G. (1979) *Explosions und Zündverhalten von hybriden Gemischen aus brennbaren Stäuben und Brenngasen*. PhD thesis, Zürich: ETH.
- Pilão, R., Ramalho, E., and Pinho C. (2006a) Overall characterisation of cork dust explosion. *Journal of Hazardous Materials*, 133, 1-3, 183-195.
- Pilão, R., Ramalho, E., Pinho, C., (2006b) Explosibility of cork dust in methane/air mixtures, *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 19, 1, 17-23.
- Pritchard, K. (2004) Literature review: Explosion hazards associated with nanopowders, HSL.
- Proust, C. (2006) Flame propagation and combustion in some dust-air mixtures. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 19, 1, 89-100.
- Siwek, R., Cesana, C. (1995) Ignition behavior of dusts: Meaning and interpretation. *Process Safety Progress*, 14 (2), 107-119.

ETUDE DE LA MISE EN SUSPENSION D'AEROSOLS PAR CHUTE DE POUDRE

M. Jacquelin * (1,2), E. Géhin (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.
marjorie.jacquelin@irsn.fr

(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.

Title

Study of aerosol resuspension generated by falling powder.

Abstract

This study comes within the general framework of the studies and researches on the safety of the nuclear and other industrial facilities. Many industrial facilities, and in particular the laboratories and factories of the nuclear fuel cycle, handle great quantities of 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 few reliable data in the literature on resuspension factor for particles released in case of a scenario with an accidental free fall spill of powder.

The aim of this study is to discriminate experimentally the effects of various parameters involved in the airborne particle generation during the fall of the powder. For that purpose, various experiments have been carried out in order to determine the influence of parameters such as the type and the diameter of the discharge system used for the spill, the nature of the powder, the type of surface on which occurs the powder impaction and the initial powder mass.

Résumé

Cette étude s'inscrit dans le cadre général des études et recherches sur l'évaluation de la sûreté des installations. Dans divers domaines industriels, notamment les laboratoires et usines du cycle du combustible nucléaire, de grandes quantités de matières sont manipulées 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. A l'heure actuelle, il y a peu de données dans la littérature sur la mise en suspension dans le cas d'un scénario de chute accidentelle de poudre.

Le but de nos travaux est de discriminer expérimentalement les effets de différents paramètres sur la mise en suspension lors de la chute d'une poudre. Pour cela, différentes expériences de mise en suspension ont été réalisées afin de déterminer l'influence de paramètres tels que le mode de déversement, la nature de la poudre, le type de surface sur laquelle se produit l'impaction de la poudre, le diamètre du verseau et la masse initiale de poudre.

1. Introduction

L'étude de la mise en suspension de contaminants, en fonctionnement normal ou lors de scénarios d'accidents ou d'incidents, présente un intérêt de premier ordre afin de pouvoir estimer les conséquences de ce terme source sur l'opérateur et son environnement direct.

A l'heure actuelle, il y a peu d'études dans la littérature traitant de la mise en suspension par chute de poudre et estimant les émissions en termes de quantité et de granulométrie des particules produites. L'évaluation de la mise en suspension se fait généralement par l'utilisation de coefficients déterminés expérimentalement lors d'études spécifiques effectuées sur quelques paramètres ou à l'aide de corrélations empiriques ayant des domaines de validité limités (Sutter *et al.*, 1982 ; Ballinger *et al.*, 1988 ; Cowherd *et al.*, 1989a et 1989b ; Plinke *et al.*, 1991 et 1995 ; Heitbrink *et al.*, 1992 ; Gensdarmes *et al.*, 2003). Par ailleurs, des études sur les émissions de poussières par les produits pulvérulents ont été menées dans le domaine de l'hygiène du travail et ont mis en évidence différents paramètres potentiellement influents. Néanmoins, ces études se révèlent difficiles à comparer car les conditions expérimentales (dispositifs, modes de déversement, méthodes de mesure), les paramètres étudiés, les poudres testées ainsi que les coefficients utilisés pour l'estimation de la mise en suspension sont souvent différents. Dans un souci d'harmonisation, afin de pouvoir comparer les résultats d'émission de particules par différentes poudres, des dispositifs de laboratoire et des procédures sont actuellement en cours de normalisation. Ceci permettra d'évaluer, de la manière la plus réaliste possible, la quantité et la granulométrie des aérosols produits, et d'aboutir à l'établissement de classifications sur la propension des poudres à être mises en suspension.

Dans la littérature, la quantité de matière dispersée est exprimée en termes de coefficients de mise en suspension. Dans le cas de la chute de poudre, le principal coefficient utilisé pour quantifier le phénomène 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 chutant (m_0). Elle est donnée par la relation suivante :

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

Pour qu'une particule soit mise en suspension il faut que l'effet de la force de traînée soit supérieur à l'effet combiné du poids des particules et des forces de cohésion inter-particulaires (Schofield, 1981). La mise en suspension d'une poudre résulte de la compétition entre des forces de liaison et des forces de séparation agissant sur un ensemble de particules. Ainsi, dans le cas de la chute de poudre, la mise en suspension d'aérosols peut se produire lors de l'écoulement et au moment de l'impact sur la surface. Plusieurs auteurs se sont basés sur une approche de bilan des forces afin d'étudier les paramètres pouvant influencer l'une ou l'autre des contributions (Chambers, 1989 ; Plinke *et al.*, 1995).

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 sédimentation au cours du prélèvement et obtenir ainsi des valeurs plus représentatives du terme source (Jacquelin *et al.*, 2005). La détermination précise du terme source est une donnée de base particulièrement importante car elle est ensuite utilisée dans des modèles de dispersion et/ou d'exposition des travailleurs (Liden, 2006).

2. Démarche expérimentale

Le but de nos travaux est de discriminer expérimentalement les effets de différents paramètres sur la mise en suspension lors de la chute d'une poudre. Pour cela, différentes expériences de mise en suspension ont été réalisées afin de déterminer l'influence de paramètres tels que le mode de déversement (déversement sous forme de paquet et écoulement à travers une fuite), la nature de la poudre (billes de verre et alumine), le type de surface sur laquelle se produit l'impaction de la poudre (surface solide ou liquide), le diamètre du verseau (variation du diamètre du paquet ou du débit massique) et la masse initiale de poudre. Par la suite, ces expériences ont conduit à l'élaboration de corrélations permettant de déterminer la quantité de particules mises en suspension sur la base des paramètres étudiés lors de la phase expérimentale.

3. Dispositif expérimental et méthodes de mesure

Les expériences menées visent à déterminer la masse de particules mises en suspension. Pour cela, on cherche à collecter l'ensemble des particules dispersées lors de la chute de poudre.

L'installation utilisée pour réaliser les expériences est une enceinte parallélépipédique de hauteur égale à 1,42 m dont la base a une aire de 0,65 m² (0,83x0,78 m²), le volume utile étant égal à 0,92 m³. Cette enceinte est équipée sur sa face supérieure d'un système permettant le versement de la poudre. Les versements ont été réalisés sous forme de « fuite » ou de « paquet » en utilisant respectivement des entonnoirs (diamètres de fuite égaux à 10 et 15 mm) et des tubes cylindriques (diamètres de 40 et 60 mm). Au cours des expériences, deux surfaces d'impaction (surface solide et surface liquide) sont utilisées afin de discriminer 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, on suppose que l'utilisation d'une surface liquide limite la mise en suspension des particules lors de l'impact de la poudre.

Les poudres utilisées (alumine et billes de verre) ont été choisies d'après leurs caractéristiques géométriques et leurs distributions granulométriques relativement proches (méthode Coulter - Multisizer II) dont certaines sont présentées dans le tableau 1.

Tableau 1. Caractéristiques des poudres.

	Billes de verre	Alumine
Diamètre équivalent en volume médian massique (µm)	30	33
Ecart-type géométrique (σ)	1,5	1,4
Facteur de forme dynamique (χ)	1,0	1,5
Masse volumique du matériau (kg/m ³)	2,5.10 ³	3,9.10 ³
Masse volumique de la poudre (kg/m ³)	1,40.10 ³	1,56.10 ³
Porosité (%)	45	60
Cohésion (Pa)	353	779

La collecte des particules mises en suspension s'effectue à l'aide d'un préleveur à grand débit sur lequel est placé un filtre membrane. Le prélèvement est déclenché juste à la fin de la chute. L'axe du préleveur est placé horizontalement à une hauteur de 20 cm par rapport au bas de l'enceinte. La masse de particules mises en suspension est déterminée par pesées différentielles du filtre de prélèvement ayant servi à collecter les particules présentes dans l'enceinte. Les distributions granulométriques sont ensuite déterminées par la méthode Coulter permettant de mesurer le diamètre équivalent en volume (d_{ev}) des particules collectées sur le filtre.

En parallèle du prélèvement, nous utilisons un compteur optique de particules Grimm qui mesure en continu la concentration numérique de l'aérosol sur différentes classes granulométriques (de 0,3 à 20 μm) avec un temps d'intégration de 6 secondes. Cette mesure permet de suivre l'évolution de l'aérosol dans l'enceinte au cours de l'expérience.

4. Traitement des résultats expérimentaux

Les données expérimentales brutes de masse et de granulométrie, obtenues par l'intermédiaire des prélèvements sur filtres, 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 lors de la chute est en perpétuelle évolution du fait de la perte de particules 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 de particules réellement mise en suspension par le phénomène de chute, il est nécessaire de prendre en compte les pertes de particules par sédimentation au cours du prélèvement. Une méthode de traitement a été développée tenant compte des paramètres de l'enceinte expérimentale, des paramètres de prélèvement et des paramètres de l'aérosol collecté (Jacquelin *et al.*, 2005).

5. Résultats et discussion

Les résultats obtenus au cours des différentes expériences ont permis de mettre en évidence les paramètres prépondérants et leurs contributions en fonction du type de déversement. Ainsi, pour le déversement de type « fuite », il s'agit de la nature de la poudre, alors que dans le cas du déversement de type « paquet » la masse est le paramètre le plus influent. De plus, des interactions entre les paramètres ont été mises en évidence notamment entre le type de poudre et le type de surface d'impaction.

5.1. Résultats expérimentaux de mise en suspension

Nous présentons dans la suite, figures 1 et 2, les résultats expérimentaux de fractions mises en suspension obtenus en fonction de la masse initiale de poudre utilisée pour les deux types de surfaces d'impaction ainsi que les distributions granulométriques des aérosols émis que nous comparons avec celle de la poudre initiale.

Sur la figure 1, nous comparons les fractions mises en suspension obtenues suivant le mode de déversement et la nature des poudres pour chaque type de surface d'impaction utilisée.

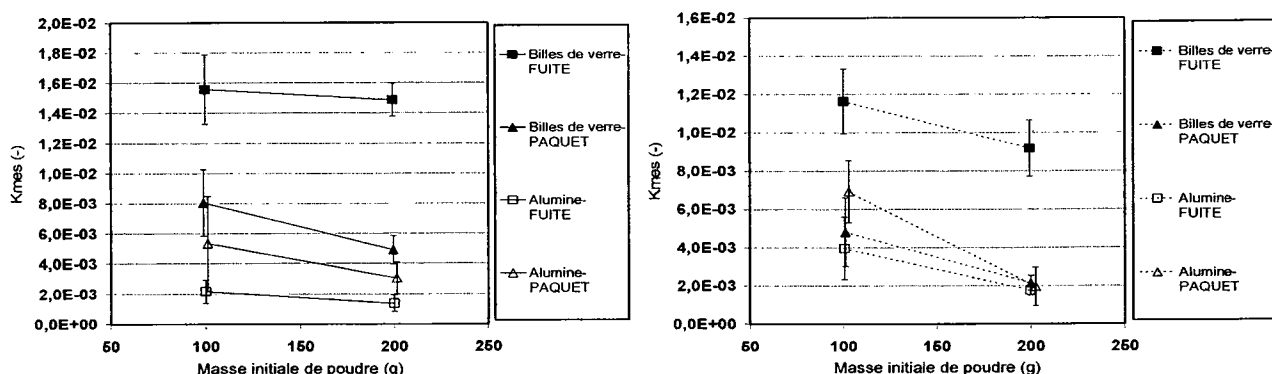


Figure 1. Comparaison des modes de déversements et des types de poudres pour des impactions sur surface solide (à gauche) et sur surface liquide (à droite).

Nous observons, sur la figure 1, l'influence du type de poudre pour les déversements de type « fuite » pour les deux types de surface d'impaction. En effet, nous pouvons voir que les fractions mises en

suspension pour ce mode de déversement sont supérieures dans le cas de la poudre de billes de verre à celles obtenues pour la poudre d'alumine. En revanche, 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. De plus, on peut voir l'effet de la masse initiale de poudre sur la fraction mise en suspension. D'une manière générale, les fractions mises en suspension diminuent lorsque la masse initiale de poudre augmente.

Les résultats obtenus peuvent être expliqués par des effets d'entraînement de l'air environnant la chute ainsi que par les propriétés des poudres. Ainsi, dans le cas de déversement de type fuite, l'air est entraîné en moins grande quantité lors de chute de poudre d'alumine que dans le cas de la poudre de billes de verre (Cooper et Arnold, 1995). Cet air peut aussi pénétrer à l'intérieur de la colonne de poudre lors de son écoulement et être éjecté au moment de l'impact. Ceci va contribuer à la séparation des particules et ainsi à leur mise en suspension. L'effet de l'inclusion d'air dans la poudre en écoulement va être d'autant plus important que la porosité de la poudre et les forces de liaison inter-particulaires sont faibles. Ainsi, la poudre de billes de verre, dont la porosité et la cohésion sont plus faibles que celles de la poudre d'alumine, va avoir une dispersion plus importante. Dans le cas de déversement en « paquet », l'entraînement d'air est lié à la vitesse et à la section du paquet de poudre, ceci explique donc les résultats de mise en suspension similaires observés pour les deux poudres car l'air pénètre peu à l'intérieur du paquet de poudre et les jets d'air entraînant les particules au moment de l'impact se trouvent ainsi réduits.

De plus, ces résultats peuvent aussi être liés au 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 de type « fuite », seule la poudre d'alumine forme un tas. La formation de ce tas peut être à l'origine d'une diminution de l'effet de l'impact et ainsi limiter la mise en suspension tel que cela a été observé par Plinke et al. (1991) du fait de la diminution des forces de séparation mises en jeu.

Sur la figure 2, nous présentons les distributions granulométriques obtenues pour chaque poudre et chaque mode de déversement en fonction de la nature de la surface d'impaction.

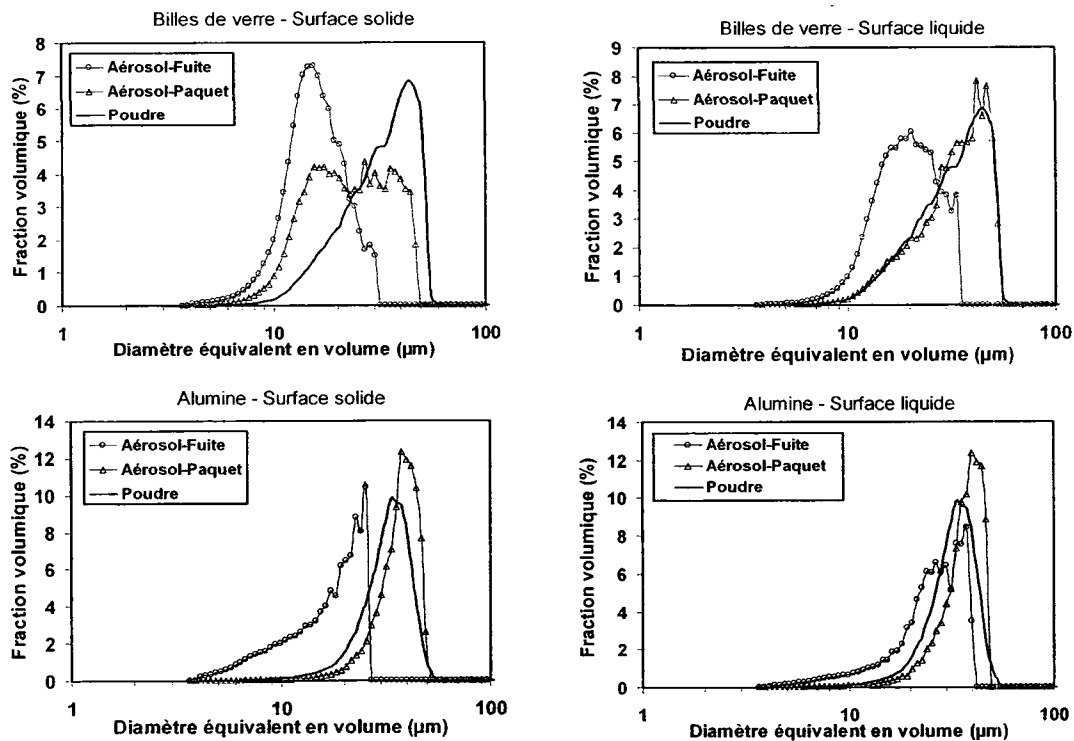


Figure 2. Comparaison des distributions granulométriques obtenues pour les deux poudres selon le mode de déversement pour des impactions sur surface solide et sur surface liquide.

Les graphiques de la figure 2 nous permettent de mettre en évidence l'influence du mode de déversement et de la nature de la surface d'impaction sur la distribution granulométrique de l'aérosol mis en suspension au cours des chutes pour chacune des poudres.

Ainsi, nous constatons que pour la poudre de billes de verre les distributions granulométriques obtenues sont différents selon les modes de déversement. Dans le cas du paquet, nous pouvons observer

que lorsque l'impaction se produit sur une surface liquide, les particules émises ont une distribution granulométrique proche de celle de la poudre initiale.

Pour la poudre d'alumine, les graphiques de la figure 2 montrent également que les distributions granulométriques sont différentes selon le mode de déversement utilisé. Nous pouvons aussi voir que pour cette poudre les distributions granulométriques des aérosols tendent à être similaires à celle de la poudre initiale lors de chutes de type paquet et ceci pour les deux surfaces. Dans le cas des fuites, cette tendance est uniquement observée pour des impactions sur surface liquide.

5.2. Comparaison avec des corrélations

A partir des résultats que nous avons obtenus pour des écoulements à travers une fuite impactant sur une surface solide, nous avons voulu les comparer aux valeurs obtenues par l'intermédiaire des corrélations de la littérature proposées par Ballinger *et al.* (1988) et Cowherd *et al.* (1989b). Cette comparaison est illustrée sur la figure 3a.

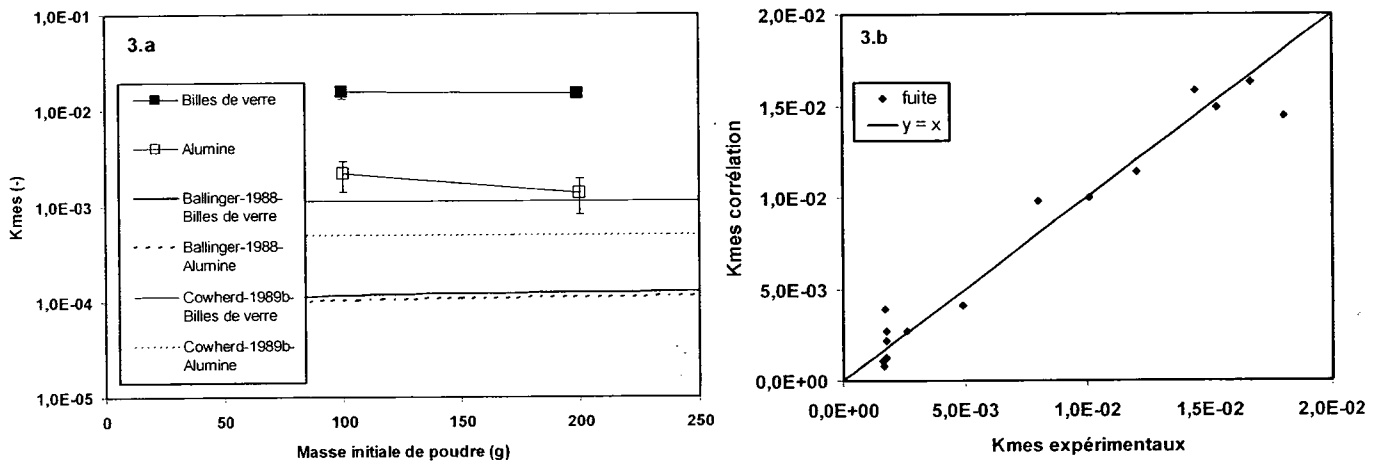


Figure 3. Comparaison résultats - corrélations pour les déversements de type fuite.

Sur la figure 3a, nous pouvons constater que les valeurs de fraction mise en suspension obtenues à l'aide des corrélations sont inférieures à nos valeurs expérimentales. De plus, cette sous-estimation de la mise en suspension peut aller jusqu'à deux ordres de grandeur. Afin de pouvoir disposer de corrélations plus représentatives des valeurs expérimentales, nous avons développé de nouvelles corrélations purement empiriques. Pour cela, nous avons réalisé différentes analyses statistiques afin de déterminer les paramètres prépondérants et d'estimer leur contribution pour chaque type de déversement.

Déversement type « fuite »

La corrélation empirique développée à l'aide des paramètres expérimentaux et des interactions mises en évidence, et dans laquelle les variables sont centrées par rapport à leurs valeurs moyennes, s'écrit :

$$K_{mes} = A0 + A1(D - \bar{D}) + A2(P - \bar{P}) + A3(M - \bar{M}) + A4(S - \bar{S}) + A5[(D - \bar{D}) \times (S - \bar{S})] + A6[(P - \bar{P}) \times (S - \bar{S})]$$

A0	A1	A2	A3	A4	A5	A6
0,00737	-0,000197	-0,0054	-0,000014	-0,001114	-0,000116	0,001581

Où D est le diamètre du verueur ($\bar{D} = 12,333$), P le type de poudre (avec $P = -1$ pour la bille de verre, $P = 1$ pour l'alumine et $\bar{P} = 0,0677$), M la masse initiale ($\bar{M} = 153,3$) et S la nature de la surface (avec $S = -1$ pour la surface solide, $S = 1$ pour la surface liquide et $\bar{S} = 0,0667$).

La corrélation empirique obtenue peut être considérée comme excellente (le résidu étant du même ordre de grandeur que l'erreur de mesure) et permet d'expliquer plus de 98 % des effets observés. A titre illustratif, la figure 3b présente une comparaison entre les valeurs expérimentales et celles déterminées par cette corrélation.

Déversement de type « paquet »

Dans ce cas, la corrélation empirique obtenue s'écrit :

$$K_{mes} = A0 + A1(D - \bar{D}) + A2(P - \bar{P}) + A3(M - \bar{M}) + A4(S - \bar{S}) + A5[(D - \bar{D}) \times (P - \bar{P})] + A6[(P - \bar{P}) \times (S - \bar{S})]$$

A0	A1	A2	A3	A4	A5	A6
0,0047	0,0001	-0,0004	-0,000031	-0,0007	-0,000043	0,0008

Où D est le diamètre du verseur ($\bar{D} = 50$), P le type de poudre (avec $P = -1$ pour la bille de verre, $P = 1$ pour l'alumine et $\bar{P} = 0$), M la masse initiale ($\bar{M} = 150,04$) et S la nature de la surface ($\bar{S} = 0$).

Cette corrélation permet d'expliquer environ 65 % des effets observés.

6. Conclusions

Au cours de ces travaux, différents paramètres ont été étudiés afin de déterminer l'influence de ceux-ci sur la mise en suspension de particules lors du phénomène de chute de poudre. Une méthode de traitement des résultats expérimentaux bruts prenant en compte la masse ainsi que la granulométrie des particules collectées a tout d'abord été élaborée. Cette méthode peut être applicable à différents phénomènes et à différentes configurations, car elle prend en compte non seulement les caractéristiques des aérosols collectés au cours d'un prélèvement (masse et distribution granulométrique), mais également les caractéristiques du local (ventilation, surface de dépôt, volume ...) dans lequel peuvent se produire les émissions de particules.

La mise en œuvre de cette méthode a permis ensuite d'accéder à des coefficients de mise en suspension plus réalistes que ceux actuellement disponibles. Les résultats ainsi obtenus au cours des différentes expériences ont permis de mettre en évidence les paramètres prépondérants en fonction du type de déversement. Ainsi, pour le déversement de type « fuite », il s'agit de la nature de la poudre, alors que dans le cas du déversement de type « paquet » la masse est le paramètre le plus influent. De plus, des interactions entre les paramètres ont été mises en évidence, comme l'effet de la surface d'impaction avec le type de poudre. D'autre part, nous avons montré que le mode de déversement a une influence sur la distribution granulométrique des particules mises en suspension. A la suite de ces expériences, des corrélations empiriques tenant compte des différents paramètres étudiés, ainsi que de leurs interactions, ont été développées à partir des données expérimentales.

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, TI88 0047796, 45 pages.
- Chambers A.J. (1989) The measurement of alumina dustiness. Powder Handl. Process., 1, 381-387.
- 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. (1989a) An apparatus and methodology for predicting the dustiness of materials. Am.Ind.Hyg.Assoc.J., 50, 123-130.
- Cowherd C. Jr, Grelinger M.A., Englehart P.J. et Wong K.F. (1989b) Dust inhalation exposures from the handling of small volumes of powders. Am. Ind. Hyg. Assoc. J., 50, 131-138.
- 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^{ème} Congrès Français sur les aérosols, Paris, ASFERA Editions, 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.
- Jacquelin M., Géhin E. et Gensdarmes F. (2005) Etude de la mise en suspension de particules par chute de poudre. Actes du 21^{ème} Congrès Français sur les aérosols, Paris, ASFERA Editions, 95-100.
- Liden G. (2006) Dustiness Testing of Materials Handled at Workplaces. Ann. Occup. Hyg., 50, 437-439.
- 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., Boundy M.G. et Löffler F. (1995) Dust generation from handling powders in industry. Am. Ind. Hyg. Assoc. J., 56, 251-257.
- Schofield C. (1981) Dust generation and control in materials handling. Bulk solids handling, 1, 419-427.
- 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.

ETUDE DE LA MISE EN SUSPENSION D'UN AEROSOL DE MICRO-GOUTTELETTES LORS DE L'IMPACT D'UN TRAIN DE GOUTTES MILLIMETRIQUES SUR UN FILM LIQUIDE

C.Motzkus * (1,2), E. Géhin (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.
charles.motzkus@irsn.fr

(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.

TITLE

Study of airborne particles generated by the impact dripping of millimetric droplets onto a liquid film.

ABSTRACT

The safety analyses of the nuclear facilities require extensive knowledge on the airborne micro-droplet emitted, in order to assess the potential sources of contamination in the case of hypothetical scenarios of accidental falls of liquids caused by leakage from a container. There are very few data in the literature in the case of the impaction of millimeter-size droplets. The objective of our work is to study experimentally the emission of the particles during the impaction of droplets onto a liquid film. The experiments are carried out in order to study analytically the influence of droplet velocity, droplet diameter, thickness of the liquid film and the surface tension of the liquid on the airborne particles produced. The results are faced with a semi empirical correlation, which describes the transition between deposition and splash. In the case of the impaction of millimetric droplets onto a liquid film, our results show that the airborne micrometer droplets emitted have diameters ranging between 5 and 50 μm and the flow rate of aerosol decreases when the height of the liquid film increases.

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 d'un conteneur. Il y a très peu de données dans la littérature sur la mise en suspension dans le cas de l'impaction de gouttes millimétriques. Le but de nos travaux est d'étudier expérimentalement l'émission de particules pendant l'impact de gouttes sur un film liquide. Des expériences sont réalisées afin d'étudier analytiquement l'influence de la vitesse d'impaction des gouttes, du diamètre des gouttes, de la hauteur du film liquide et de la tension de surface sur la mise en suspension. Des résultats ont permis d'apprécier l'utilisation de relations semi-empiriques déjà existantes, décrivant la transition entre les régimes de dépôt et d'éclaboussure. Dans le cas de l'impaction d'un train de gouttes millimétriques sur un film liquide, nos résultats montrent, d'une part, que l'aérosol émis a un diamètre compris entre 5 et 50 μm , d'autre part, que le débit de l'aérosol émis diminue lorsque la hauteur du film augmente.

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 est de déterminer expérimentalement l'émission d'aérosol lors de la chute d'un train de gouttes millimétriques sur un film liquide. Cette situation est la plus intéressante, car lors de la fuite d'une cuve ou d'une canalisation, on se situe principalement dans le cas de l'impaction sur un film liquide. En effet, la première goutte s'impactera sur une surface sèche, mais les suivantes sur un film liquide issu de l'impaction des gouttes précédentes. Un bilan des connaissances a été réalisé sur les impactions de gouttes sur des films liquides. Cette étape nous a permis d'identifier des corrélations permettant de déterminer le seuil dépôt / éclaboussure. Par la suite, des expériences sont réalisées avec un train de gouttes afin d'obtenir des données sur les coefficients de mise en suspension et sur l'aérosol émis. Ces résultats permettront d'étudier la validité de corrélations pour déterminer le seuil dépôt/éclaboussure de la goutte impactante et la mise en suspension des particules.

2. Bibliographie

2.1. Caractérisation 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 connaître la quantité potentielle d'aérocontaminant dispersée dans une installation ou inhalée par un opérateur pour un certain scénario. La granulométrie permet de déterminer le transfert de l'aérosol et sa pénétration dans le système respiratoire d'un individu ou dans les systèmes d'épuration. Dans la littérature, il existe différents coefficients qui permettent de quantifier la mise en suspension. 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 de matière qui chute (m_0) :

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

2.2. Généralités sur l'impaction d'une goutte

Dans le cas de la chute d'une goutte sur une surface sèche ou sur une flaque liquide, trois phénomènes peuvent se produire : le dépôt, le rebond et l'éclaboussure (rupture de l'interface liquide-gaz). Les principaux paramètres influents identifiés dans la littérature sont les caractéristiques de la goutte (diamètre d_g , vitesse V_g , température, propriétés physiques du liquide : masse volumique ρ , viscosité dynamique μ et tension de surface σ), celles de la paroi (température, rugosité, angle de mouillage avec le liquide), du 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 d'écoulement).

Afin de caractériser de manière générale l'impaction d'une goutte sur un film liquide, différents nombres adimensionnels liés aux caractéristiques de la goutte peuvent être utilisés : les nombres de

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

Ces trois nombres permettent d'étudier les effets relatifs 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 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 $f^* = V_g/d_g$ et f est la fréquence d'impaction).

Dans le régime d'éclaboussure, la formation des gouttelettes suit le processus suivant : quand la goutte touche la surface, un film liquide se répand, ensuite une corolle de liquide se crée au-dessus du film. L'instabilité de la corolle est à l'origine de la formation de digitations se fragmentant en petites gouttes de diamètre d_s , appelées "gouttes secondaires". Nous présentons sur la figure 1 la photographie d'une corolle avec des digitations observées lors de l'impaction d'une goutte d'eau sur un film liquide.



Figure 1. Photographie de l'impaction d'une goutte d'eau sur un film liquide ($d_g = 3,9$ mm, $S_f = 0,3$ et $V_g = 3$ m.s⁻¹), IRSN-LPMA.

Sur la figure 1, nous pouvons observer la présence d'un bourrelet au sommet de la corolle, ainsi que les digitations et les gouttes secondaires.

2.3. Etudes sur la mise en suspension lors de l'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 ($S_f \ll 1$) pouvant représenter l'impact de gouttes millimétriques sur une flaque au sol. Le tableau 1 présente de façon synthétique les deux corrélations existantes permettant de déterminer le seuil dépôt/éclaboussure dans le cas de l'impaction d'une goutte millimétrique sur un film liquide.

Tableau 1. Synthèse des études expérimentales déterminant le seuil dépôt/éclaboussure dans le cas de l'impaction sur un film liquide.

Auteur	Condition pour se situer dans le régime d'éclaboussure	Gamme de validité
Cossali <i>et al.</i> (1997)	$We \cdot Oh^{-0,4} > (We \cdot Oh^{-0,4})_c = 2100 + 5880 S_f^{1,44}$	$2 \cdot 10^2 < We < 1,6 \cdot 10^3$, $2,2 \cdot 10^{-3} < Oh < 0,141$, $0,1 < S_f < 1,2$
Vander Wal <i>et al.</i> (2006)	$Oh \cdot Re^{1,17} > (Oh \cdot Re^{1,17})_c = 63$	$S_f = 1$, $d_g = 2 \text{ mm}$, $5 \cdot 10^2 < Re < 5 \cdot 10^3$, $1 \cdot 10^{-3} < Oh < 0,022$

Dans le cas de l'impaction d'une goutte millimétrique, deux études ont permis de déterminer le seuil dépôt/éclaboussure dans un certain domaine de validité (tableau 1). Néanmoins ces études n'apportent pas d'information sur l'aérosol produit car leurs systèmes de mesure (visualisation) étaient limités en taille ($d_g > 50 \mu\text{m}$) 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 nos travaux est donc d'étudier la validité des corrélations de Cossali et de Vander Wal, permettant de déterminer le seuil dépôt/éclaboussure de la goutte impactante, pour caractériser la mise en suspension de particules lors de l'impact de gouttelettes millimétriques sur un film liquide.

3. Dispositifs expérimentaux et méthodes de mesure

Deux types 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 d'un train de gouttes sur un film liquide. Ces expériences sont réalisées dans une enceinte ventilée de type boîte à gants (de dimension : $0,86 \times 0,86 \times 0,76 \text{ m}^3$, soit un volume égal à $0,562 \text{ m}^3$). La figure 2 représente le schéma du dispositif MESIG (Mise En Suspension par Impaction de Gouttes). Le second type d'expériences consiste à analyser visuellement le phénomène d'impaction à l'aide d'une caméra rapide, afin de déterminer le seuil dépôt/éclaboussure de façon qualitative. Pour cela on dispose 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.

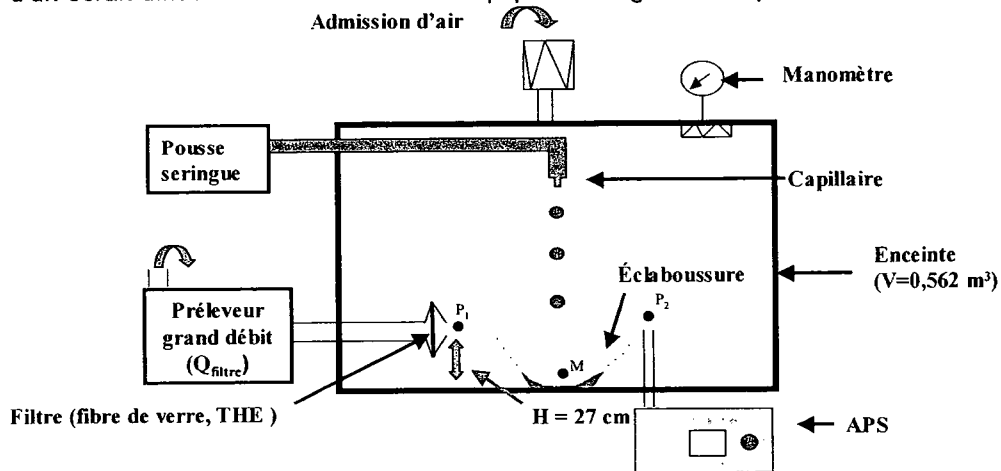


Figure 2. Représentation schématique du dispositif MESIG.

Les gouttes millimétriques sont produites à l'aide d'un poussette seringue et de capillaires de différents diamètres. Ce dispositif permet de réaliser des trains de gouttes monodispersées de diamètres compris entre 2 et 5 mm avec une fréquence inférieure à 4 gouttes/s. Afin de déterminer la masse mise en suspension pour de très faibles quantités de matière, nous utilisons un traceur fluorescent (fluorescéine sodée) mis en solution dans le liquide. Lors de la mise en suspension, les micro-gouttelettes sont collectées sur un filtre THE (Très Haute Efficacité) en fibre de verre à l'aide d'un préleveur à fort débit. Par analyse fluorimétrique du prélèvement, nous pouvons déterminer la masse de fluorescéine prélevée. Du fait de la très faible quantité mise en suspension à chaque impact de goutte (au point M, cf. fig. 2), il est nécessaire de prélever en continu pendant le phénomène d'impaction et de réaliser des expériences sur une durée suffisamment longue. Le point P_1 représenté sur la figure 1 symbolise le point de prélèvement du préleveur à grand débit sur filtre. Ce prélèvement permet de déterminer la masse mise en suspension. Le point P_2 représente la localisation du prélèvement de l'Aerodynamic Particle Sizer (APS). L'APS permet de mesurer la concentration en

nombre et la granulométrie en diamètre aérodynamique des particules échantillonnées sur une gamme comprise entre 0,6 et 20 μm .

4. Résultats expérimentaux

4.1. Qualification du dispositif de mesure MESIG

Ce dispositif a été qualifié afin de déterminer la représentativité des mesures de l'aérosol produit. En effet, les mesures de masse sur filtre et de granulométrie par l'APS ne sont pas des mesures directes de l'émission. Il a été réalisé deux études de qualification de notre dispositif : la première est une qualification à l'aide d'un gaz traceur, le SF_6 (hexafluorure de soufre) et la seconde avec un aérosol polydispersé de billes de verre. L'arrivée de l'aérosol et du gaz (SF_6) dans notre dispositif a été placée au bas de l'enceinte (au centre) afin d'être représentative de la source d'émission d'aérosol (au point M, cf. fig. 2) lors de l'impaction d'un train de gouttes. La qualification avec le gaz traceur a permis de valider l'hypothèse de mélange homogène dans la boîte à gants et de déterminer des coefficients de transfert, ainsi que les temps de transfert entre l'émission du polluant jusqu'aux points de mesure (filtre et APS). Le traçage particulaire a permis de caractériser la représentativité des échantillons au point de mesure (filtre et APS) par rapport à la source d'émission en fonction de différents débits de ventilation de l'enceinte ($Q = 99, 145$ et $194 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$) en déterminant les coefficients de transfert pour des particules de diamètres aérodynamiques compris entre 0,6 et 20 μm . Le coefficient de transfert (K) permet de relier le débit de polluant à la source avec la concentration du polluant à l'équilibre : il est défini par le rapport entre la concentration à l'équilibre C_{eq} (nombre de particules / m^3) en un point P de l'enceinte sur le débit de la source q (nombre de particules émises / s). La figure 3 représente les coefficients de transfert théoriques (calculés dans le cas d'un renouvellement homogène) et expérimentaux gazeux et particulaires pour un débit de ventilation $Q = 145 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ entre le point M et le point de prélèvement APS (P_2).

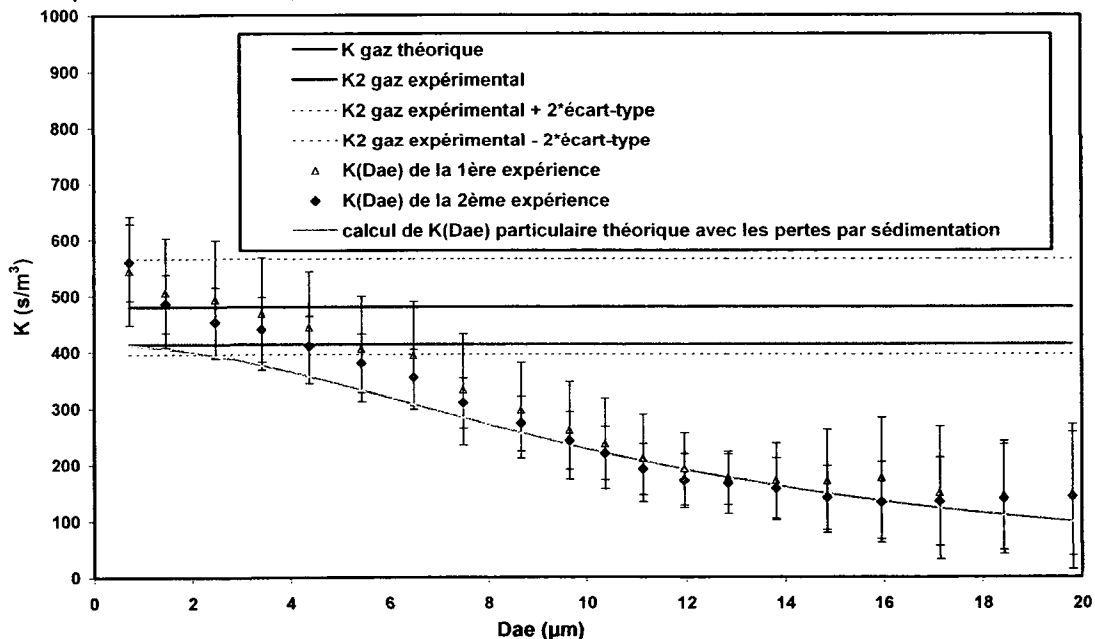


Figure 3. K gazeux et particulaire en $\text{s}\cdot\text{m}^{-3}$ calculés et mesurés entre le point M et le point de prélèvement APS (P_2) en fonction du diamètre aérodynamique de l'aérosol produit (D_{ae}) pour un débit de ventilation $Q = 145 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ dans la boîte à gants.

L'analyse des résultats permet de conclure que le calcul de $K(D_{ae})$ théorique, prenant en compte les pertes par sédimentation, est en bon accord avec nos points expérimentaux. A partir des mesures expérimentales et des valeurs théoriques de $K(D_{ae})$, nous observons que les particules de diamètre aérodynamique inférieur à 5 μm ont un comportement proche du gaz dans le cas de notre enceinte ventilée avec un taux de renouvellement égal à $15,5 \text{ h}^{-1}$. A l'inverse, pour des particules avec un diamètre aérodynamique supérieur à 5 μm , plus les particules ont un diamètre élevé et plus leur comportement s'éloigne de celui du gaz. En fait, le $K(D_{ae})$ particulaire diminue lorsque le diamètre aérodynamique des particules augmente. Cette tendance est expliquée par le fait que plus la particule a un diamètre important, plus sa vitesse de sédimentation sera grande. Cela entraîne des pertes par effet de sédimentation de plus en plus élevées en fonction du diamètre aérodynamique des particules.

4.2. Résultats sur la fraction mise en suspension (K_{MES}) et sur le débit d'aérosols émis

Nous avons réalisé une grille expérimentale permettant d'étudier de façon analytique l'influence de la vitesse d'impaction des gouttes, de leur diamètre, de la hauteur du film liquide et de la tension de surface sur la mise en suspension ; un plan d'expérience complet est choisi avec deux valeurs pour les paramètres d_g (2 et 4 mm) et σ (30 et 66 mN/m) et trois valeurs pour V_g (2, 3 et 4 m/s) et S_f (0,3 ; 0,6 et 1). Un dispositif spécifique a été utilisé pour garder constante la hauteur du film liquide pendant la chute d'un train de gouttes. Une solution 50% eau-50% éthanol avec une concentration de fluorescéine sodée égale à 10 g/l a permis d'obtenir une tension de surface de 30 mN/m. La tension de surface 66 mN/m correspond à celle d'une solution aqueuse de fluorescéine sodée de concentration égale à 10 g/l. La mise en suspension est mesurée lors de l'impaction d'un train de gouttes d'une fréquence de 0,4 goutte/s pendant 60 minutes sur un film liquide de hauteur constante. Le taux de renouvellement choisi pour l'enceinte est de 15 h⁻¹, ce qui permet d'atteindre la concentration d'équilibre au bout de 18 minutes. Le prélèvement est déclenché 12 minutes avant l'impaction de la première goutte afin d'épurer la boîte à gants ; après la fin de la chute du train de gouttes, on prélève encore pendant plusieurs minutes, ce qui permet de collecter l'aérosol restant dans le volume.

L'analyse des résultats concernant l'impaction de gouttes de diamètre $d_g = 4$ mm d'une solution aqueuse permet de mettre en évidence l'influence de la vitesse de chute des gouttes et du paramètre S_f sur la mise en suspension. La figure 4 représente le K_{MES} déterminé expérimentalement, en prenant en compte les pertes par sédimentation, en fonction de la vitesse des gouttes impactantes et du paramètre S_f .

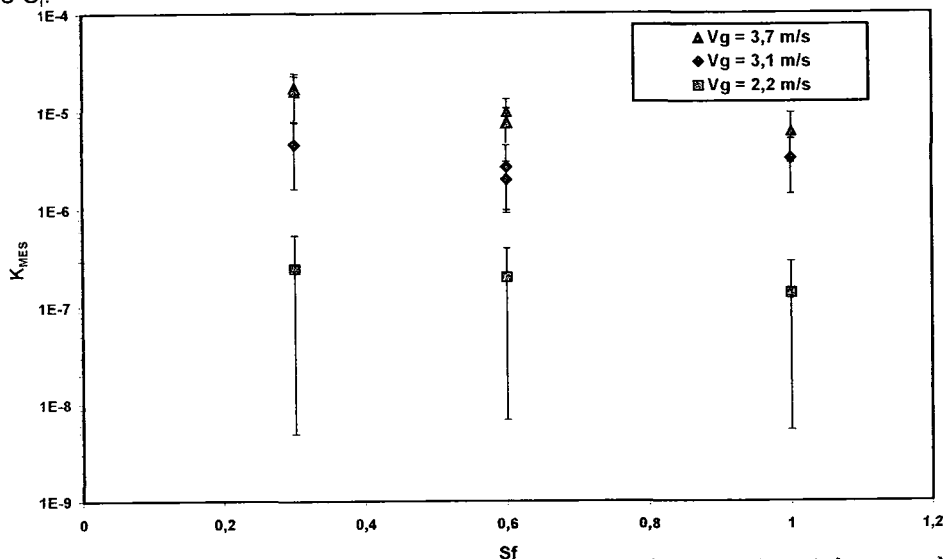


Figure 4. Evolution du K_{MES} en fonction de la vitesse des gouttes impactantes et du paramètre S_f pour un train de gouttes de diamètre égal à 4 mm à une fréquence de 0,4 goutte/s.

Ces expériences montrent l'influence de la vitesse des gouttes impactantes sur la fraction mise en suspension. La fraction mise en suspension (K_{MES}) augmente en fonction de la vitesse des gouttes impactantes de $2 \cdot 10^{-7}$ pour V_g égale à 2,2 m/s à plus de $2 \cdot 10^{-5}$ pour V_g égale à 3,7 m/s. De plus, on constate que l'augmentation de S_f a tendance à diminuer la fraction mise en suspension pour une vitesse d'impaction élevée ($V_g = 3,7$ m/s). Ces expériences ont également permis d'apprécier l'utilisation des relations de Cossali et de Vander Wal pour expliquer nos résultats. Toutes nos configurations expérimentales se situent dans le régime d'éclaboussure défini par Vander Wal. Ceci est donc cohérent avec nos mesures de la masse mise en suspension. En revanche, la relation de Cossali situe deux de nos points expérimentaux ($S_f = 0,6$ et 1 avec $V_g = 2,2$ m/s) dans le régime de dépôt, ce qui n'est pas en accord avec ce que nous mesurons en termes de particules mises en suspension. L'analyse de ces points avec notre banc vidéo confirme la présence de petites gouttes émises au premier instant de l'impaction, correspondant à un régime particulier dit « prompt splash ». Il faut donc être vigilant à l'utilisation de la relation de Cossali dans cette situation. La figure 5 représente les distributions granulométriques en nombre des micro-gouttelettes émises lors de l'impaction d'une goutte de diamètre égal à 4 mm avec une vitesse d'impaction de 3,7 m/s et des S_f de 0,3 et 0,6. Nous déterminons ces distributions granulométriques en nombre à partir de la granulométrie des résidus secs de ces micro-gouttelettes obtenue avec l'APS (diamètre aérodynamique compris entre 0,6 et 12 μm) et de la masse mise en suspension.

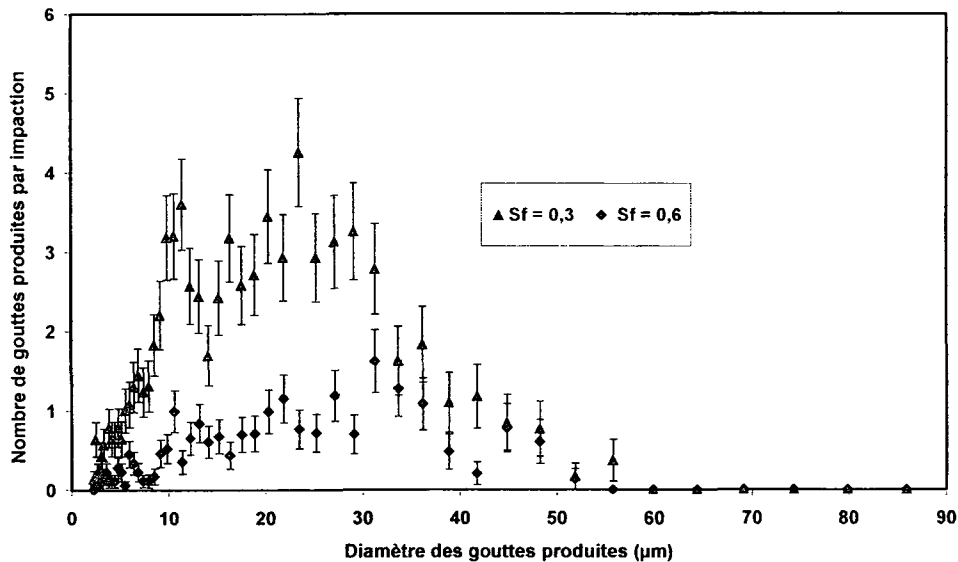


Figure 5. Granulométrie de l'aérosol émis lors de l'impaction d'un train de gouttes de diamètre égal à 4 mm avec une vitesse d'impaction de 3,7 m/s et des paramètres S_f de 0,3 et 0,6.

Dans la littérature, il n'existe que des relations décrivant le nombre et la taille des gouttes secondaires produites qui sont généralement issues de la rupture des digitations et ont un diamètre supérieur à 50 μm . Nos résultats permettent d'établir une distribution granulométrique de micro-gouttelettes émises avec des diamètres inférieures à cette limite. Nous observons que l'aérosol émis est compris entre 5 et 50 μm . De plus, sur la figure 5, nous remarquons également que le nombre des micro-gouttelettes produites par impaction diminue lorsque la hauteur du film augmente.

La relation de Wu (2003), permet de calculer un diamètre modal de 250 μm pour les gouttes produites dans nos expériences. Ce diamètre modal correspond au diamètre des gouttes secondaires issues de la rupture des digitations ; il est bien plus grand que celui des micro-gouttelettes que nous déterminons (cf. fig. 5). Ceci nous laisse supposer que dans nos expériences les micro-gouttelettes correspondent à la production de gouttes plus petites issues de deux phénomènes encore mal connus et difficiles à modéliser numériquement : le « prompt splash » décrit dans Cossali *et al.* (1997) et le pincement des digitations pendant la formation des gouttes satellites.

5. Conclusions

A notre connaissance, aucune étude expérimentale ne traite de la mise en suspension de particules lors de l'impaction de gouttelettes millimétriques. La qualification du dispositif de mesure MESIG a permis de valider l'utilisation d'un modèle de transfert de particules prenant en compte les pertes par sédimentation afin de calculer le débit de l'aérosol émis. La réalisation d'une grille expérimentale nous permet d'étudier de façon analytique l'influence de la vitesse d'impaction des gouttes, du diamètre des gouttes, de la hauteur du film liquide et de la tension de surface sur la mise en suspension.

Ces expériences montrent l'influence de la vitesse des gouttes impactantes et du paramètre S_f sur la fraction mise en suspension. Les premiers résultats ont permis d'apprécier l'utilisation de relations semi-empiriques déjà existantes, décrivant la transition entre les régimes de dépôt et d'éclaboussure. Nos résultats montrent d'une part, que l'aérosol émis a un diamètre compris entre 5 et 50 μm , d'autre part, une influence négative de la hauteur du film liquide sur le débit d'aérosol émis. L'analyse de l'ensemble de cette grille expérimentale, ainsi que des expériences complémentaires, permettront de valider une corrélation permettant de déterminer le seuil dépôt/éclaboussure de la goutte impactante en regard de la mise en suspension de particules.

Références bibliographiques

- Cossali, G.E., Coghe, A. et Marengo, M. (1997) The impact of a single drop on a wetted solid surface. *Exp. Fluids*, **22**, 463-473.
- Vander Wal, R.L., Berger, G.M. et Mozes, S.D. (2006) The splash/non-splash boundary upon a dry surface and thin fluid film. *Exp. Fluids*, **40**, 53-59.
- 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 DES AEROSOLS EMIS PAR INTERACTION LASER-MATIERE DANS LE CADRE D'EXPERIENCES DE DECAPAGE DE PEINTURES PAR LASER

P. Dewalle* (1,2,3,4), J. Vendel (1), J.-M. Weulersse (2), P. Hervé (3), V. Pina (3) et G. Decobert (4)

(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.
pascale.dewalle@irsn.fr

(2) Commissariat à l'Energie Atomique, DEN/DANS/DPC/SCP, Laboratoire Interaction Laser-Matière, Centre CEA Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France.

(3) Laboratoire d'Energétique et d'Economie d'Energie, Pôle Scientifique et Technologique de Ville d'Avray, Université Paris X-Nanterre, 1 chemin Desvallières, 92140 Ville d'Avray, France.

(4) AREVA NC, Business Unit Traitement, 2 rue Paul Dautier, 78141 Vélizy Cedex, France.

TITLE

Characterization of aerosols produced by laser-matter interaction during paint stripping experiments by laser.

ABSTRACT

At the end of lifetime of a nuclear plant, civil engineering, in particular of certain areas, must be decontaminated. For that, a surface decontamination process is considered : laser ablation. It is defined as a process during which significant amounts of matter are ejected from a surface by laser irradiation. This technology is promising for paint stripping. It allows to reduce the produced waste volume, compared with the current techniques. Nevertheless, during laser ablation, aerosols resulting from interaction between the laser beam and the target, are released. These aerosols can influence the process efficiency and present a risk for the health of operators. The aim of the study is to perform a physical and a chemical characterization of laser produced aerosols during ablation of paints. Results will provide answers on the optimal device for gas collection and particles retention for the industrialization of the process. First experiments of physical characterization of laser produced aerosols show that during the 532 nm laser ablation of a green acrylic paint, the number of released particles depends on laser fluence but not on repetition rate whereas their size distribution doesn't depend on fluence.

RESUME

A la fin de vie d'une installation nucléaire, le génie civil, en particulier de certaines zones, doit être décontaminé. Pour cela, on étudie un procédé de décontamination de surface : l'ablation par laser. On la définit comme un processus durant lequel une quantité notable de matière est éjectée d'une surface suite à son irradiation par un faisceau laser et à l'absorption de celui-ci dans le matériau. Cette technologie est prometteuse pour le décapage de peintures. Elle permet de réduire considérablement le volume de déchets engendrés lors de l'opération, par rapport aux techniques actuelles. Cependant durant l'ablation laser, des aérosols résultant de l'interaction entre le faisceau laser et la cible sont émis. Ils diminuent l'efficacité du procédé et peuvent présenter un risque pour la santé des opérateurs. L'objectif de cette étude est de réaliser une caractérisation physique et chimique des aérosols générés par ablation laser de peintures. Les résultats apporteront des réponses sur le dispositif de captage et de traitement optimal à mettre en œuvre pour l'industrialisation du procédé. Des premières expériences de caractérisation physique des aérosols émis ont permis de montrer que lors de l'ablation laser à 532 nm d'une peinture acrylique de couleur verte, le nombre de particules générées est fonction de la fluence laser mais pas de la cadence de tir alors que leur granulométrie ne dépend pas de la fluence.

1. Introduction

L'assainissement et le démantèlement des installations nucléaires représentent un enjeu technico-économique auquel sont aujourd'hui confrontés les pays nucléarisés. A la fin de vie d'une installation nucléaire, suivant l'utilisation des bâtiments définie par l'exploitant et approuvée par l'autorité de sûreté, le génie civil, en particulier de certaines zones à déchets nucléaires, doit être décontaminé. Pour cela, on étudie un procédé de décontamination de surface : l'ablation par laser. Il s'agit d'un procédé prometteur

notamment pour le décapage de peintures. Cette technologie possède l'avantage de décontaminer une paroi en la décapant de manière précise et rapide sur une épaisseur contrôlée, ce qui permet de limiter le volume des déchets. Cependant l'utilisation de cette technique conduit à l'émission de très fines particules (Lee, Cheng, 2004) résultant de l'interaction entre le rayonnement laser et la cible. Ces aérosols peuvent diminuer l'efficacité du procédé en se redéposant sur la surface traitée, en atténuant le faisceau laser ou en endommageant les composants optiques du système (Géléoc et al., 2005). Ils peuvent également présenter un risque pour la santé des opérateurs de par leur taille, leur morphologie (agrégats de particules primaires nanométriques) (Ullmann et al., 2002) et leur toxicité (Lee, Cheng, 2004).

Cette étude se déroule en collaboration avec le CEA qui possède les bancs expérimentaux dédiés à la décontamination par laser. Elle porte sur deux peintures murales employées par AREVA NC sur ses sites pour protéger les surfaces en béton ou métalliques et pour effectuer la signalisation des zones de travail.

L'objectif de l'étude globale est de réaliser, en fonction de différents paramètres opératoires, une caractérisation physique en termes de concentration, de granulométrie et de morphologie, et une caractérisation chimique qualitative et quantitative des aérosols émis par ablation laser de peintures utilisées par AREVA NC. Il s'agit également de mieux comprendre leurs mécanismes de génération. Il est intéressant d'acquérir de meilleures connaissances sur ces points car il existe peu de données à l'heure actuelle sur la caractérisation et la formation des aérosols générés par ablation laser de peintures. De plus, les résultats obtenus permettront, pour l'industrialisation du procédé, de mieux évaluer la sûreté de celui-ci vis-à-vis des opérateurs et d'optimiser les moyens de confinement et d'épuration à mettre en œuvre sur les chantiers.

Nous présentons un état de l'art sur le domaine ainsi que le dispositif expérimental pour les premières expériences de caractérisation physique des aérosols. L'objectif des essais est de déterminer, pour une cible donnée, le nombre de particules produites lors d'un tir laser ainsi que leur granulométrie en fonction de deux grandeurs laser : la fluence laser (quantité d'énergie déposée par unité de surface) et la cadence de tir.

2. Etat de l'art

Il existe de nombreuses études d'ablation par laser appliquées au décapage de peintures, notamment dans le cadre de nettoyage d'œuvres d'art ou de bâtiments. Mais les principaux efforts de recherche et de développement à ce niveau ont porté, jusqu'à présent, essentiellement sur la mise en œuvre et l'efficacité du procédé et sur la compréhension des mécanismes mis en jeu au niveau de la cible lors de l'interaction laser-peinture (Brygo, 2005). Cependant ces études ne portent pas ou peu sur les aérosols émis durant le procédé d'ablation.

Toutefois l'ablation par laser ne s'applique pas uniquement au décapage de peintures et pour d'autres applications, telles que le dépôt de couches minces, connaître et maîtriser la concentration et la granulométrie des aérosols produits est un enjeu. Par exemple, l'ablation par laser de matériaux spécifiques tels que le tungstène permet d'obtenir des nanoparticules ayant des propriétés uniques sur différents plans (mécanique, magnétique...) que ne possèdent pas le matériau mère ou des particules micrométriques de même nature (Bereznai et al., 2006, Ullmann et al., 2002).

2.1. Quelques résultats de caractérisation physique des aérosols générés par ablation laser

Une étude réalisée par Géléoc et al., (2004, 2005) a permis d'obtenir des premiers résultats sur les aérosols générés par ablation laser de peintures utilisées dans les installations nucléaires. Il a été montré que leur granulométrie est fonction de la nature de la cible mais pas de la fluence laser. Par exemple, pour une peinture de sol grise époxy, le mode de la distribution granulométrique est centré sur 73 nm et pour une peinture murale verte acrylique, il est centré sur 80 nm (diamètre aérodynamique) et cela quelles que soient les fluences appliquées.

Ces constatations ont également été réalisées par Lee et Cheng (2004) pour l'alumine, le ciment et l'acier inoxydable avec en supplément une mise en évidence d'une influence de la longueur d'onde du laser d'ablation sur la granulométrie des particules générées. En effet, pour l'acier inoxydable et le ciment, le mode de la distribution granulométrique est respectivement centré sur 45 nm et sur 75 nm pour une longueur d'onde de 266 nm et il est respectivement centré sur 60 nm et sur 50 nm (diamètres de mobilité électrique) pour ces deux matériaux pour une longueur d'onde de 1064 nm.

Ces observations n'ont pas été effectuées par Ozawa et al. (2001) et Bereznai et al. (2006) lors de leurs études. On observe pour le tungstène, par exemple, une augmentation du mode avec la fluence et l'apparition d'une distribution bimodale à partir d'une certaine valeur de fluence. Pour des valeurs inférieures à 2 J.cm^{-2} , le mode de la distribution granulométrique se situe aux alentours de 20 nm. Pour des fluences supérieures à 2 J.cm^{-2} , la distribution est bimodale et est centrée sur 20 nm et 40 nm. Lee et Cheng ont également observé pour leurs cibles à une longueur d'onde de 266 nm, une distribution bimodale centrée sur 40-70 nm et 700-850 nm, mais sans effet de la fluence sur celle-ci. Pour ces auteurs, l'observation d'une

distribution bimodale permet d'émettre l'hypothèse suivante : deux mécanismes de génération seraient à l'origine de la présence de particules de deux tailles différentes. Nous pouvons en conclure que la granulométrie des aérosols générés par ablation peut être fonction de la fluence, de la nature des cibles et de la longueur d'onde du laser d'ablation.

Les auteurs cités précédemment ont également montré l'influence d'autres grandeurs laser telles que la cadence de tir. Les résultats restent néanmoins encore peu détaillés dans la littérature (Bereznai et al., 2006). D'autres paramètres sont à prendre en compte tels que la nature de l'environnement sous lequel se déroule l'ablation (nature et pression du gaz vecteur). Ozawa et al. (2001) ont montré une augmentation de la taille des particules générées avec la pression du gaz vecteur (He) pour celles ayant un diamètre inférieur à 80 nm. Ullmann et al. (2002) font mention d'ablation laser réactive et non réactive. Le matériau est évaporé et condensé dans le même état chimique ou non en fonction de la nature du gaz en présence.

Néanmoins, une remarque est commune à tous les articles présentés : quelles que soient la longueur d'onde, la durée d'impulsion, la cadence de tir et la nature de la cible, la concentration de particules générées au cours de l'ablation augmente avec la fluence, selon des pentes et des valeurs absolues différentes. Le plus souvent, un effet de saturation est observé pour les plus fortes fluences étudiées. Des observations spécifiques ont été réalisées par Géléoc et al. (2004, 2005) et par Bereznai et al. (2006) concernant les fines particules (diamètre inférieur à 30 nm). Leur proportion diminue avec la fluence pour le tungstène (Bereznai et al., 2006) et pour une peinture murale verte acrylique (Géléoc et al., 2004, 2005). Néanmoins elle augmente avec la fluence pour une peinture de sol grise époxy (Géléoc et al., 2004, 2005). De plus, pour Bereznai et al. (2006), leur proportion diminue pour les fortes cadences de tir (50 Hz).

2.2. Hypothèses concernant les mécanismes de génération des aérosols

Selon Ullmann et al. (2002) et les observations morphologiques réalisées par Lee et Cheng (2004) ainsi qu'Ozawa et al. (2001), les particules caractérisées seraient des agrégats de particules primaires nanométriques. Différents mécanismes potentiels pour expliquer leur formation ont été proposés dans la littérature ces dernières années (Ullmann et al., 2002, Marton et al., 2004, Lushnikov, 1996). La formation de ces particules est complexe et n'est pas encore totalement comprise.

L'ablation d'un matériau par une impulsion laser de forte intensité (MW.cm^{-2} – GW.cm^{-2}) de quelques nanosecondes peut être décrite de la manière suivante (Brygo, 2005, Liu, 2005). Quand le faisceau laser atteint la surface de la cible, une partie ou la totalité de celui-ci est absorbée dans le matériau ce qui conduit à une élévation brutale de sa température accompagnée d'une diffusion de chaleur dans celui-ci. Si la température est suffisante, une partie de la matière est éjectée sous forme de vapeur et/ou de fragments de matière et forme le panache. L'expansion rapide du panache induit une onde de choc qui se propage dans l'atmosphère ambiante. Les éléments du panache peuvent entrer en interaction par diffusion ou par absorption avec une partie du faisceau laser. Si l'intensité du faisceau laser est suffisante, un plasma peut se créer au-dessus de la surface de la cible conduisant à une diminution de l'énergie déposée dans le matériau. Après l'impulsion laser, le milieu se refroidit : les agrégats de particules se forment et évoluent. Le mécanisme probable pour la formation de ces agrégats serait le suivant : nucléation/croissance par condensation pour former des monomères (les atomes, les molécules et les ions présents forment de très petits clusters (≈ 1 nm) sur lesquels les vapeurs peuvent condenser), puis coagulation (les clusters entrent en collision et fusionnent pour former des particules primaires (quelques nm) et enfin agglomération (les particules primaires s'attachent les unes aux autres et ainsi forment des agrégats). Ce mécanisme de formation des agrégats serait extrêmement rapide, l'agglomération débiterait 10 μs après l'impulsion laser (Ullmann et al., 2002). Ce comportement est essentiellement lié à l'évolution de la température dans le milieu (refroidissement rapide). Néanmoins, pour certains matériaux, comme des métaux (cuivre, zinc, tungstène), le silicium, le ciment ou l'alumine, une éjection de particules liquides ou solides directement de la cible est observée (Liu, 2005, Lee, Cheng, 2004, Ozawa et al., 2001). Elles résulteraient d'autres mécanismes de génération que celui présenté précédemment. Leur taille est plus importante que celle des agrégats, elle est de l'ordre de quelques centaines de nanomètres à quelques dizaines de micromètres. Pour certains matériaux (cuivre, silicium, tungstène...), selon la fluence laser appliquée, la diffusion de chaleur suite à l'impulsion laser entraînerait une fusion sur une certaine épaisseur conduisant à l'éjection de gouttelettes. Pour d'autres (graphite, verre...), l'impulsion laser serait à l'origine d'effets d'expansion et de contraintes thermiques tellement importantes que celles-ci conduiraient à une « fracture » du matériau et par conséquent à l'éjection de particules solides.

3. Dispositif expérimental pour la caractérisation physique des aérosols

Un laser Nd:YAG (« Brilliant » Quantel) de type Q-Switch est utilisé à la longueur d'onde λ de 532 nm. La durée de l'impulsion τ est de 4 ± 1 ns. La plage de fréquence de tir f disponible est : 0,1 Hz – 10 Hz (régime

cadencé). Il est possible de travailler également en régime mono impulsif. Sur le banc, un système optique combinant une lentille divergente (L_1), deux lentilles convergentes (L_2 et L_3) et un diaphragme permet d'obtenir sur la cible un faisceau laser carré homogène en énergie de dimensions $700 \times 700 \mu\text{m}^2$. La variation de l'énergie sur la cible est réalisée grâce à un système d'atténuation du faisceau comprenant une lame à retard $\lambda/2$ et un cube polariseur. La durée de l'impulsion laser τ est contrôlée via la détection d'une fuite du faisceau à travers un miroir (M_2) par une photodiode. La mesure de l'énergie de chaque impulsion est réalisée par un joulemètre placé derrière un miroir de fuite (M_4). Une caméra CCD placée derrière un miroir de fuite (M_5) et le système d'acquisition SPIRICON permettent de caractériser le faisceau en termes de dimensions et d'homogénéité.

Afin de réaliser la caractérisation physique des aérosols générés par l'ablation laser, un prélèvement est nécessaire. Pour cela, l'ablation se déroule dans une cellule cylindrique en verre de volume 118 cm^3 dans laquelle est placé l'échantillon. Elle est ventilée par de l'air atmosphérique filtré. Les aérosols produits sont acheminés via ce gaz vecteur vers les appareils de mesure. On travaille à pression et température ambiantes. Il s'agit de la cellule d'ablation mise en œuvre lors des essais réalisés par Géléoc et al. (2004, 2005).

La cible étudiée est une peinture murale verte à base de copolymère acrylique. Elle est déposée sur une plaque en aluminium (qui est ensuite découpée en cubes de dimensions $2 \times 2 \times 2 \text{ cm}^3$) de façon à obtenir une couche épaisse ($e \approx 150 \mu\text{m}$), ce qui permet d'ablater la peinture sans que le substrat ne soit atteint.

La cellule avec l'échantillon est placée sur le banc laser après la lentille L_3 . Pour la caractérisation des aérosols, les deux appareils de mesure utilisés sont un CNC (Compteur de Noyaux de Condensation) et un EEPS (Engine Exhaust Particle Sizer). Le CNC permet d'obtenir une concentration en particules en fonction du temps (une mesure toutes les secondes) et l'EEPS une granulométrie effectuée en diamètre de mobilité électrique sur la gamme $5,6 - 560 \text{ nm}$ en fonction du temps (une mesure toutes les $0,1$ secondes).

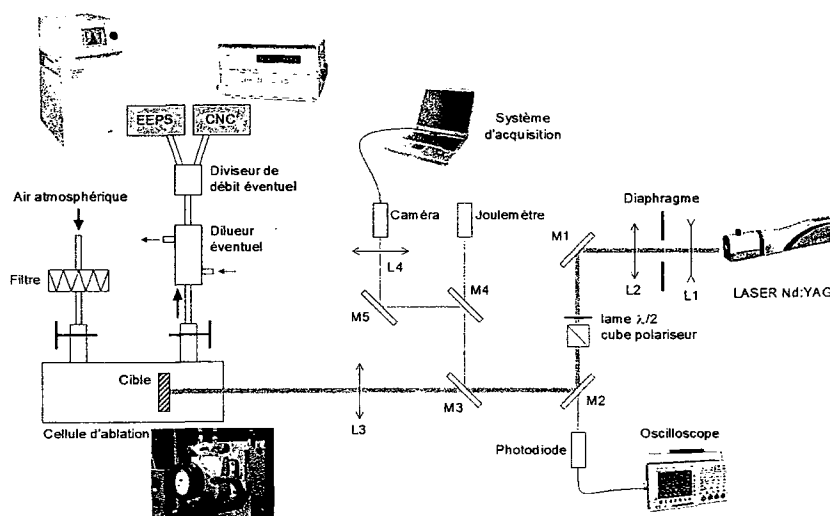


Figure 1 : Dispositif expérimental

4. Résultats

Dans cette étude, on ne travaille pas sur un unique tir laser, pourtant détectable par les appareils de mesure, mais avec une séquence de tirs car nous avons observé une certaine dispersion des résultats liée au nombre de tirs réalisés (et donc à la profondeur ablatée), ainsi qu'à la position sur la cible. Les résultats présentés ici en tiennent compte.

Nous avons tout d'abord travaillé en régime mono impulsif avec un unique point d'impact par séquence de tir. Il s'agit de séquences d'au moins 30 tirs réalisés au moins toutes les 30 secondes. Entre chaque séquence de tir, on fait varier la fluence du faisceau sur la cible et on déplace le faisceau à un autre endroit de l'échantillon.

Ensuite nous avons travaillé en régime cadencé entre $0,1 \text{ Hz}$ et 10 Hz avec un unique point d'impact par séquence de tir. Il s'agit de séquences d'au moins 100 tirs réalisés à la cadence et à la fluence désirées. Pour chaque fluence, on fait varier la cadence de tir et on déplace le faisceau à un autre endroit de la cible pour une nouvelle fréquence.

Lors d'un tir laser, les aérosols sont émis sous la forme d'une bouffée. Après chaque tir, on observe une augmentation rapide de la concentration puis une décroissance jusqu'à la concentration stable initiale correspondant au bruit de fond (aérosol atmosphérique filtré). Pour chaque essai, afin de pouvoir comparer les résultats entre eux, nous déterminons le nombre de particules, N , émises lors d'un tir laser de la façon

suivante : $N = (C_{moy} - C_{bruit}) * Q * \Delta t$ avec C_{moy} représentant la concentration moyenne en particules émises sur la durée Δt de la bouffée d'aérosols, C_{bruit} , celle en particules avant le tir laser (bruit de fond) et Q , le débit de prélèvement en sortie de cellule.

Sur la figure 2 est représentée l'évolution du nombre de particules émises lors d'un tir laser en fonction de la fluence. Ce nombre est compris entre $5 \cdot 10^5$ et $6,9 \cdot 10^8$ particules par tir. Il augmente rapidement sur une plage de fluence assez restreinte : de 0,2 à 1 $J \cdot cm^{-2}$, on passe de $5 \cdot 10^5$ à $3 \cdot 10^8$ particules par tir. Puis pour des fluences supérieures à 1 $J \cdot cm^{-2}$, on observe un effet de saturation. Cette évolution est en accord avec la littérature pour l'ablation d'autres matériaux que la peinture et avec les essais ayant été effectués antérieurement dans les mêmes conditions (Géléoc et al., 2004, 2005). Ces essais ont également permis de montrer un comportement similaire en termes de nombre de particules produites et de profondeur ablatée par tir (figures 2 et 3). On identifie trois fluences caractéristiques du même ordre de grandeur que celles déterminées vis-à-vis de la profondeur ablatée. Il s'agit de la fluence au seuil d'ablation F_{seuil} (fluence pour laquelle une ablation significative est mesurée) ($F_{seuil} \approx 0,3 J \cdot cm^{-2}$), celle au maximum d'efficacité d'ablation F_{max} (fluence pour laquelle le rapport nombre de particules générées sur énergie délivrée à la surface est maximal) ($F_{max} \approx 0,9 J \cdot cm^{-2}$) et celle à la saturation d'ablation F_{sat} (fluence pour laquelle le nombre de particules émises n'évolue plus avec la fluence) ($F_{sat} > 1 J \cdot cm^{-2}$).

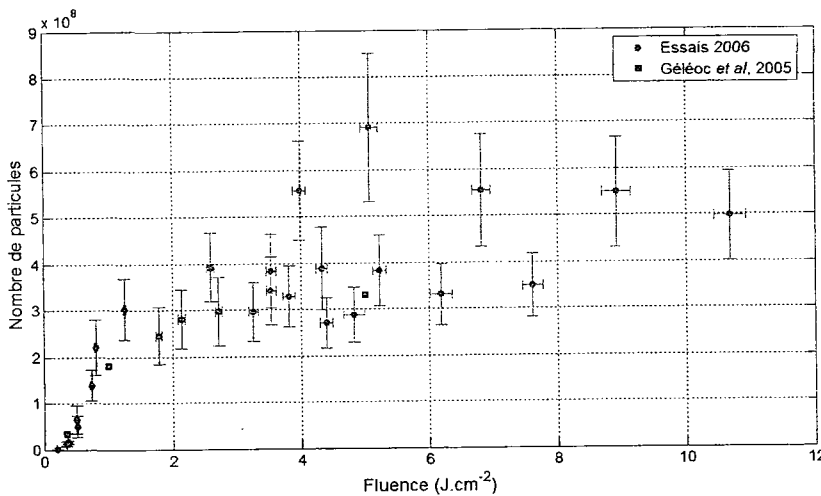


Figure 2 : Nombre de particules émises lors d'un tir laser en fonction de la fluence, régime mono impulsif, résultats CNC

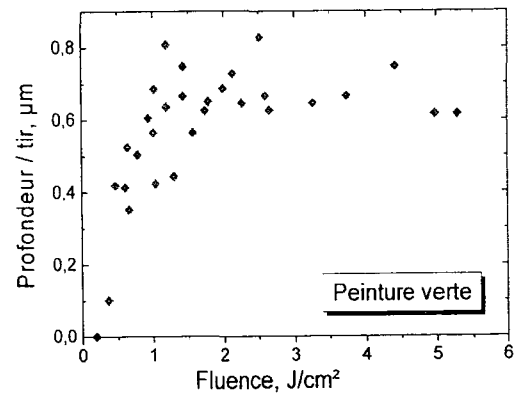


Figure 3 : Profondeur ablatée par tir en fonction de la fluence, 1-10-20 Hz, $\tau = 5$ ns (Brygo, 2005)

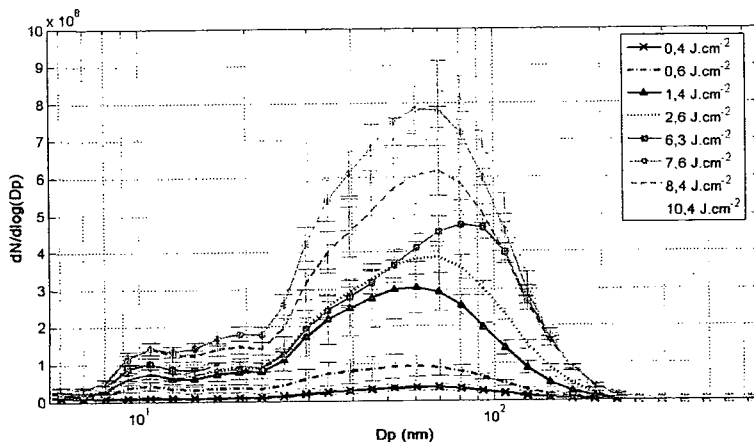


Figure 4 : Distributions granulométriques moyennes de l'aérosol émis lors d'un tir pour différentes fluences, régime mono impulsif, résultats EEPS

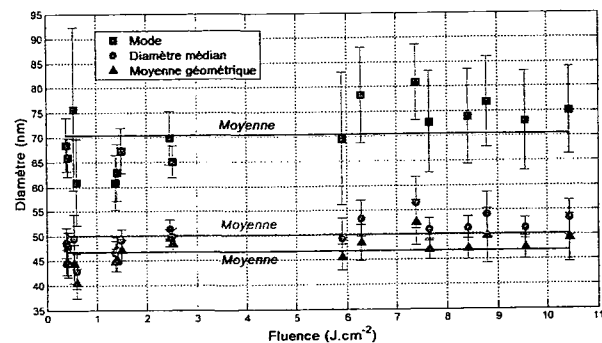


Figure 5 : Evolution des paramètres caractéristiques des distributions granulométriques en fonction de la fluence

Sur la figure 4 sont représentées les distributions granulométriques moyennes de l'aérosol émis lors d'un tir pour différentes fluences. Elles ont été déterminées à partir des données fournies par l'EEPS. Le mode de la distribution est centré sur 70 nm (+/- 8 nm) (diamètre de mobilité électrique). Le diamètre médian en nombre est de 50 nm (+/- 3 nm), la moyenne géométrique de 47 nm avec un écart-type géométrique de 3. L'aérosol émis est ainsi essentiellement constitué de particules nanométriques, ce qui est en accord avec les résultats de la littérature. Nous n'avons pas observé pour cette peinture une influence majeure de la fluence sur la

granulométrie des particules émises comme le montre la figure 5 sur laquelle est représentée l'évolution des paramètres caractéristiques des distributions granulométriques (ici la moyenne géométrique, le mode et le diamètre médian) en fonction de la fluence.

Des essais réalisés en régime cadencé ont également permis de montrer qu'entre 0,03 Hz et 10 Hz, la cadence de tir a peu d'influence sur le nombre de particules générées (figure 6).

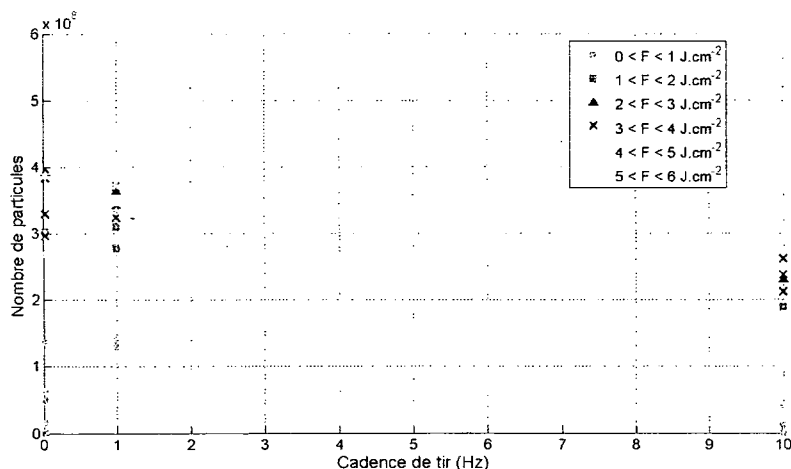


Figure 6 : Nombre de particules émises lors d'un tir laser en fonction de la fluence et de la cadence de tir, régime cadencé, résultats CNC

5. Conclusions et perspectives

Les premiers résultats de caractérisation physique des aérosols générés par ablation laser d'une peinture acrylique verte montrent des effets de la fluence laser, mais pas de la cadence de tir, sur la quantité totale de particules produites. Néanmoins leur granulométrie n'est pas fonction de la fluence. Ces essais sont à compléter par des analyses sur les plans chimiques, morphologiques, granulométriques (étude d'une gamme plus étendue). Nous réaliserons également des pesées pour avoir une information sur la masse de particules générées. L'ensemble des informations obtenues nous permettra d'avoir une caractérisation complète des aérosols émis par ablation laser d'une peinture spécifique en fonction de différents paramètres opératoires et dans des conditions particulières (sous air atmosphérique filtré à température et pression ambiantes). Ayant aussi pour objectif de comprendre le ou les mécanismes de génération des aérosols durant le procédé, nous menons en parallèle une réflexion sur des méthodes in-situ pour pouvoir caractériser les différentes étapes de formation des particules ; la première expérience envisagée est la réalisation de mesures d'extinction du nuage de particules afin de réaliser un suivi de sa densité de matière en fonction du temps.

Références bibliographiques

- Bereznai, M., Heszler, P., Toth, Z., Wilhelmsson, O., & Boman, M., (2006). Measurements of nanoparticle size distribution produced by laser ablation of tungsten and boron-carbide in N₂ ambient. *Applied Surface Science*, 252, 4368-4372.
- Liu, C., (2005). A study of particle generation during laser ablation with applications. *PhD Thesis*, University of California.
- Brygo, F., (2005). Etude de l'interaction laser-matière appliquée à la décontamination de peintures. *Thèse de Doctorat*, Université de Bourgogne.
- Géléoc, M., Blanc C., Brygo, F., Hubert, C., & Tabarant M., (2005). Décapage de peintures COGEMA par laser basse cadence. Bilan des mesures et analyses granulométriques. *Rapport d'activité*, NT DPC/SCP/LILM/05-140.
- Géléoc, M., & Gensdarmes, F., (2004). Caractérisation d'aérosols générés par ablation laser de peintures sur béton. *20^{ème} Congrès Français sur les Aérosols, Paris*.
- Lee, D.-W., & Cheng, M.-D., (2004). Particle generation by laser ablation during surface decontamination. *Journal of Aerosol Science*, 35, 1527-1540.
- Lushnikov, A.A., (1996). Laser induced aerosols. *Journal of Aerosol Science*, 27, suppl. 1, S377-S378.
- Marton, Z., Landström, L. & Heszler, P., (2004). Early stage of the material removal during ArF laser ablation of graphite. *Applied Physics A, Materials Science & Processing*, 79, 579-584.
- Ozawa, E., Kawakami, Y., & Seto, T., (2001). Formation and size control of tungsten nanoparticles produced by Nd:YAG laser irradiation. *Scripta Materialia*, 44, 2279-2283.
- Ullmann, M., Friedlander, S.K., & Schmidt-Ott, A., (2002). Nanoparticle generation by laser ablation. *Journal of Nanoparticle Research*, 4, 499-509.

MODELISATION DU TRANSFERT DES AEROSOLS DANS UN LOCAL VENTILE.

P. Nerisson*(1), L. Ricciardi(1), O. Simonin(2), J. Fazileabasse(3).

(1) Laboratoire d'Etudes et de Modélisation en Aérodispersion et Confinement,
IRSN/DSU/SERAC, BP 68, 91192 Gif sur Yvette cedex.
philippe.nerisson@irsn.fr

(2) Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, UMR 5502 CNRS/INPT/UPS
allée du professeur Camille Soula, 31400 Toulouse.

(3) EDF R&D, 6 quai Watier, BP 49, 78401 Chatou cedex.

TITLE

Modeling aerosol transfers in a ventilated room

ABSTRACT

When particulate radioactive contamination is likely to become suspended in a room, it is necessary to have access to aerosol concentration in every point of this room, to ensure protection of operators and supervision of workspaces. Thus, a model of aerosol transport and deposition is currently developed as part of a project started both with IRSN, EDF and IMFT. This model is supposed to be incorporated subsequently in a CFD program. Bibliographical researches revealed lots of ways to model multiphase flows. But in this study, the low-inertia of aerosols (aerodynamic diameter smaller than some ten microns) allows the use of a simplified eulerian model, called "diffusion-inertia model". This model contains a single transport equation of aerosol concentration. The study of deposition on walls needs a specific approach, based on works establishing theoretical or semi-empirical expressions of deposition velocities. The model of transport and deposition will be qualified according to tracing experiments, first in laboratory rooms (36 and 1500 m³). Then, a final qualification in a reactor building may be carried out.

RESUME

La protection des opérateurs et la surveillance des ambiances de travail en cas de mise en suspension d'aérosols radioactifs passent par la connaissance de l'évolution spatio-temporelle de la concentration en particules, en tout point du local considéré. L'estimation précise de cette concentration fait l'objet du développement de modèles de transport et de dépôt d'aérosols dans un local ventilé, dans le cadre d'une thèse cofinancée par l'IRSN et EDF, en collaboration avec l'IMFT. Ces modèles seront ensuite implémentés dans un code de calcul, pour pouvoir à terme réaliser des simulations de dispersion d'aérosols dans des locaux de différentes échelles. Une étude bibliographique sur le sujet a permis de recenser divers modèles de transport de particules dans un local, et d'identifier le plus adapté au contexte de la thèse. En effet, la faible inertie des aérosols étudiés (diamètre aérodynamique inférieur à quelques dizaines de microns) autorise l'utilisation d'un formalisme eulérien de glissement, basé sur une unique équation de transport des concentrations en particules (« diffusion-inertia model »). La problématique du dépôt nécessite une étude spécifique en proche paroi, s'appuyant, dans une première approche, sur des travaux théoriques ou semi-empiriques établissant des expressions de vitesses de dépôt. La qualification des modèles de transport et de dépôt se fera via des campagnes expérimentales de traçage dans des locaux ventilés, à échelle réduite dans un premier temps (36–1500 m³). Une qualification finale à l'échelle d'un bâtiment réacteur sera éventuellement envisagée.

1 – Contexte et objectifs de la thèse

Dans le cadre d'une collaboration entre EDF et l'IRSN, visant à améliorer la connaissance du risque de contamination particulaire, une thèse sur la modélisation du transfert des aérosols dans un local ventilé a été lancée au Laboratoire d'Etudes et de Modélisation en Aérodispersion et Confinement (DSU/SERAC/LEMAC) en décembre 2005. L'évaluation de la quantité de contaminant susceptible d'être inhalé par un opérateur et la surveillance des ambiances de travail en cas de mise en suspension d'aérosols radioactifs reposent en effet sur la connaissance de l'évolution spatio-temporelle de la concentration en contaminant en tout point du local considéré.

Plus précisément, deux problématiques distinctes doivent être étudiées au travers de cette thèse :

- d'une part la dispersion d'aérosols en champ proche de la zone d'émission, principalement pilotée par la vitesse d'émission du polluant (fuite accidentelle) ou par la diffusion turbulente environnante (fuite diffuse) ;

- d'autre part la dispersion d'aérosols en champ lointain, pilotée par l'aérodynamique du local et le dépôt des aérosols sur les parois du local et les obstacles qu'il renferme.

Ce second point constitue la majeure partie des travaux à mener, la dispersion en champ proche en cas de fuite accidentelle ayant été notamment abordée dans le cadre de la thèse de Guerra (2004).

La première partie de la thèse a donc pour objectif de recenser précisément les phénomènes et paramètres pilotant la répartition des concentrations particulières dans un local, via une étude bibliographique. Une fois cette synthèse effectuée, les travaux seront axés sur le développement et la validation de modèles multi-D qui, après implémentation dans un code de calcul, permettront de prévoir la dispersion d'un aérosol dans un local et d'évaluer la quantité susceptible d'être inhalée par un opérateur. L'obtention de tels modèles constitue l'objectif principal de la thèse.

Cette modélisation devra être applicable à différentes échelles de locaux : locaux de taille moyenne (dans une installation de type laboratoire ou usine) et enceintes très volumineuses (bâtiment réacteur en maintenance).

Les phases de validation des modèles feront l'objet de campagnes expérimentales de traçage dans deux locaux ventilés du Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et Confinement (DSU/SERAC) : l'un de 36 m³ et l'autre de 1500 m³. Une qualification finale sur un bâtiment réacteur en phase de maintenance est également envisagée.

2 – Présentation de l'étude bibliographique

L'étude bibliographique du transfert d'aérosols dans l'air se divise en plusieurs familles de travaux. Chacune d'elles aborde le problème avec des techniques et des outils différents. On distingue en effet :

- les approches expérimentales, mettant en œuvre diverses techniques pour évaluer les concentrations en aérosols,
- les approches numériques, utilisant des codes de calcul de type CFD¹,
- les approches analytiques : travaux plutôt théoriques visant à développer par exemple un modèle de dépôt d'aérosols.

Les travaux visant à étudier le transfert d'aérosols dans un local ventilé apportent de nombreux éléments sur le transport d'aérosols par les écoulements d'air (quantité d'aérosols en suspension dans le local, ou évacués par la ventilation...), mais font également ressortir l'importance et la complexité du phénomène de dépôt associé à ce transport. En effet, un nombre important de mécanismes de dépôt est à prendre en considération : sédimentation, impaction, diffusion turbulente, diffusion brownienne... De plus, l'influence de ces modes de dépôt est très variable suivant la taille des aérosols considérés. Tous ces phénomènes ont une influence directe sur les valeurs des concentrations particulières, grandeur-clé du problème, que l'on cherche à déterminer en tout point du local. D'après des études de poste récentes réalisées dans un bâtiment réacteur à l'arrêt, la granulométrie à étudier s'échelonne de 0,1 à quelques dizaines de micromètres, montrant que les mécanismes inertiels et diffusionnels doivent être pris en compte, ainsi que des effets électrostatiques. On s'intéressera tout d'abord, dans ce qui suit, au transfert d'aérosols à l'échelle d'un local, avant de regarder plus précisément la problématique du dépôt en paroi.

¹ Computational Fluid Dynamics

3 – Transport et dépôt d'aérosols à l'échelle d'un local

Ce type de travaux s'inscrit généralement dans des projets d'amélioration de la qualité de l'air dans l'habitat. Leur objectif est donc une optimisation des stratégies de ventilation des locaux. Pour cela, les auteurs cherchent essentiellement à déterminer des formules de dépôt global, à l'échelle d'un local. En effet, il est rarement fait mention de mesures ponctuelles de concentrations en aérosols dans un local, ou d'évaluation de quantité d'aérosols déposés localement en paroi.

3.1 – Approche expérimentale

La littérature présente de nombreux travaux expérimentaux étudiant le transfert et le dépôt de particules dans des locaux. Les principales techniques rencontrées sont (Bemer et al., 2001 ; Thatcher et al., 2002) :

- le traçage gazeux (caractérisation de l'aérodynamique d'un local et étude du transfert d'aérosols submicroniques loin des parois), utilisant de l'hélium ou de l'hexafluorure de soufre (SF_6),
- le traçage particulaire, utilisant par exemple de la fluorescéine sodée (uranine) ou des poudres calibrées (oxydes d'aluminium), qui permet l'étude du transfert d'aérosols jusqu'à $10 \mu\text{m}$.

La figure 1 montre une courbe caractéristique du taux de dépôt global en fonction du diamètre de la particule.

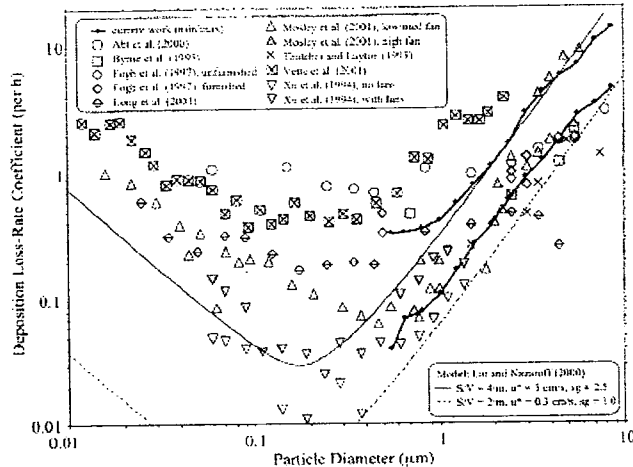


Figure 1 : évolution du taux de dépôt global d'aérosols dans un local (Thatcher et al., 2002)

Le taux de dépôt global est généralement déterminé par analyse, à l'extraction du local, de l'évolution de la concentration (comptage optique). Les courbes de dépôt théoriques de la figure 1 montrent que le dépôt passe par un minimum : en effet, les plus petites particules se déposent davantage par diffusion brownienne, tandis que les plus grosses particules sont fortement soumises à la sédimentation.

3.2 – Approche numérique (simulations CFD)

Il existe plusieurs méthodes pour modéliser les écoulements diphasiques constitués d'une phase continue (ou phase porteuse, ici l'air) et d'une phase dispersée (aérosols) :

- les méthodes Euler-Lagrange, où chaque particule est suivie individuellement (équation de la trajectoire pour chaque particule),
- les méthodes Euler-Euler, où les particules sont vues comme une phase continue (équations de transport de type milieux continus pour la phase dispersée).

Le tableau 1 montre la diversité des méthodes rencontrées dans la littérature pour modéliser des écoulements gaz-particules dans des locaux, ceci malgré la grande similitude des contextes d'étude.

Tableau 1 : différentes modélisations d'écoulements gaz-particules dans des locaux

Référence	Méthode de simulation de la phase continue	Modélisation de la turbulence du fluide	Méthode de simulation de la phase dispersée	Granulométrie	Forces considérées	Rétroaction des particules sur la turbulence du fluide
W. Lu, A.T. Howarth, 1999	Formulation RANS	k-ε standard	lagrangien	$d_p = 1 \text{ à } 5 \mu\text{m}$	gravité, traînée	oui
B. Zhao, Y. Zhang et al., 2004	Formulation RANS	k-ε RNG	lagrangien	$d_p = 1 ; 2,5 ; 5 ; 10 \mu\text{m}$	gravité, traînée, portance, brownienne	non
J. Bouilly, K. Limam et al., 2005	Formulation LES	Modèle de Jiang et Chen	lagrangien	$d_p = 0,3 \text{ à } 15 \mu\text{m}$	gravité, traînée	non
B. Zhao, X. Li et al., 2004	Formulation RANS	Modèle à 0 équation	eulérien, « drift-flux model »	$d_p = 1 ; 2,5 ; 5 ; 7,5 ; 10 \mu\text{m}$	gravité, traînée	non
S. Holmberg, Y. Li, 1998	Formulation RANS	k-ε standard	eulérien, « drift-flux model »	$d_p = 0,5 - 6 \mu\text{m}$	gravité, traînée	non

De façon générale, les modèles lagrangiens simulent relativement correctement le transport des aérosols à grande échelle, ceci d'autant plus que les particules suivies ont une forte inertie. Mais ils sont insuffisants pour étudier le traitement du dépôt en paroi. En effet, les écoulements d'air dans les locaux sont généralement simulés avec des méthodes dites RANS (Reynolds Averaged Navier Stokes), nécessitant l'introduction d'un modèle de turbulence pour fermer le problème (Lu et Howarth, 1999 ; Zhao *et al.*, 2004). De tels modèles ne résolvent pas correctement la turbulence de l'écoulement, particulièrement en couche limite (malgré l'utilisation de lois de paroi), et ainsi ne sont pas réalistes pour le dépôt de particules ayant une faible inertie (i.e. dont la trajectoire dépend des moindres fluctuations de l'écoulement d'air).

Pour mieux traiter le problème du dépôt, il faudrait être en mesure de résoudre complètement les équations de l'écoulement d'air, et ainsi connaître toutes les échelles de la turbulence du fluide. Une simple condition d'adhésion de la particule à la paroi rencontrée aurait alors un sens. De telles méthodes existent, appelées Simulation Numérique Directe (DNS). Malheureusement, le coût de ces simulations est si important qu'elles ne sont envisageables actuellement que pour des géométries très simples (canal, conduit) et, en aucun cas, transposables à l'échelle d'un local ventilé. Cependant, les résultats de DNS dans ces géométries simples peuvent être utiles au développement de modèles analytiques de dépôt (cf. §4.1).

Certains travaux tentent d'améliorer la modélisation de la turbulence du fluide en introduisant une méthode LES pour l'écoulement d'air (Large Eddy Simulation : simulation des grandes échelles), toujours couplée à un suivi lagrangien des particules (Bouilly *et al.*, 2005). Ce type de méthode, intermédiaire entre RANS et DNS en termes de coût de calcul, permet surtout une meilleure description des structures turbulentes de grande taille (d'où son nom), mais elle n'améliore pas la modélisation de la turbulence en couche limite ; le problème du dépôt reste donc entier.

Comme énoncé précédemment, des méthodes eulériennes sont également rencontrées pour le suivi de particules. Ces méthodes, de par leur approche du problème, sont parfois appelées méthodes bi-fluide. Il existe plusieurs formalismes eulériens pour obtenir les équations de transport de la phase dispersée, qui diffèrent par la technique utilisée pour moyenniser ces équations : moyennes de Reynolds, moyennes phasiques, méthodes statistiques.

D'après plusieurs auteurs, lorsque la problématique du dépôt d'aérosols est couplée à celle du transport, et au vu de la faible inertie des particules étudiées, la modélisation la plus pertinente de l'écoulement gaz-particule repose sur un modèle Euler-Euler simplifié, appelé modèle de glissement ou encore « drift-flux model » (Holmberg et Li, 1998 ; Zhao *et al.*, 2004 ; Chen *et al.*, 2006). Le

transport des particules est alors représenté par une équation de transport de concentrations (transport d'un scalaire), prenant en compte les effets de sédimentation :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} \{ [U_{f,j} + \tau_p g_j] C \} = \frac{\partial}{\partial x_k} \left(D_{p,ik} \frac{\partial C}{\partial x_k} \right)$$

avec C : concentration en aérosols, $U_{f,i}$: vitesse du fluide, τ_p : temps de relaxation des particules, g_i : accélération de la pesanteur, $D_{p,ik}$: coefficient de diffusion turbulente.

L'avantage majeur de ce modèle simplifié est de réduire considérablement le nombre d'équations à résoudre lorsque plusieurs tailles de particules doivent être suivies, et par conséquent de limiter les temps de calcul.

Plus récemment, Zaïchik *et al.* (2004) ont également développé un modèle de transport de concentrations d'aérosols à faible inertie, en tenant compte de davantage de phénomènes physiques. Ce modèle a été établi dans le cadre d'une approche statistique eulérienne basée sur une équation de transport de la fonction densité de probabilité des particules. L'idée est de réécrire l'équation de continuité de la phase dispersée, après avoir déterminé la vitesse des particules $U_{p,i}$:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} \{ U_{p,i} C \} = 0 \quad \text{équation de continuité (1)}$$

En négligeant les effets de portance et de masse ajoutée, on peut expliciter $U_{p,i}$:

$$U_{p,i} = U_{f,i} - D_{p,ik} \frac{1}{C} \frac{\partial C}{\partial x_k} + \tau_p \left[g_i - \left(\frac{\partial U_{f,i}}{\partial t} + U_{f,k} \frac{\partial U_{f,i}}{\partial x_k} \right) - \frac{1}{\tau_p} \frac{\partial}{\partial x_k} \left(D_{p,ik} \frac{\Omega}{1 + \Omega} \right) \right] \quad (2)$$

avec $\Omega = \frac{\tau_p}{\tau_{fp}}$, τ_{fp} : temps d'interaction particule-tourbillon.

En injectant (2) dans (1), on obtient l'équation du modèle :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} \left\{ \left[U_{f,i} + \tau_p g_i - \tau_p \left(\frac{\partial U_{f,i}}{\partial t} + U_{f,k} \frac{\partial U_{f,i}}{\partial x_k} \right) \right] C \right\} = \frac{\partial}{\partial x_k} \left(D_{p,ik} \frac{\partial C}{\partial x_k} + C \frac{\partial}{\partial x_k} \left(D_{p,ik} \frac{\Omega}{1 + \Omega} \right) \right)$$

On retrouve le « drift-flux model », auquel sont ajoutés deux termes : l'effet de déviation des particules par rapport aux lignes de courant du fluide (dernier terme du membre de gauche) et l'effet de migration des particules vers les zones moins agitées, ou turbophorèse (dernier terme du membre de droite).

Pour utiliser une telle méthode, il faut s'assurer que le temps de relaxation des particules (τ_p) reste petit devant le temps de vie apparent des structures turbulentes (τ_{fp}) pour la particule. Cette condition est vérifiée dans le contexte de la thèse, ce qui encourage à retenir cette approche pour modéliser le transport de la phase dispersée. Pour compléter ceci, il reste à modéliser les conditions limites en paroi, via le développement d'un modèle de dépôt dans la couche limite tenant compte des différents mécanismes de dépôts élémentaires.

4 – Dépôt d'aérosols en paroi

4.1 - Travaux expérimentaux

Ces travaux correspondent aux premières expérimentations d'écoulements gaz-particules sur des géométries simples (conduits) en régime turbulent (Charauau, 1982). Ils aboutissent à l'élaboration de relations semi-empiriques pour la vitesse de dépôt par impaction turbulente, diffusion turbulente et diffusion brownienne. Ces relations sont toujours utilisées aujourd'hui, notamment dans des codes de calcul traitant du dépôt d'aérosols en conduit. Les corrélations obtenues sont par exemple :

- régime de diffusion : $V^+ = 0,2 \cdot S_c^{-2/3} \text{Re}^{-1/8}$ (Wells et Chamberlain, 1967) avec S_c nombre de Schmidt et Re nombre de Reynolds,

- régime d'impaction : $V^+ = (6 \cdot 10^{-4}) \tau^{+2}$ (Liu et Agarwal, 1974) avec $\tau^+ = \tau_p \cdot u^*{}^2 / \nu$ le temps de relaxation adimensionné des particules, ν la viscosité cinématique du fluide, u^* la vitesse de frottement du fluide.

Dans les deux cas, V^+ désigne la vitesse de dépôt adimensionnée : $V^+ = V_d / u^*$.

4.2 - Travaux analytiques

Une approche plus précise du phénomène de dépôt, localisé en proche paroi, peut faire l'objet de travaux théoriques. Leur objectif est de mettre au point, de manière analytique, un modèle de dépôt de particules, ceci en établissant de nouvelles équations, en s'appuyant par exemple sur des résultats de DNS, ou en retravaillant des corrélations établies antérieurement. On peut ainsi obtenir des expressions relativement simples de la vitesse de dépôt des particules (Lai et Nazaroff, 2000) :

$$v_{dv} = \frac{u^*}{I} \qquad v_{du} = \frac{v_s}{1 - \exp\left(-\frac{v_s I}{u^*}\right)} \qquad v_{dd} = \frac{v_s}{\exp\left(\frac{v_s I}{u^*}\right) - 1}$$

la vitesse de dépôt V_{dm} ($m=v,u,d$) étant définie comme le rapport entre le flux de particules vers la paroi et la concentration en particules au cœur de l'écoulement. Chaque indice m correspond à un type d'orientation de surface : v pour les surfaces verticales (murs), u pour les surfaces « upward » (sol), d pour les surfaces « downward » (plafond). u^* désigne la vitesse de frottement de l'air en paroi, v_s la vitesse de sédimentation des particules et I une intégrale adimensionnelle nécessaire au calcul des vitesses de dépôt. Ce type de modèle pourra, dans un premier temps, être implémenté dans un code de calcul comme CFX-5 ou Code_Saturne.

5 – Conclusion et perspectives

Ce travail bibliographique a permis de recenser un certain nombre d'approches du problème de transfert d'aérosols dans l'air et de comprendre comment ces approches pouvaient se compléter, pour ainsi identifier la méthode la mieux adaptée au contexte de la thèse.

Une des premières difficultés réside dans l'appréhension des limites de chaque étude. Il est en effet courant, dans des contextes très similaires, de ne pas retrouver la prise en compte des mêmes phénomènes chez tous les auteurs.

Mais le point rencontré le plus délicat est sans aucun doute la modélisation du dépôt des aérosols. Toutes les approches évoquées pour traiter rigoureusement ce phénomène ajoutent de la complexité au problème, et, de plus, reposent parfois sur des hypothèses très fortes, peu évidentes à vérifier.

La prochaine étape de ce travail sera l'implémentation des modèles retenus de transport (« diffusion-inertia model ») et dépôt (Lai et Nazaroff en première formulation) dans un code de calcul, suivie des premiers essais sur des géométries simples.

Les premières simulations seront menées en parallèle de travaux expérimentaux, pour ainsi comparer les résultats obtenus.

6 – Références

- Berner, D. et Régner, R. (2002) Measuring the emission rate of an aerosol source placed in a ventilated room using a tracer gas: influence of particle wall deposition. *Ann. Occup. Hyg.* **46**, 347-354.
- Bouilly, J., Limam, K., Beghein, C. et Allard, F. (2005) Effect of ventilation strategies on particle decay rates indoors : an experimental and modelling study. *Atmospheric Environment* **39**, 4885-4892.
- Charauau, J. (1982) Etude du dépôt des particules dans les conduits. Optimisation des tubes de prélèvement des aérosols radioactifs. *Rapport CEA-R-5158*.
- Chen, F., Tu, S. et Lai, A. C. K. (2006) Modeling particle distribution and deposition in indoor environments with a new drift-flux model. *Atmospheric Environment* **40**, 357-367.
- Guerra, D. (2004) Modélisation du transfert d'un aérocontaminant dans un local ventilé en champ proche d'une source d'émission accidentelle. *Thèse IRSN-INPT, ISRN IRSN-205/47-fr*.
- Holmberg, S. et Li, Y. (1998) Modelling of the indoor environment – Particle dispersion and deposition. *Indoor air* **8**, 113-122.
- Lai, A. C. K. et Nazaroff, W. W. (2000) Modeling indoor particle deposition from turbulent flow onto smooth surfaces. *Journal of Aerosol Science* **31**, 463-476.
- Liu, B. Y. H. et Agarwal J. K. (1974) Experimental observation of aerosol deposition in turbulent flow. *Aerosol Science* **5**, 145-155.
- Lu, W. et Howarth, A. T. (1999) CFD modeling and measurement of aerosol particle distribution in ventilated multizone rooms. *ASHRAE transactions* **105**, 116-127.
- Thatcher, T. L., Lai, A. C. K. et Nazaroff, W. W. (2002) Effects of room furnishing and air speed on particle deposition rates indoors. *Atmospheric Environment* **36**, 1811-1819.
- Wells, A. C. et Chamberlain, A. C. (1967) Transport of small particles to vertical surfaces. *Brit. J. Appl. Phys.* **18**, 1793-1799.
- Zaichik, L., Soloviev, S. L., Skibin, A. P. et Alipchenkov, V. (2004) A diffusion-inertia model for predicting dispersion of low-inertia particles in turbulent flows. *5th Int Conf on Multiphase Flow, Yokohama*, paper No 220.
- Zhao, B., Li, X., et Zhang, Z. (2004) Numerical study of particle deposition in two differently ventilated rooms. *Indoor and Built Environment* **13**, 443-451.
- Zhao, B., Zhang, Y., Li, X., Yang, X. et Huang, D. (2004) Comparison of indoor aerosol particle concentration and deposition in different ventilated rooms by numerical methods. *Building & Environment* **39**, 1-8.

DEPOTS DES AEROSOLS SUR LES PAROIS DE L'ENCEINTE PHEBUS

V.D. Layly, W. Plumecocq*

Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, DPAM, SEMIC
13115 S^t Paul lez-Durance, France
william.plumecocq@irsn.fr

TITLE

Aerosol deposition on the PHEBUS containment vessel wall.

ABSTRACT

In the FPT0 and FPT1 tests of the experimental programme PHEBUS FP, dedicated to the release, transport and deposition of fission products in a 1/5000 scale PWR facility under severe accident conditions, an unexpected amount of aerosol deposition on the containment vessel wall, according to the current modelling had been observed. This phenomenon was more recently observed in the FPT2 test. The present paper presents an interpretation of the diffusive deposition of aerosol particles, and a description of the turbulence near the wall. The so-called Landau and Levich hypothesis is used, stipulating that eddy viscosity and diffusivity are not killed inside the viscous sublayer but are progressively damped when nearing the wall. The model contains no additional parameter, other than the viscous sublayer thickness. The deposition velocity versus particle size follows a $r^{-2/3}$ or $r^{-3/4}$ law, to be compared to the current r^{-1} law, allowing larger particle deposition. This model has been implemented in the severe accident code ASTEC V1. A simulation of the FPT1 and FPT2 tests has been performed and results are presented. This simple model, allowing to explain the deposition on the vessel walls observed in the PHEBUS tests, is general since it is only linked to the internal structure of the boundary layer.

RESUME

Les essais FPT0 et FPT1 du programme expérimental PHEBUS PF, ayant pour objectif d'étudier le relâchement, le transport et le dépôt des produits de fission dans une installation 1/5000 d'un réacteur nucléaire à eau pressurisée en conditions accidentelles, ont révélé un dépôt d'aérosols inattendu et non prédit par les modèles actuels sur les parois verticales du réservoir. Ce phénomène a plus récemment été observé lors de l'essai FPT2. Cet article propose une interprétation de ce phénomène, basée sur des dépôts en paroi par diffusion, et une description de la turbulence au voisinage de la paroi. Cette description repose sur l'hypothèse de Landau et Levich, qui stipule que l'intensité de la turbulence n'est pas détruite à l'intérieur de la sous couche visqueuse mais est progressivement atténuée. Le modèle ne contient aucun paramètre additionnel autre que l'épaisseur de la sous couche visqueuse. La vitesse de dépôt, fonction de la taille des particules suit alors une loi en $r^{-2/3}$ ou $r^{-3/4}$, comparée à la loi courante en r^{-1} , accentuant le dépôt des grosses particules. Ce modèle a été implémenté dans le logiciel de calcul d'un accident avec fusion du cœur, ASTEC V1. Une simulation des essais FPT1 et FPT2 a été réalisée et est présentée. Ce modèle simple, qui fournit des prédictions satisfaisantes des dépôts d'aérosols en paroi donnés par les essais PHEBUS, est général puisqu'il repose uniquement sur les structures internes de la couche limite en paroi.

Le programme expérimental PHEBUS PF, mené à l'IRSN jusqu'en 2004, avait pour objectif d'étudier le relâchement, le transport et le dépôt des produits de fission dans une installation 1/5000 d'un Réacteur nucléaire à Eau Pressurisée (REP) en conditions accidentelles. Les essais PHEBUS FPT0 et FPT1 (Jacquemain et al., 2000) ont révélé un dépôt d'aérosols inattendu, et non prédit par les modèles actuels, sur les parois verticales du réservoir simulant l'enceinte de confinement d'un REP. Ce comportement, non prédit par les modèles actuels, a plus récemment été observé lors de l'essai FPT2 (Ritter et al., 2002). Lors de ces tests, la répartition des dépôts est d'environ 30 % sur les parois du condenseur (par diffusiophorèse), 70 % sur le fond de l'enceinte (par sédimentation), et un à quelques pour cents sur la paroi verticale non condensante. Des calculs "Computational Fluid Dynamics" (CFD) ont dans un premier temps été menés afin d'étudier le champ de vitesses du gaz dans l'enceinte (Layly et al., 1996). Ces calculs ont montré que la vitesse le long de la paroi verticale de l'enceinte est caractéristique de la convection naturelle, ce qui exclut un dépôt inertiel significatif. Par ailleurs, l'hypothèse d'un dépôt par électrophorèse a été explorée (Layly, 1998), et il a été démontré que celui-ci est également négligeable dans les conditions de PHEBUS, l'activité spécifique étant trop faible. Par conséquent, aucun mécanisme autre que le dépôt par diffusion ne peut expliquer les résultats expérimentaux. Cet article propose une interprétation des dépôts en parois lors des essais PHEBUS, basée sur une description de la turbulence au voisinage de la paroi. Cette description repose sur l'hypothèse de Landau et Levich, qui stipule que l'intensité de la turbulence n'est pas détruite à l'intérieur de la sous couche visqueuse mais est progressivement atténuée. Ce modèle a été implémenté dans le logiciel de calcul d'un accident avec fusion du cœur, ASTEC V1, co-développé par IRSN et GRS et une simulation des essais FPT1 et FPT2 a été réalisée et est présentée.

Modélisation des dépôts diffusifs

Le mécanisme de dépôt diffusif, souvent référé dans la littérature sous le nom de "diffusion brownienne", est principalement un processus hydrodynamique: les particules sont véhiculées par un écoulement turbulent jusqu'en proche paroi où leur dépôt par diffusion brownienne se développe. La vitesse de dépôt est obtenue par la résolution de l'équation de conservation du flux massique:

$$J = (D_t(y) + D) \frac{\partial C(y)}{\partial y} \quad (1)$$

où $C(y)$ est la concentration des aérosols à la distance y de la paroi, $D_t(y)$ et D respectivement le coefficient de diffusion turbulente et le coefficient de diffusion moléculaire, ce dernier étant donné par la formulation de Stokes-Einstein:

$$D = \frac{kT}{6\pi\eta r} \quad (2)$$

T est la température du gaz, k la constante de Boltzman, η la viscosité dynamique du gaz et r le rayon de l'aérosol. La résolution de l'équation (1) permet de calculer la vitesse de dépôt V_d qui, par définition, est :

$$V_d = \frac{J}{C_b} \quad (3)$$

avec C_b , la concentration des aérosols loin de la paroi.

En faisant l'hypothèse que le rapport D_t/v_t (où v_t est la viscosité turbulente) reste pratiquement constant (N. A. Fuchs, 1964) entre 1.6 et 2, en utilisant le concept de longueur de mélange de Prandtl, complété par l'hypothèse de proportionnalité de celle-ci à la distance à la paroi et en constatant que la viscosité turbulente et le coefficient de diffusion turbulente sont très grands devant la viscosité moléculaire ν et le coefficient de diffusion moléculaire D , sauf dans une étroite zone de transition près de la paroi, on montre que la vitesse de dépôt s'écrit:

$$V_d = \frac{D}{\delta_d} \quad (4)$$

où δ_d est obtenu par la condition que la diffusion moléculaire devient égale à la diffusion turbulente. Cette grandeur est généralement appelée épaisseur de la couche limite de concentration.

La modélisation la plus simple du dépôt par diffusion, et la plus communément utilisée dans les logiciels de calcul d'un accident de réacteur nucléaire conduisant à la fusion du cœur, repose sur

l'hypothèse de Taylor-Prandtl. Celle-ci stipule que la turbulence est abruptement dissipée à l'intérieur de la sous couche visqueuse. L'équation de la conservation du flux massique s'écrit alors:

$$J = D \frac{\partial C(y)}{\partial y} \quad \text{pour } y < \delta_i \quad (5)$$

où δ_i , est l'épaisseur de la sous couche visqueuse.

En supposant que D_t est très grand devant D à l'extérieur de la sous couche visqueuse, de telle sorte que $C(y) \cong C_b$ (concentration loin de la paroi) pour $y = \delta_i$ et $C(y) = 0$ à la surface de la paroi, la vitesse de dépôt a pour expression:

$$V_d = \frac{D}{\delta_i} \quad (6)$$

Avec l'hypothèse de Taylor-Prandtl, la vitesse de dépôt des aérosols varie en r^{-1} (équation 2). Dans les conditions PHEBUS (pression totale de 0.2 MPa, température de 381 K et une différence de température atmosphère-paroi en moyenne de 2 K), l'épaisseur de la sous couche visqueuse est de l'ordre du millimètre. Pour des particules micrométriques, on obtient alors une vitesse de dépôt de $2.6 \cdot 10^{-8}$ m/s, qui est de quatre ordres de grandeur inférieure à la vitesse de sédimentation, ce qui explique la faible valeur du dépôt prédite par les modèles basés sur cette approche. Une réduction totalement artificielle de l'épaisseur de la sous couche visqueuse à quelques microns ne suffirait pas à obtenir un taux de dépôt du même ordre de grandeur que la valeur expérimentale, tout en conduisant à une bonne description de la granulométrie des particules en suspension et une bonne répartition des dépôts (entre paroi, fond de cuve et condenseur). Il s'avère clairement qu'il est nécessaire de proposer une loi d'évolution de la vitesse de dépôt en fonction de la taille des particules conduisant à une contribution plus importante des particules de diamètre 1 μm ou plus.

Une interprétation des dépôts pariétaux lors des essais PHEBUS, basée sur une description de la turbulence au voisinage de la paroi est proposée. Cette description repose sur l'hypothèse de Landau et Levich (Levich, 1962) concernant l'atténuation de l'intensité de la turbulence dans la sous couche visqueuse. Classiquement, on distingue trois régions dans la couche limite: la sous couche turbulente ($v_t \gg v$), la sous couche tampon ($v_t \approx v$) et la sous couche visqueuse ($v_t \ll v$).

Dans la sous couche visqueuse, les fluctuations de vitesse tangentielle u' et normale à la paroi v' suivent les mêmes lois que le champ de vitesse dans une couche limite laminaire: $u' \sim y$ et, en raison de l'équation de conservation, $v' \sim y^2$.

Deux hypothèses sont formulées concernant la variation de l'échelle de la turbulence l . La première est basée sur la conservation du spectre de fréquence des micro-tourbillons, parce que ceux-ci n'interagissent pas entre eux dans la sous-couche visqueuse. Cette hypothèse conduit à $l \sim v' \sim y^2$. Dans la seconde formulation, la loi usuelle de Von Karman $l \sim y$ est utilisée. Par définition de la longueur de mélange, la viscosité turbulente est proportionnelle au produit de celle-ci par la fluctuation normale de la vitesse. Ainsi les deux modèles proposés sont:

$$v_t \sim y^4 \text{ et } v_t \sim y^3 \quad (7)$$

A l'intérieur de la sous couche tampon, Levich suppose que la décroissance de la turbulence suit une loi intermédiaire de la forme:

$$v_t \sim y^2 \quad (8)$$

A l'intérieur de la sous couche turbulente, la loi de Von Karman est appliquée:

$$v_t = \chi u^* y \quad (9)$$

où χ est la constante de Von Karman: $\chi = 0.4$ et u^* est la vitesse de friction donnée par:

$$u^* = \sqrt{\frac{\tau_w}{\rho}} \quad (10)$$

avec τ_w , la contrainte de cisaillement et ρ , la densité du gaz.

Les constantes de normalisation sont obtenues par raccordement des trois régions:

$$u^+ = y^+ \quad 0 \leq y^+ \leq 5 \quad (11)$$

$$u^+ = 10 \arctan(0.1y^+) + 1.2 \quad 5 \leq y^+ \leq 30 \quad (12)$$

$$u^+ = 2.5 \ln y^+ + 5.5 \quad y^+ \geq 30 \quad (13)$$

où u^+ est la vitesse tangentielle adimensionnelle du gaz:

$$u^+ = \frac{u}{u^*} \quad (14)$$

et y^+ , la distance adimensionnelle:

$$y^+ = \frac{u^* y}{\nu} \quad (15)$$

Notons que l'épaisseur de la sous-couche visqueuse est liée à la vitesse de friction par:

$$\frac{u^* \delta_1}{\nu} = 5 \quad (16)$$

Le seul paramètre de la théorie est donc la vitesse de friction. Celle-ci est obtenue à partir de corrélations de convection naturelle, ou d'autres théories, ou de calculs CFD.

Ainsi dans la sous couche turbulente:

$$\frac{v_t}{\nu} = \chi y^+ \quad (\text{Prandtl-Von Karman}) \quad (17)$$

dans la sous couche tampon (raccordement à $y^+ = 30$):

$$\frac{v_t}{\nu} = 1.3 \cdot 10^{-2} y^{+2} \quad (18)$$

et dans la sous couche visqueuse (raccordement à $y^+ = 5$):

$$\frac{v_t}{\nu} = 0.325 \left(\frac{y}{\delta_1} \right)^n \quad n = 3 \text{ ou } n = 4 \quad (19)$$

Par conséquent, à travers la sous couche visqueuse:

$$\frac{D_t}{D} = 0.65 \text{Sc} \left(\frac{y}{\delta_1} \right)^n \quad (20)$$

avec Sc, le nombre de Schmidt moléculaire.

Connaissant la loi de variation de D_t dans les trois régions, il est alors possible de résoudre l'équation (1) avec les conditions limites $C = C_b$ pour y grand et $C(0) = 0$. Levich montre qu'une bonne approximation de la solution exacte de l'équation (1) peut être obtenue en supposant que $C(y)$ est constant jusqu'à la distance y pour laquelle $D_t \sim D$. On obtient alors:

$$V_d = \frac{D}{\delta_d} \quad \text{et} \quad \frac{\delta_d}{\delta_1} = 1.54 \frac{1}{n} \text{Sc}^{-\frac{1}{n}} \quad (21)$$

Ainsi, la formulation (21) sous entend que la vitesse de dépôt des aérosols suit la loi:

$$V_d \propto r^{-\frac{n-1}{n}} \quad \text{soit} \quad V_d \propto r^{-\frac{2}{3}} \quad \text{ou} \quad V_d \propto r^{-\frac{3}{4}} \quad (22)$$

Par comparaison avec la loi en r^{-1} , donnée par la formulation de Taylor-Prandtl, la formulation (21) accroît le dépôt d'aérosols de plus grandes tailles. Pour des particules micrométriques $\delta_d/\delta_1 = 4.3 \cdot 10^{-2}$ dans le cas $n = 4$ et $\delta_d/\delta_1 = 1.5 \cdot 10^{-2}$ dans le cas $n = 3$. La conséquence importante de ce modèle est que le dépôt diffusif peut être efficace pour des aérosols d'une plus grande taille que celle considérée par le modèle habituel, en particulier les tailles qui, dans la distribution rencontrée lors des essais PHEBUS, transportent la masse.

Application aux essais PHEBUS FPT1 et FPT2

Le modèle développé a été implémenté dans le logiciel ASTEC V1 (Allelein et al., 2005), co-développé par IRSN et GRS. Le module enceinte du logiciel ASTEC (CPA) simule l'évolution temporelle des conditions thermo-hydrauliques ainsi que le dépôt des aérosols, en utilisant une approche 0D. Une simulation des essais FPT1 et FPT2 a été réalisée avec la version V1.2 du logiciel.

L'enceinte de confinement du réacteur PHEBUS (cf. figure 1) a été principalement conçue pour étudier la chimie de l'iode sur le long terme de la phase accidentelle. La phase d'étude du comportement des aérosols, qui se situe entre la phase de dégradation du cœur (0 s – 20000 s) et la phase d'étude de la chimie de l'iode (> 40000 s), ne devait pas, a priori, être destinée à l'étude des dépôts des aérosols. L'objectif était de fermer le bilan de masse en vue de la phase de chimie et de vérifier la cohérence avec les données aux points de prélèvement sur la ligne primaire. L'instrumentation disposée dans l'enceinte comprenait quatre impacteurs, trois filtres, un coupon séquentiel pour la sédimentation ainsi qu'une scrutation γ pour la mesure de l'activité des produits de fission. Les mécanismes de dépôt sont au nombre de trois: la sédimentation sur le fond de la cuve, la condensation de vapeur sur les condenseurs et la diffusion sur les parois verticales ainsi que sur le sommet du réservoir, auxquels il faut ajouter l'effet indirect de l'agglomération des aérosols sur le dépôt.

Les résultats des dépôts pariétaux des aérosols, exprimés en pourcentage de la masse d'aérosols injectée dans l'enceinte, sont présentés sur la figure 2 pour l'essai FPT1 et sur la figure 3 pour l'essai FPT2.

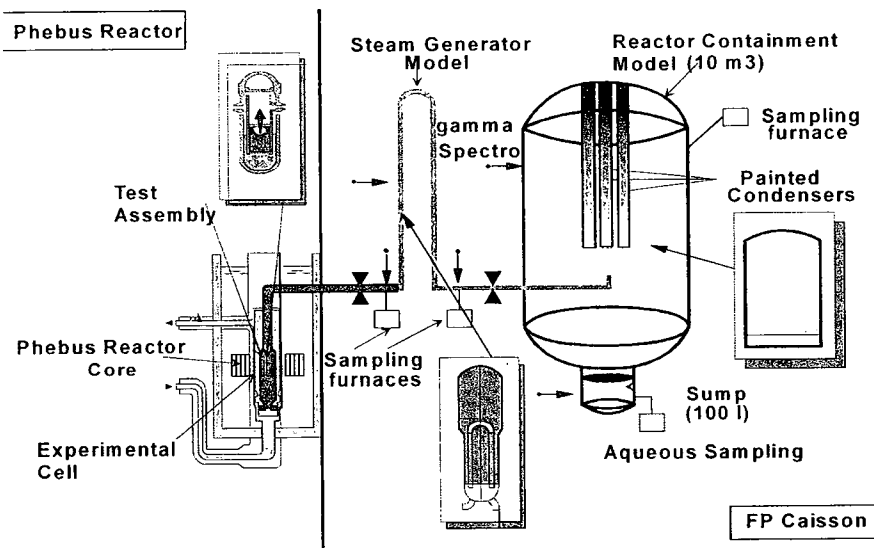


Fig 1: dispositif expérimental PHEBUS

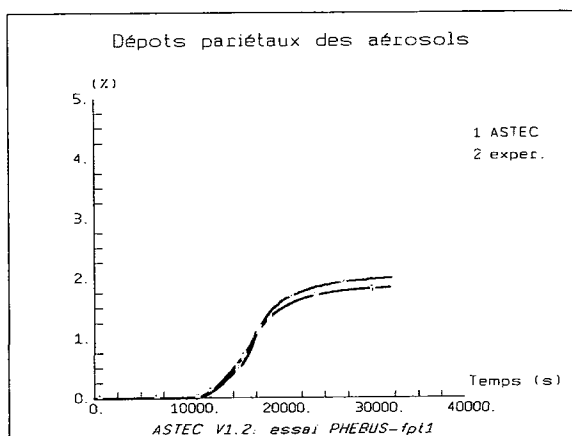


Fig 2: dépôts pariétaux dans FPT1

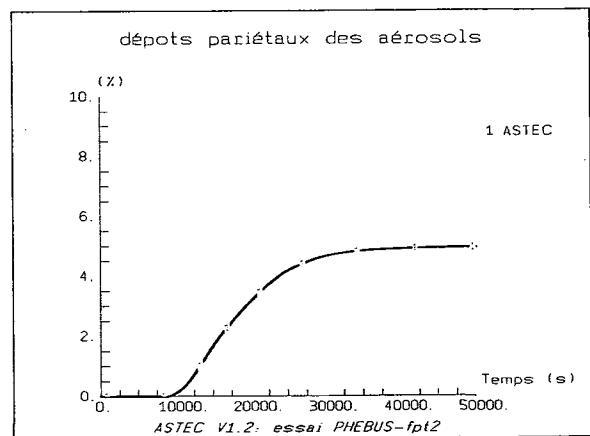


Fig 3: dépôts pariétaux dans FPT2

La comparaison calcul-expérience des dépôts pariétaux pour l'essai FPT1 est très satisfaisante. Les résultats expérimentaux pour l'essai FPT2 n'étant pas encore validés, ils ne figurent pas sur la figure 3. Cependant, les dernières estimations seraient de l'ordre de 10 % (March, 2006). Il faut toutefois noter que l'incertitude sur cette valeur est plus forte pour l'essai FPT2 que pour FPT1 en l'absence de cartographie de l'enceinte après l'essai (évaluation du profil axial du dépôt à l'aide d'un photomultiplicateur, la mesure γ en ligne étant locale). Le pourcentage plus élevé de la masse d'aérosols déposés lors de l'essai FPT2, par rapport à FPT1, s'explique par le fait que la masse d'aérosols relâchés dans l'enceinte est plus faible dans FPT2 (de l'ordre de 40 g contre 133 g pour l'essai FPT1), limitant le processus d'agglomération et favorisant ainsi le dépôt par diffusion. D'autre part, le débit gazeux à l'injection étant quatre fois plus faible dans FPT2 par rapport à FPT1, des dépôts d'aérosols par sédimentation plus conséquents pour FPT2 ont eu lieu dans le circuit, en amont de l'enceinte, affectant la distribution en taille des aérosols relâchés dans l'enceinte (diamètre aérodynamique médian en masse de l'ordre de 1.8 μm pour FPT2 contre 3 μm pour FPT1 et un écart type géométrique de 2.2 pour FPT2 contre 2 pour FPT1), favorisant également le dépôt par diffusion. Un facteur pouvant affecter le dépôt des aérosols en paroi est la rugosité de la surface pariétale, qui est plus importante pour l'essai FPT2 que pour FPT1. Ce facteur n'a pas été pris en compte dans la modélisation, au travers de la vitesse de friction (équation 10).

Ce modèle simple, qui fournit des prédictions satisfaisantes des dépôts d'aérosols en paroi donnés par les essais PHEBUS, est général puisqu'il repose uniquement sur les structures internes de la couche limite en paroi. Par ailleurs, le calcul de l'épaisseur de la sous-couche laminaire (Layly, 1998) n'est pas présentée ici, car il relève de la thermohydraulique de l'enceinte de confinement.

- H. J. Allelein, K. Neu, J.P. Van-Dorselaere (2005), European validation of the integral code ASTEC (EVITA): first experience in validation and plant sequence calculations. *Nuclear Engineering and Design*, 235 (2-4), 285-308
- D. Jacquemain, S. Bourdon, A. de Bremaecker, M. Barrachin (2000), FPT1 final report, note IPSN/DRS/PF IP/00/479
- V. D. Layly, P. Spitz, S. Tirini, A. Maillat, (1996), Analysis of the PHEBUS FPT0 containment thermal hydraulics with the JERICHO and TRIO-VF codes, *Nuclear Engineering and Design* 16, 413-426
- V.D. Layly (1998), aerosol behaviour in a closed vessel: analysis of the PHEBUS FPT0 test aerosol phase in the containment, rapport PHEBUS PF IP/98/391 (travail non publié)
- V. Levich (1962), *Physicochemical Hydrodynamics*, Prentice-Hall, Englewood Cliffs, N.J.
- P. March (2006), communication privée
- G. Ritter, M. Zabiégo, (2002), FPT2 Preliminary Report, note IPSN/DRS/PF IP/02/514

CARACTERISTIQUES DE LA CHARGE ELECTRIQUE D'UN AEROSOL RADIOACTIF NATUREL

R. Abou-Khalil* (1,2), N. Michielsen (1) et A. Nourredine (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.
roger.abou-khalil@irsn.fr

(2) Institut Pluridisciplinaire Hubert-Curien, Département de Recherches Subatomiques, Groupe de Radioprotection et Mesures Environnementales, Université Louis Pasteur Strasbourg I, BP 28, 67037 Strasbourg Cedex 2, France.

TITLE

Characteristics of the electric charge of a natural radioactive aerosol

ABSTRACT

The physical characteristics of an aerosol determine its evolution in a medium and its collection on surfaces and sampling systems. In fact, the particles are mainly subject, depending on their size, to gravity, inertia or diffusion. However, when the particles are electrically charged, the electrostatic force can be prevalent and will strongly influence their behaviour. For example, Cohen *et al* (1998) show the effect of the particles' charge on their deposition in the breathing apparatus. Their results show a deposition from 5 to 6 times greater, for 20 and 125 nm charged particles, than for neutral particles of the same size. In the case of the unattached fraction of the ^{218}Po , the electric charge will modify, on the one hand its mobility, on the other hand the deposition mechanisms. To control these parameters well, it is necessary to improve our knowledge of the electrification process of natural radioactive aerosols, in particular radon progeny.

RESUME

Les caractéristiques physiques d'un aérosol déterminent son évolution dans un milieu et sa collecte sur les surfaces et systèmes d'échantillonnage. Ainsi les particules sont principalement soumises, suivant leur taille, à la pesanteur, à l'inertie ou à la diffusion. Cependant, lorsque les particules sont électriquement chargées, la force électrostatique peut être prédominante et va influencer fortement leur comportement. Par exemple, Cohen *et al.* (1998) montrent l'effet des particules chargées sur leur dépôt dans l'appareil respiratoire. Leurs résultats montrent un dépôt de 5 à 6 fois supérieur, pour des particules de 20 et 125 nm portant une charge, par rapport à des particules neutres de même taille. Dans le cas de la fraction libre du ^{218}Po , la charge électrique va modifier, d'une part sa mobilité, d'autre part les mécanismes de dépôt mis en jeu dans l'appareil respiratoire mais aussi sur les parois modifiant ainsi son évolution dans les espaces habités. A cet égard, Dankelmann *et al.* (2001) étudient les taux de neutralisation du ^{218}Po libre dans l'air et estiment, en se basant sur leurs expériences, que 49% du ^{218}Po libre dans l'air des habitations est chargé alors qu'il est généralement supposé neutre. Néanmoins, ces résultats restent partiels et il est nécessaire, pour améliorer le calcul de dose, de bien maîtriser ces paramètres, c'est-à-dire de faire progresser les connaissances sur le processus de charge électrique d'un aérosol radioactif naturel, notamment les descendants du radon.

1. Introduction

Dans cet article, une étude bibliographique concernant les processus d'évolution des descendants du radon et du thoron dans l'air est présentée. Celle-ci va permettre d'identifier les différents mécanismes de l'évolution de l'état de charge électrique de ces particules depuis leur création jusqu'à leur désintégration. Cette étude bibliographique va permettre aussi d'analyser les outils expérimentaux utilisés et les résultats déjà obtenus. Une première expérience est aussi décrite.

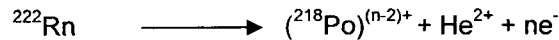
2. Etat de l'art

Dès leur naissance jusqu'à leur désintégration, les descendants du radon participent à un ou plusieurs processus qui interviennent dans l'évolution de la charge électrique de ces particules :

désintégration radioactive, formation des clusters, neutralisation, attachement (détachement) à des aérosols, dépôt sur les surfaces.

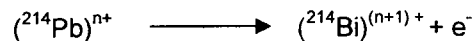
2.1 Processus de formation des descendants du radon et du thoron

Nous nous intéressons, dans ce travail, aux descendants de 2 isotopes du radon, le ^{222}Rn (radon) et le ^{220}Rn (thoron). Considérons par exemple le cas de la désintégration nucléaire du ^{222}Rn :



C'est à partir de cette désintégration (instant $t=0$) que démarre l'historique du ^{218}Po et se succèdent les processus qui interviennent dans l'évolution de sa charge électrique. Le ^{222}Rn se désintègre en émettant un noyau alpha (He^{2+}) de 5,49 MeV et un atome de recul ^{218}Po possédant une énergie cinétique de 101 keV. Lors de l'émission d'un noyau alpha nous obtenons une charge résiduelle négative égale à $-2e$ sur la particule. Cependant, au moment de son éjection, le noyau alpha (beaucoup plus lourd que l'électron bêta) peut arracher des électrons appartenant à l'atome de recul. Une étude réalisée par Ivanov et al. (1969) cite les travaux d'Ehrenhaft (1910) qui a observé expérimentalement pour la première fois cette émission d'électrons secondaires. Dans leur étude, Ivanov et al. ont également réalisé des expériences permettant de déterminer l'auto-chargement d'un aérosol émetteur alpha ayant été activé par les descendants du radon. Leurs résultats ont permis de montrer que le nombre d'électrons secondaires émis à chaque désintégration est très variable, ce nombre étant généralement compris entre 10 et 20, mais il peut atteindre 40 charges élémentaires. Les auteurs montrent ainsi, en tenant compte de la charge du noyau alpha, que le nombre de charges résiduelles est en moyenne de +12 charges élémentaires positives par désintégration. D'autre part, pendant son recul, l'ion ^{218}Po , qui a une énergie cinétique suffisante pour traverser une distance de 72 μm dans l'air (sur une durée de l'ordre de la nanoseconde), perd et gagne à nouveau des électrons en interagissant avec les molécules de l'air. Ces deux mécanismes expliquent généralement un état de charge positif de ces particules dès leur création. Signalons qu'il est possible d'avoir un auto-chargement négatif lorsque le noyau alpha est émis sans arracher d'électrons secondaires et que l'atome de recul ne cède pas d'électrons.

Pour le cas des descendants du radon et du thoron émetteurs bêta, il est généralement admis que le nombre de charges élémentaires émis à chaque désintégration est égal à +1 (Ivanov et Kirichenko 1970, Yeh 1976). Citons le cas de la désintégration nucléaire du ^{214}Pb :



2.2 Interaction des descendants avec l'atmosphère environnante

Après leur formation, les descendants du radon et du thoron réagissent avec les molécules de l'air environnant pour former un agrégat moléculaire, appelé «Cluster» (Bricard 1977). D'après Raes (1985) la durée de formation des clusters varie entre 5×10^{-6} s et 5×10^{-7} s. La neutralisation des descendants du ^{222}Rn et du ^{220}Rn dans l'air est un processus compliqué et joue un rôle important dans l'évolution de la charge électrique en fonction du temps ; elle dépend de plusieurs paramètres : du potentiel d'ionisation des descendants du ^{222}Rn et du ^{220}Rn , des molécules du gaz porteur, de la concentration du radon dans l'air, de l'humidité relative, de la concentration et de la nature des ions négatifs dans l'air. Les trois mécanismes de neutralisation proposés dans la littérature sont (Frey et al., 1981 ; Busigin et al., 1981 ; Chu et Hopke, 1988) :

- recombinaison avec les petits ions négatifs de l'air porteur,
- transfert de charge avec des molécules neutres à bas potentiel d'ionisation (NO_2 , O_2 , ...),
- capture électronique des électrons OH^- formés par radiolyse.

Néanmoins, la contribution relative de chaque processus pour différentes conditions expérimentales n'est pas établie à l'heure actuelle.

Dans cette première partie on a cité les mécanismes qui auront une influence sur la charge électrique des descendants directement après leur création.

2.3 Les premières expériences liées à la charge électrique des descendants du ^{222}Rn et du ^{220}Rn

Nous décrivons ci-dessous les expériences recensées dans la littérature concernant la charge électrique des descendants du ^{222}Rn et du ^{220}Rn . En 1913, des expériences réalisées pour la première

fois par Wellisch, ont consisté à mélanger l'émanation du radium avec de l'air et à introduire ce mélange dans un condensateur cylindrique (tube de ZELENY, figure 1) disposant d'une électrode centrale démontable chargée négativement. Les descendants du radon déposés sur cette cathode sont ensuite mesurés à l'aide d'un scintillateur alpha couplé à un photomultiplicateur. Ses résultats montrent que 88 % des descendants du ^{222}Rn sont positifs et que 12% sont neutres. En reprenant l'expérience pour des tensions de cathode différentes, il a constaté un dépôt sur la surface intérieure du cylindre chargée positivement qu'il attribue aux descendants neutres déposés par diffusion. Le même dispositif (tube de ZELENY) a été utilisé dans les expériences Renoux (1965) mais avec quelques modifications, ajoutant des filtres en amont et en aval pour avoir juste le ^{222}Rn et non pas les descendants à l'entrée du tube ; il trouve 81,5 % d'ions ^{218}Po positifs et 18,5% neutres. Avec la même technique de mesure, Raabe (1968) fait circuler dans un tube de ZELENY une concentration en radon de 555 kBq/m^3 , avec un temps de résidence de 330 s, un rapport $^{218}\text{Po}/^{214}\text{Pb} = 2,4$ et une température d'air de 25°C . En appliquant un champ électrique de 50000 V/m , il ne parvient pas à détecter de descendants chargés, attribuant ceci à la neutralisation de tous les descendants due à la forte concentration en radon. Toujours avec le même dispositif (1 m de longueur, 1,82 cm de diamètre, 0,08 cm de diamètre pour la cathode), mais appliqué aux descendants du ^{220}Rn , Pörstendorfer (1979) trouve des valeurs comprises entre 85 et 88 % d'ions positifs et 12 à 15 % d'atomes neutres de ^{212}Pb au moment de leur formation, pour des concentrations de thoron comprises entre 12580 à $12580 \cdot 10^3 \text{ kBq/m}^3$ et une tension de 500 V appliquée à la cathode centrale. Un autre dispositif a été utilisé par Dua (1978) qui a mis au point un nouveau dispositif appelé «Spectromètre de charge». C'est à la base un condensateur plan ; sur ses deux plaques il a fait coller des lames d'aluminium de 3mm de longueur et, avec une tension appliquée aux bornes, il arrive à collecter des descendants sur ces lames en fonction de leur mobilité électrique ; un comptage alpha sur chaque lame permet de mesurer la quantité des descendants et d'en déduire leur charge électrique. Dua a utilisé son dispositif pour les descendants du ^{220}Rn et ^{222}Rn (voir tableaux 1 et 2), et en variant le champ électrique de 0 à 2700 V/cm pour les descendants du ^{220}Rn , il a pu déterminer la répartition des charges suivantes : 99,17 % d'ions positifs, 0,48 % d'ions négatifs et 0,35 % d'atomes neutres. En comparant ses valeurs à celles de Pörstendorfer (1979), Dua (1981) explique que la différence entre les résultats, pour les descendants du ^{220}Rn , est due aux fortes tensions appliquées (900 V/cm et 2700 V/cm par rapport à 550 V/cm), et par une plus grande probabilité de dépôt des descendants formés proches des surfaces dans le cas d'un tube de ZELENY. De plus, Dua a été le premier à mettre en évidence la présence des descendants du ^{222}Rn de charges négatives (voir tableau 1). Toutes ces expériences ont été réalisées avec des temps de résidence des descendants très courts.

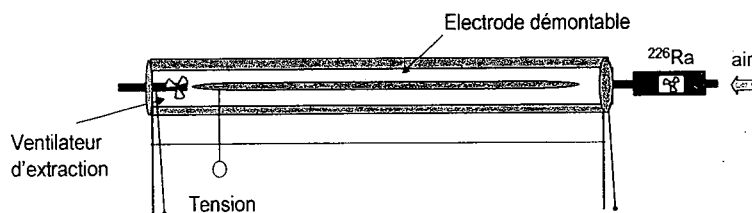


Figure 1: Tube de ZELENY.

La mesure des charges des descendants libres dans l'air intérieur des logements a été réalisée par plusieurs auteurs, citons les travaux de Pörstendorfer (2005) avec un nouveau dispositif de collecte que nous allons présenter ci-après.

Pour la mesure de la fraction positive du ^{218}Po et du ^{214}Pb dans l'air, deux étapes indépendantes à suivre sont à considérer :

- 1) Séparation de la fraction libre positive des descendants chargés et des descendants neutres,
- 2) Séparation de la fraction libre des descendants du radon de la fraction attachée.

La séparation des descendants chargés ^{218}Po et ^{214}Pb de leurs homologues neutres se fait dans un condensateur cylindrique muni d'une électrode centrale chargée (figure 2). La tension appliquée à la borne de la cathode était assez élevée pour pouvoir capter tous les descendants positifs. En aval du condensateur un écran est optimisé de manière à faire passer seulement les aérosols attachés (diamètre de coupure de $3,5 \text{ nm}$), et à collecter les clusters neutres libres. En face de l'écran est placé un détecteur alpha (PIPS : Passivated implanted Planar Silicon), couplé à un spectromètre alpha qui permet de compter séparément le ^{218}Po et le ^{214}Pb neutre. Pour pouvoir déterminer la fraction chargée de ^{218}Po et de ^{214}Pb , la concentration totale des clusters (positifs et neutres) se mesure en parallèle avec un deuxième condensateur cylindrique sans électrode centrale (figure 2).

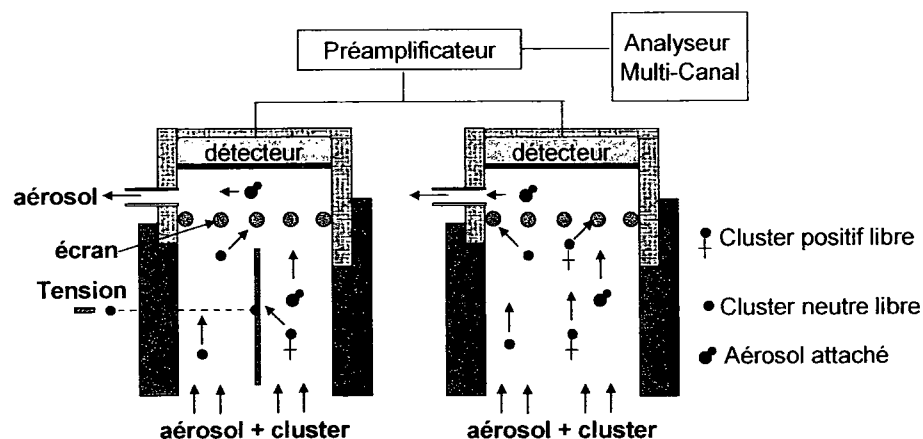


Figure 2 : Dispositif pour la mesure de la fraction libre chargée des descendants du radon et thoron.

Pour une concentration de 50 Bq/m^3 en radon et 10 Bq/m^3 en thoron dans les habitations, 48 % de ^{218}Po et 45 % du ^{214}Pb sont chargés positifs (Pörstendorfer 2005). Ces valeurs sont les mêmes que celles trouvées par le modèle de calcul élaboré par Dankelmann et al. (2001) (voir tableau 1) dans lequel il étudie les taux de neutralisation du ^{218}Po libre dans l'air.

Tableau 1 : Valeurs expérimentales de la charge électrique des descendants du radon.

référence	Isotope	gaz porteur	temps de résidence (s)	humidité relative (%)	Charge
Wellisch (1913)	Descendants du ^{222}Rn	air	-	air sec	88% positive 12% neutre
Renoux (1965)	^{218}Po	air filtré	180	air ambiant	81,5% positive 18,5% neutre
Raabe (1968)	^{218}Po	air ambiant filtré	330	13 33	Neutre
Porstendorfer (1979)	^{218}Po	air	au moment de la formation	≥ 95	88% positive 12% neutre
Dua (1981)	Descendants du ^{222}Rn	air	0,046	16 - 19	90,8% positive 3,9% négative 5,3% neutre
Dankelmann et al. (2001)	^{218}Po	air filtré	120	50	49% chargé 51% neutre
Porstendorfer (2005)	^{218}Po (fraction libre) ^{214}Pb (fraction libre)	air ambiant	-	30 - 95	48% positive 52% neutre 45% positive 55% neutre

Tableau 2 : Valeurs expérimentales de la charge électrique des descendants du thoron.

référence	Isotope	gaz porteur	temps de résidence (s)	humidité relative (%)	Charge
Madelaine (1966)	^{212}Pb	-	0 - 3300	-	Neutre
Fontan (1969)	^{212}Pb	air filtré à 99,995%	30 - 815	-	Chargé Neutre
Porstendorfer (1979)	^{212}Pb	air	au moment de la formation	30 - 90	85-88% positive 12-15% neutre
Dua (1981)	Descendants du ^{220}Rn	air	0,046	16 - 19	99,17% positive 0,48% négative 0,35% neutre

3. Démarche expérimentale

La démarche que nous avons choisie pour la réalisation de la première série d'expériences était d'adopter un dispositif préexistant pour notre étude, utilisé dans la thèse de Jeanne Malet (1997), le tube de diffusion qui servait à mesurer la fraction pénétrante des descendants du radon. Ayant fait des modifications sur ce dispositif, nous avons réalisé quelques expériences qui sont en cours d'exploitation liées directement à la charge totale des descendants en utilisant un électromètre pour mesurer la charge électrique globale d'un aérosol.

3.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental représenté figure 3, fait intervenir différentes techniques de mesure que nous allons détailler.

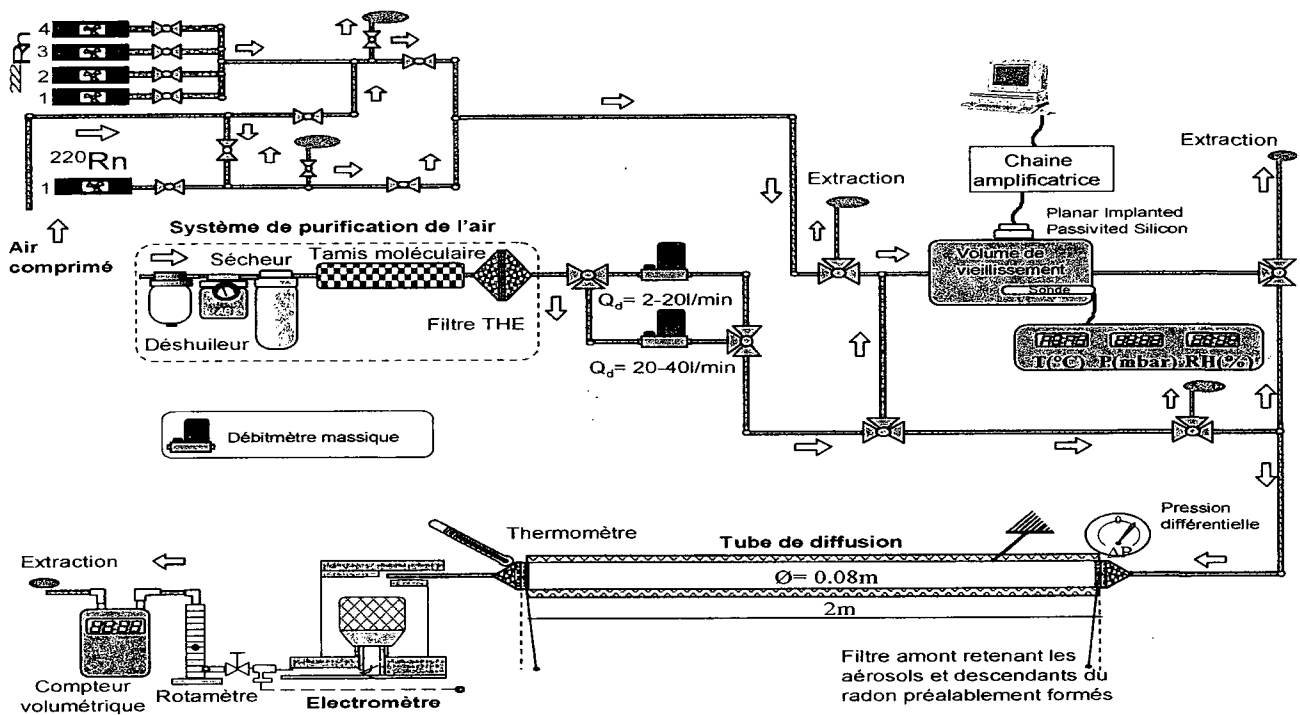


Figure 3 : Dispositif expérimental pour mesurer la fraction pénétrante des descendants du radon.

L'air comprimé est envoyé dans un système de purification doté d'un déshuileur, d'un sécheur (gel de silice), d'un tamis moléculaire et enfin d'un filtre à très haute efficacité qui retient les aérosols présents dans l'air comprimé. L'air est ensuite envoyé dans un circuit de dilution réglé par deux débitmètres massiques couvrant une gamme de débit variant de 2 à 40 l/min. Les différentes sources de ^{226}Ra utilisées (137 kBq, 751 kBq, 4150 kBq, 38914 kBq) et une source de ^{228}Th (78 kBq) permettent de générer des activités volumiques dans une large gamme s'étalant en radon de 0 à 5530 kBq.m⁻³ et de 0 à 58270 kBq.m⁻³ pour le thoron. Le radon/thoron mélangé à de l'air sec est envoyé ensuite dans un volume de vieillissement. Dans ce volume sont placés des capteurs de température, de pression atmosphérique, d'humidité relative et de radon. Le radon/thoron est ensuite envoyé dans le tube de diffusion, à l'entrée duquel est placé un filtre à très haute efficacité permettant de retenir les descendants préablement formés. Les descendants qui se forment dans ce tube sont ensuite captés par un électromètre d'aérosol. En sortie du système, nous disposons d'un rotamètre permettant un contrôle du débit et d'un compteur volumétrique donnant ainsi la valeur du volume prélevé lors de notre expérience.

Nous avons réalisé des expériences préliminaires afin de déterminer les courbes d'étalonnage du détecteur alpha (PIPS) placé dans le volume de vieillissement. Ce détecteur alpha relié à un spectromètre alpha est étalonné en activité volumique de radon par rapport à un instrument de référence «alphaGUARD®». L'électromètre d'aérosol utilisé en sortie du tube de diffusion est le 3068 de la firme TSI. L'aérosol est prélevé dans l'électromètre par une pompe extérieure. Les particules

portant des charges électriques sont collectées par un filtre à très haute efficacité électriquement isolé et relié à un électromètre de très grande sensibilité qui mesure le courant s'écoulant de ce filtre, les particules déposées pouvant être porteuses de charges positives ou négatives. L'appareil donne une indication de la charge totale de l'aérosol, mais dans le cas d'un aérosol radioactif à vie courte, comme le sont les descendants du radon, nous observons une forte perturbation de la mesure dues au rayonnement alpha, qui est en cours d'interprétation.

4. Conclusion

Cette étude nous a permis d'avoir une vision d'ensemble sur les études traitant de la charge électrique des descendants du radon et du thoron. Il est important de noter la variation des valeurs liées à la charge et les conditions expérimentales dans lesquelles ces études ont été réalisées. Ceci rend difficile la comparaison des résultats obtenus par les différents auteurs. Une recherche bibliographique a été faite dans le domaine de la physique et métrologie des aérosols afin de dégager les paramètres prépondérants ainsi que les mécanismes mis en jeu. Néanmoins, différents paramètres comme le temps de résidence restent encore à étudier afin de pouvoir estimer leur influence sur la charge et nous nous intéresserons plus en détails à mettre au point un dispositif dédié à la mesure et à l'évolution dans le temps de la distribution de charge de ces particules.

Références bibliographiques

- Bricard, J. (1977). Physique des aérosols. Nucléation, condensation, ions, électrisation, propriétés optiques. *Rapport CEA-R-4831*, Commissariat à l'Energie Atomique, Gif-sur-Yvette, France.
- Busigin, A., Van Der Vooren, A. W., Babcock, J. C. & Phillips, C. R. (1981). The nature of unattached RaA (^{218}Po) particles. *Health Physics*. 40, 333-343.
- Cohen, B. S., Xiong, J. Q., Fang C. P. & Li W. (1998). Deposition of charged particles on lung airways, *Health Physics*. 74, 554-560.
- Dankelman V., Reineking A. & Porstendörfer J. (2001). Determination of neutralisation rates of ^{218}Po ions in air. *Radiation Protection Dosimetry* 94, 353-357.
- Dua, S. K., Kotrappa, P. & Bhanti, D. P. (1978). Electrostatic Charge on Decay Products of Thoron. *American Industrial Hygiene Association Journal* 39, 339-345.
- Fontan, J., Blanc, D., Huertas, M.L. & Marty, A. M. (1969). Mesure de la mobilité et du coefficient de diffusion des particules radioactives. In: *Planetary electrodynamics (edited by S. C. Coronti and J. Hughes), Vol.1 (New York: Gordon and Breach)*.
- Frey, G., Hoke, P. K. & Stukel, J. J. (1981). Effect of trace gases and water vapour on the diffusion coefficient of Po-218. *Science*, 211, 480-481.
- Ivanov, V. D. & Kirchenko, V. N. (1969). Charging of Alpha-Active Aerosols by Secondary Electron Emission, *Soviet Physics-Doklady*. 13, 9, 902-904.
- Ivanov, V. D. & Kirchenko, V. N. & Petryanov, I. V. (1969). Spontaneous unipolar charging of beta-active "hot" aerosol particles. *Soviet Physics-Doklady*, 14, 9, 859-862.
- Madelaine, G., (1966). Comportement des descendants du radon et du thoron en atmosphère dépoussiérée. *Tellus* 18, 593.
- Malet, J. (1997). Thèse sur le transport et le dépôt des aérosols nanométriques : applications à la fraction libre des descendants à vie court du radon. *Rapport CEA-R-5776*.
- Porstendörfer, J. & Mercer, T. T. (1979). Influence of Electric Charge and Humidity upon the diffusion coefficient of radon decay products. *Health Physics*. 37, 191-199.
- Porstendörfer, J., Pagelkopf, P. & Grundel, M. (2005). Fraction of the positive ^{218}Po and ^{214}Pb clusters in indoor air. *Radiation Protection Dosimetry*. 113, 342-351.
- Raabe, O. G. (1968). Measurements of the Diffusion Coefficient of Radium A. *Nature London*, 217, 1143-1145.
- Raes, F., Janssens, A. & Vanmarcke, H. (1985). A closer look at the behaviour of radioactive decay products in air. *Science Total Environmental*, 45, 205-218.
- Renoux, A. (1965). Etudes des ions radioactifs de l'atmosphère, thèse de doctorat, Université Fac-Science, *Rapport CEA R-2771*, Paris, France.
- Wellisch, E. M. (1913). The distribution of the active deposit of radium in an electric field. *Philosophical Magazine*, 26, 623-635.
- Yeh, H. C., Nexton, G. J., Raabe, O. G. & Boor D. B. (1978). Self-charging of ^{198}Au -labeled monodispersed gold aerosols studied with a miniature electrical mobility spectrometer. *Journal of Aerosol Science*. 7, 245-253.

ETUDE DE LA COLLECTE D'AEROSOLS PAR UN SPRAY D'EAU EN MILIEU HOSTILE

D. Marchand^{*1,2}, E. Porcheron¹, P. Lemaitre¹, W. Plumecocq³, V. Rochas⁴ et G. Grehan²

(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-CNRS/CORIA, Laboratoire d'Electromagnétisme des Systèmes Particulaires, Site universitaire du Madrillet, Avenue de l'université BP 12, 76 801 Saint Etienne du Rouvray Cedex.

(3) IRSN/DPAM, Service d'Etudes et de Modélisation de l'Incendie, du corium et du Confinement, BP 3, 13115 St Paul-Lez-Durance.

(4) Bertin Services, Parc d'activités du Pas du Lac, 10 bis av Ampère, 78180 Montigny-le-Bretonneux.

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

Study of the aerosols collection by a water spray in hostile environment

ABSTRACT

This work lies within the general framework of the studies and research on the safety 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 paper presents in first part a bibliographical review exposing the phenomenology of the severe accident and in second part the basic phenomena controlling the collection of aerosols. Then, in third part, the experimental facility TOSQAN is presented with diagnostics associated used for aerosols washout characterization under severe conditions. Finally, the first results obtained in TOSQAN facility are analysed and discussed in this paper and then compared to the calculations performed with the integral code ASTEC (Accident Source Term Evaluation Code).

RESUME

Cette étude s'inscrit dans le cadre général des études et recherches sur la sûreté des Réacteurs nucléaires à Eau sous Pression (REP). Afin d'étudier les phénomènes physiques mis en jeu dans la collecte des aérosols par les gouttes d'eau d'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'installation TOSQAN. Le présent document expose en première partie, quelques généralités exposant la phénoménologie des accidents graves puis, en deuxième partie, les phénomènes contrôlant la collecte des aérosols par les gouttes d'eau. Ensuite, en troisième partie, l'expérience TOSQAN est présentée ainsi que les diagnostics associés pour la caractérisation du rabatement des aérosols par l'aspersion. Pour terminer, les résultats expérimentaux préliminaires obtenus dans l'installation TOSQAN sont présentés et analysés pour être confrontés à ceux issus des simulations réalisées avec le code intégral ASTEC (Accident Source Term Evaluation Code).

1. INTRODUCTION

Lors d'un hypothétique accident grave de REP, conduisant à une perte de réfrigérant primaire, l'enceinte de confinement peut être mise en pression par de la vapeur d'eau libérée à haute pression par une brèche du circuit primaire. La perte de réfrigérant primaire engendre une dégradation du cœur du réacteur et un relâchement de Produits de Fission (PF), principalement sous 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. L'aspersion permet aussi de piéger les PF 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 rabatement des PF par l'aspersion présente un intérêt primordial pour l'évaluation de la contamination susceptible d'être relâchée dans l'environnement en cas de brèche de l'enceinte de confinement. De nombreuses expériences à grande échelle sur le relâchement et le rabatement des PF sont décrites dans la littérature : DEMONA, VANAM et KAEVER (Fischer and Kanzleiter, 1999), NSPP (Adams et al., 1986) et CSE (Hilliard and Postma, 1981). Toutefois, peu de ces études ont été réalisées avec des conditions thermohydrauliques bien maîtrisées. Afin de caractériser les paramètres pilotant la collecte des aérosols par un spray, pour des conditions thermohydrauliques représentatives de celles d'un accident grave, l'IRSN utilise l'installation 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) et d'étudier différents phénomènes comme le rabatement des aérosols.

Le but de l'étude réalisée est de montrer la faisabilité de la mesure de la granulométrie et de la concentration massique en aérosols dans un environnement hostile, afin de déterminer l'efficacité du rabatement des aérosols par l'aspersion. Après avoir donné un bref aperçu de la phénoménologie des accidents graves et de la modélisation de la collecte des aérosols par une goutte d'eau, le dispositif expérimental et l'instrumentation sont présentés. Les résultats des premiers essais expérimentaux réalisés dans TOSQAN sont comparés aux résultats des simulations effectuées avec le module CPA (Containment Part of ASTEC: Thermohydraulics & Aerosol behaviour in Containment (Plumecocq et al., 2005)) du code ASTEC (Accident Source Term Evaluation Code (Bestele and Klein-Hefling, 2000)). Le code ASTEC V1.2 est développé en commun par l'IRSN et par son homologue allemand (GRS) dans le but de mettre au point un code intégral pour simuler une séquence d'accident grave dans un réacteur à eau légère, depuis l'événement déclenchant, jusqu'à l'éventuel relâchement de produits radioactifs dans l'environnement. ASTEC est le logiciel de référence européen dans le réseau d'excellence SARNET (Severe Accident Research NETWORK).

2. GENERALITES SUR LES ACCIDENTS GRAVES DE REP

Lors d'un hypothétique accident grave de REP, de la vapeur d'eau et des PF sont libérés dans l'enceinte de confinement. Les différents phénomènes physiques successifs, susceptibles de se produire et de conduire au relâchement de PF du cœur vers l'enceinte de confinement, sont :

- le dénoyage du cœur,
- l'échauffement et la dégradation des gaines de combustible,
- l'entraînement des PF, sous forme gazeuse et aérosol, par la vapeur et les gaz chauds issus du cœur, dans le circuit primaire, 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.

Les PF libérés forment ce que l'on appelle le Terme Source. La libération de la vapeur va entraîner une élévation de la pression et de la température dans l'enceinte. Typiquement, les conditions thermohydrauliques de l'atmosphère sont (EDF, 2005) : une surpression, une température de 413 K et une atmosphère saturée en vapeur d'eau, constituée d'un mélange air-vapeur et gaz incondensables (H_2 , CO, CO_2 ,...). De nombreuses variétés d'aérosols sont également produites. Afin de préserver le confinement, dès lors que la pression dans l'enceinte dépasse la pression de 2,4 bar (pour des REP de 900 MW (EDF, 2005)), l'aspersion (EAS - *Système d'Aspersion dans l'Enceinte*) est automatiquement déclenchée. Les rampes du circuit EAS pulvérisent de l'eau additionnée de soude dans l'enceinte, afin de diminuer la pression et la température et d'homogénéiser le mélange gazeux et, enfin, de rabattre les aérosols radioactifs éventuellement disséminés.

3. MODELISATION DE LA COLLECTE DES AEROSOLS PAR LES GOUTTES DU SPRAY ET EFFICACITE DE RABATTEMENT

3.1. Collecte des aérosols

Les aérosols émis sont composés de particules de tailles et d'espèces chimiques diverses. Les mécanismes concernés dans le rabatement des particules dans l'enceinte de confinement incluent les phénomènes suivants : l'agglomération, la sédimentation, l'impaction sur les parois, l'impaction

inertielle, l'interception, la diffusion brownienne, la nucléation de gouttelette, la thermophorèse, la diffusiophorèse et l'écoulement de Stefan. Les trois premiers mécanismes interviennent avec ou sans aspersion et quel que soit le type d'atmosphère. Les trois mécanismes suivants agissent quand l'aspersion est utilisée même s'il n'y a aucun transfert de masse ou de chaleur entre les gouttes et le gaz. Les quatre derniers sont des processus qui deviennent importants quand la condensation de la vapeur sur les gouttes ou la vaporisation de gouttes se produit. Les mécanismes prépondérants dans le rabattement des particules collectées par une goutte d'eau sont :

les effets mécaniques :

(Rimberg and Peng, 1977; Strauss, 1966)

- la diffusion brownienne (db),
- l'interception (int),
- l'impaction inertielle (imp).

les effets phorétiques :

(Waldmann and Schmitt, 1966)

- diffusiophorèse (diph),
- thermophorèse (thermph).

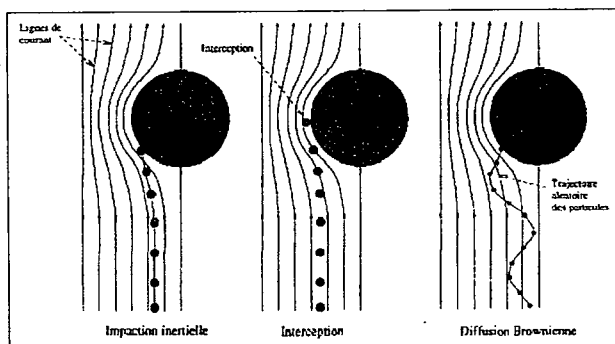


Fig. 1 Interactions mécaniques

3.2. Notions caractéristiques

Initialement, la notion d'efficacité de collecte 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 collecte sont publiés dans la littérature. Une synthèse de ces travaux a été faite par Rimberg et Peng (Rimberg and Peng, 1977).

3.2.1. Taux de rabattement

Les modèles de capture des aérosols sont basés sur des corrélations semi-empiriques afin de calculer l'efficacité de collecte par les différents mécanismes. Des modèles mathématiques ont été développés pour chaque mécanisme individuel, et les solutions sont généralement obtenues par des méthodes numériques. Le taux de rabattement des particules par le spray est modélisé par un modèle d'efficacité de collecte par une goutte en considérant le spray comme un ensemble de gouttes indépendantes. Pour un spray, la constante du taux de rabattement (λ) peut être exprimée en fonction des caractéristiques du spray (débit Q_{asp} , diamètre de la goutte d_w) et des conditions thermohydrauliques dans l'enceinte (volume V , hauteur h) (Postma, 1975) :

$$\lambda = \frac{3Q_{asp} h}{2V} \cdot \frac{E_{totale}}{d_w} \tag{1}$$

Le paramètre le plus difficile à déterminer dans l'Eq. (1) est l'efficacité globale (E_{totale}) de collecte pour une goutte. Elle est définie comme le rapport de la masse d'aérosols collectée par une goutte à la masse d'aérosols présente dans le volume balayé par cette goutte.

3.2.2. Calculs d'efficacité de collecte

L'efficacité globale de collecte par une goutte peut être considérée comme la somme des contributions des phénomènes de rabattement des particules liés aux mécanismes élémentaires. Ces mécanismes sont rappelés dans (Marchand, 2006). L'efficacité globale de collecte par une goutte et pour une classe de particule donnée, peut être exprimée par la relation suivante (2) :

$$E_{totale}^{Add} = \epsilon_{imp} + \epsilon_{int} + \epsilon_{db} + \epsilon_{diph} + \epsilon_{thermph} \tag{2}$$

L'équation (2) suppose que les mécanismes élémentaires de collecte soient entièrement indépendants, ce qui n'est pas complètement exact. Ainsi, le couplage des effets des divers mécanismes de capture des aérosols doit être pris en compte. En première approximation, pour les aérosols dont la taille correspond à la plus faible efficacité (typiquement entre 0,1 μm et 0,5 μm , Fig. 2), les mécanismes devraient être décrits d'une manière couplée (Eq. (3)), mais ce problème serait alors excessivement complexe à résoudre.

$$E_{\text{totale}}^{\text{Comp}} = 1 - (1 - \varepsilon_{\text{imp}})(1 - \varepsilon_{\text{int}})(1 - \varepsilon_{\text{db}})(1 - \varepsilon_{\text{alph}})(1 - \varepsilon_{\text{thermoph}}) \quad (3)$$

L'efficacité, Fig. 2, présente un minimum, compris entre 0,01 et quelques microns, important à étudier dans le cadre de notre problématique. En effet, il constitue une partie du terme source pouvant être libérée en cas de brèche du bâtiment réacteur. Une grande partie de l'étude sera portée sur cette gamme de diamètre de particule micronique.

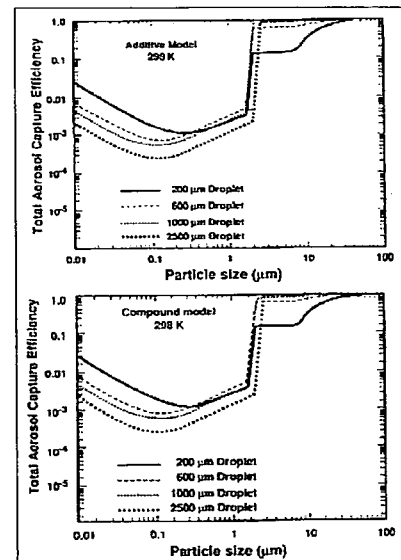


Fig. 2 Efficacité totale de collecte pour différentes tailles de gouttes (Powers and Burson, 1993)

4. INSTALLATION TOSQAN ET MOYENS DE DIAGNOSTICS MIS EN ŒUVRE POUR LA CARACTERISATION DU RABATTEMENT DES AEROSOLS PAR L'ASPERSSION

4.1. L'enceinte TOSQAN

L'installation TOSQAN (Fig. 3) se compose d'une enceinte cylindrique fermée (volume 7 m³, hauteur 4,8 m, diamètre interne 1,5 m) dans laquelle une canne centrale et verticale permet l'injection de vapeur d'eau surchauffée. L'enceinte est équipée de doubles parois dans lesquelles circule un fluide caloporteur dont la température est régulée par un groupe réchauffeur-refroidisseur. L'ensemble possède 14 accès optiques, chacun étant constitué de deux hublots de 35 mm d'épaisseur. Le système d'asperion, positionné au centre du dôme de l'enceinte, est constitué d'une buse générant un spray à cône plein, mobile suivant l'axe vertical. L'injection d'eau d'asperion est régulée en débit, pression et température. L'eau d'asperion est recueillie dans le puisard de l'enceinte et évacuée au fur et à mesure, sans accumulation pour limiter son évaporation.

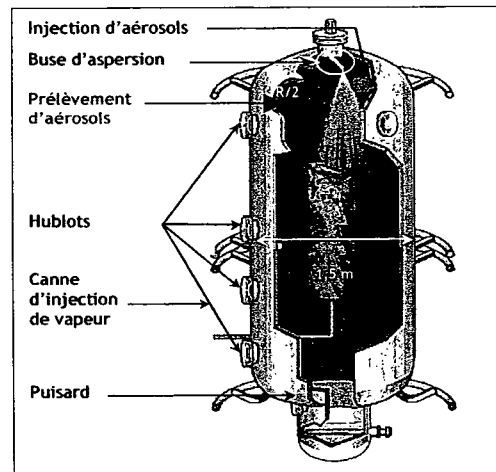


Fig. 3 L'enceinte TOSQAN

4.2. L'instrumentation

4.2.1. La production d'aérosols

La production d'aérosols est basée sur l'utilisation d'un disperseur de poudre à brosse rotative (RBG 1000 de PALAS). La quantité de poudre nécessaire est mise dans un réservoir cylindrique. Un piston exerce une poussée verticale sur cette poudre qui est acheminée à une vitesse contrôlée vers la brosse rotative. Cette technique limite l'excès d'agglomération des particules. Les aérosols sont transportés via une circulation d'air injecté à la sortie de la brosse rotative et dirigés dans l'enceinte de TOSQAN (partie supérieure - Fig. 3). Les aérosols choisis pour cette étude sont des particules de carbure de silicium (SiC) ayant un diamètre moyen numérique de 1,02 μm (écart-type géométrique de 1,5) et une masse volumique de 3,2 g.cm⁻³.

4.2.2. Dispositif de mesures d'aérosols

La concentration massique et la granulométrie des aérosols sont mesurées avec un granulomètre optique WELAS (PALAS, (Möller and Keßler, 2004)). Ce granulomètre WELAS utilise le

principe de la diffusion de la lumière blanche pour mesurer la concentration et le diamètre des particules sphériques (gamme de 0,18 μm jusqu'à 40 μm) en suspension dans l'air. Une calibration doit être réalisée pour chaque type de particules selon leur indice de réfraction et leur diamètre.

Les prélèvements d'aérosols sont réalisés dans l'enceinte TOSQAN à mi-rayon avec un débit de prélèvement de gaz de 5 L.min⁻¹ requis pour le fonctionnement du granulomètre WELAS. La ligne de prélèvement a un diamètre de 8 mm et est positionnée à Z = -890 mm du dôme de l'enceinte. Ce prélèvement est effectué au bord du spray (Fig. 4). Cette ligne est chauffée pour limiter les effets thermophorétiques et pour éviter la condensation de vapeur à l'intérieur.

Le dispositif de prélèvement a été optimisé de manière à assurer la bonne représentativité du prélèvement des aérosols dans les conditions d'essais. Une étude précédente en conditions atmosphériques (Marchand et al., 2005) avait été réalisée afin de montrer la faisabilité des mesures de la concentration en aérosols et de la taille d'aérosols en présence de spray. La conclusion principale était que les gouttes d'eau ne perturbaient pas les prélèvements et les mesures des aérosols.

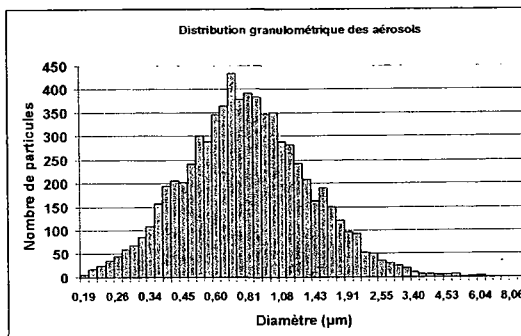


Fig. 4 Distribution granulométrique des aérosols dans TOSQAN avant aspersion

4.2.3. Caractérisation du spray

Le spray est produit par une buse (D1-35 de Spraying System) qui permet d'obtenir des tailles de gouttes centrées sur 160 μm . La caractérisation des gouttes du spray est réalisée par Anémométrie Phase Doppler (PDA) hors de l'enceinte TOSQAN à la pression atmosphérique et dans des conditions isothermes. Les mesures ont été faites à la distance axiale de 100 mm et 450 mm de la buse pour un débit de 10 g.s⁻¹. Les résultats sont présentés dans le Tab. 1.

Tab. 1 Caractéristiques du spray à l'injection

Distance axiale (mm)	Diamètre arithmétique moyen (D_{10})	Diamètre de Sauter moyen (D_{32})	Vitesse verticale maximale des gouttes
100	160 μm	199 μm	21 m/s
450	149,3 μm	163 μm	4,59 m/s

Le spray a également été caractérisé en utilisant une caméra rapide (XS-4 d'IDT) pour obtenir l'angle de spray et le comparer à la valeur fournie par le constructeur. Pour notre configuration confinée, l'angle de spray est un paramètre important à cause des écoulements de recirculation et des écoulements ascendants à proximité des parois de l'enceinte TOSQAN.

5. RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSIONS

Dans cette partie, nous présenterons les premiers résultats de qualification acquis avec ou sans aspersion et nous montrerons l'influence du spray sur le rabatement d'aérosols.

5.1. Essai avec aspersion

La Fig. 5 présente l'évolution des paramètres pendant l'essai réalisé avec aspersion : la pression relative et la température moyenne du gaz dans TOSQAN, le débit d'eau ainsi que la masse totale d'aérosols en suspension dans l'enceinte, extrapolée à partir de la mesure locale. L'origine du temps ($t = 0$) correspond au début de l'injection du mélange air/aérosols. Celle-ci s'arrête quand la pression de l'enceinte atteint 0,3 bar. L'injection de vapeur commence après un temps d'homogénéisation des aérosols. L'efficacité de rabatement des particules par l'aspersion est alors évaluée.

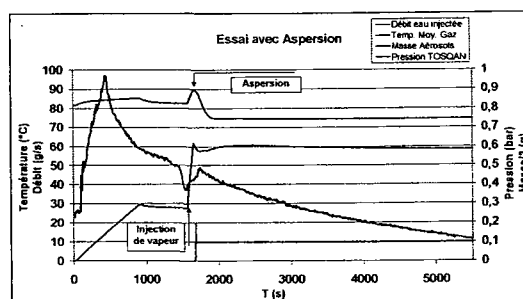


Fig. 5 Evolution temporelle des paramètres de TOSQAN

5.2. Comparaison entre les essais avec et sans aspersion

La Fig. 6 présente la comparaison des évolutions temporelles de la masse en suspension extrapolée à l'ensemble de l'enceinte pendant les essais avec et sans aspersion. L'efficacité de spray sur le rabattement des aérosols est alors évaluée. Sans spray, le taux de rabattement est d'environ $7 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$, et avec le spray le taux de rabattement s'établit autour de $2 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$. Ces valeurs dépendent beaucoup des conditions thermohydrauliques dans l'enceinte, mais elles sont proches de celles de la littérature (Ducret et al., 1998; Grist, 1982; Parsly, 1971) qui retient souvent la valeur de 10^{-4} s^{-1} pour le taux de rabattement des aérosols dont le diamètre est inférieur à $2 \mu\text{m}$.

La Fig. 7 présente la comparaison des évolutions temporelles du diamètre moyen des aérosols pour les essais avec et sans aspersion. Comme précisé précédemment, l'efficacité du spray est également mise en évidence sur la diminution du diamètre moyen des aérosols en suspension. Cela permet de réduire d'au moins 35 % le diamètre moyen des aérosols par rapport à celui du cas sans spray.

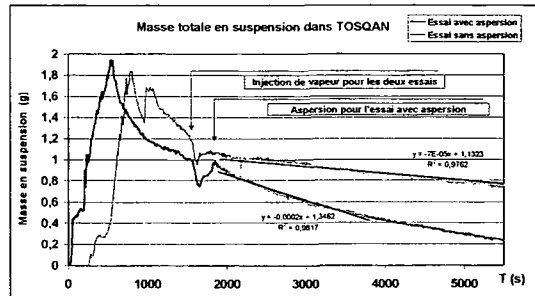


Fig. 6 Comparaison des évolutions temporelles de la masse en suspension dans TOSQAN

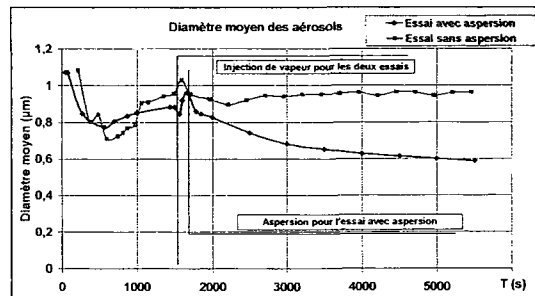


Fig. 7 Comparaison des évolutions temporelles du diamètre moyen des aérosols dans TOSQAN

5.3. Comparaison entre les simulations et les résultats expérimentaux

Le module CPA du code ASTEC a permis une confrontation des premiers résultats expérimentaux obtenus avec ceux issus de la simulation numérique. Globalement, cette comparaison a montré un accord entre le code et les résultats expérimentaux pour les essais sans aspersion. En revanche, pour les essais avec aspersion, une divergence est apparue. Des hypothèses ont été émises liées, soit à une modélisation initiale du puisard qui n'est pas assez raffinée, soit à la différence existant entre la mesure expérimentale faite actuellement localement et la valeur issue de CPA (0D) qui est une grandeur globale. A l'aide de ce module CPA, une grille d'essais à effets séparés a été déterminée et pré-calculée. Les essais prévus dans la grille d'essais sont en cours de réalisation.

6. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

L'étude réalisée 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 collecte de produits de fission par un spray. Elle a permis de répertorier les modèles existants et d'identifier les paramètres à étudier. La gamme de taille des aérosols intéressante est autour $0,5 \mu\text{m}$, lesquels sont les plus difficiles à rabattre. Ensuite, l'étude a montré la faisabilité de mesures, en environnement hostile, de la granulométrie et de la concentration en particules au cours du temps en utilisant le granulomètre optique WELAS de PALAS. Ces mesures ont été réalisées dans l'enceinte TOSQAN en présence d'aspersion. Les perspectives de l'étude sont de poursuivre des essais plus longs afin de déterminer l'efficacité de l'aspersion sur le rabattement des plus petites particules restées en suspension. Ce dernier point est important à étudier pour la protection de l'environnement, en cas de fuite hors de l'enceinte de confinement.

Références

- Adams, R. E., Longest, A. W. and Tobias, M. L. Influence of steam-air environments on the behavior of aerosols in containment. 1078-1081.
- Bestele, J. and Klein-Heßling, W. (2000) ASTEC V0, CPA Module - Containment Thermalhydraulics and Aerosol and Fission Product Behaviour - User Guidelines, rev 0. GRS Report ASTEC-VO/DOC/00-14,2000.

- Ducret, D., Roblot, J., Vendel, J., Plumecoq, W. and Layly, V. (1998) Learnings of the spray system efficiency experiments and their applications to PWR containment safety analysis. *GRS/IPSN Fachgesprach 1998*, Berlin.
- EDF. (2005) Dossier de système élémentaire - 4ème stade - Palier 900 MW - Aspersion - recirculation de l'aspersion. EDF.
- Fischer, K. and Kanzleiter, T. (1999) Experiments and computational models for aerosol behaviour in the containment. *Nuclear Engineering and Design*, **191**(1), 53.
- Grist, D. R. (1982) Spray removal of fission products in PWR containments. *SRD-R-267*, United Kingdom Atomic Energy Authority.
- Hilliard, R. K. and Postma, A. K. (1981) Large-scale fission product containment tests. *Nuclear Technology*, **53**(2), 163-175.
- 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.
- Marchand, D. (2006) Etude de la captation des aérosols par des gouttes d'eau de l'aspersion : Bibliographie et Grille d'essais. *IRSN/DSU/SERAC/LECEV/06-12*, IRSN, Saclay.
- Marchand, D., Porcheron, E., Lemaitre, P., Nuboer, A., Vendel, J., Bouilloux, L. and Grehan, G. (2005) Mise en œuvre de diagnostics couplés pour l'étude de la captation d'aérosols par un spray d'eau. *21ème Congrès Français sur les Aérosols*, PARIS.
- Möller, L. and Keßler, P. (2004) Partikelgrößen- und partikelanzahlbestimmung in der außenluft mit einem neuen optischen aerosolspektrometer. *Gefahrstoffe Reinhaltung der Luft*, **64**(10), 439-447.
- Parsly, L. F. (1971) Removal of radioactive particles by sprays. *ORNL-4671*, OAK Ridge National Laboratory.
- Plumecoq, W., Layly, V. D. and Bentaib, A. (2005) Modelling of the containment mitigation mesures in the ASTEC code, Focusing on spray hydrogen recombiners. *The 11th International Topical Meeting on Nuclear Thermal Hydraulics (NURETH-11)*, Avignon, France.
- Porcheron, E., Brun, P., Cornet, P., Malet, J. and Vendel, J. (2003) Optical diagnostics applied for single and multi-phase flow characterization in the TOSQAN facility dedicated for thermal hydraulic containment studies *The 10th International Topical Meeting on Nuclear Thermal Hydraulics (NURETH-10)*, Seoul, Korea.
- Postma, A. K. (1975) Models for Predicting the Removal of Airbone Contaminants by Reactor Containment Spray. *BNWL-B-417*.
- Powers, D. A. and Burson, S. B. (1993) A Simplified Model Of Aerosol Removal by Containment Sprays. *NUREG/CR-5966, SAND92-2689*.
- Rimberg, D. and Peng, Y. (1977). Aerosol collection by falling droplets. *Air Pollution Control and Design Handbook*, New York, p 747-777.
- Strauss, W. (1966) *Industrial Gas Cleaning ; the principles and practice of the control of gaseous and particulate emissions*, Pergamon Press, Oxford.
- Waldmann, L. and Schmitt, K. H. (1966) *Thermophoresis and diffusiophoresis of aerosols*, C.N. Davies.
- Zavaleta, P. and Landesman, C. (1997) Expérience TOSQAN - dimensionnement et description de l'installation expérimentale. *Rapport d'étude IPSN/SERAC/LPMC/97-02*, IPSN, Saclay.

INFLUENCE DE LA TAILLE DES PARTICULES ET DE LA GEOMETRIE DE PORES D'UN FILTRE TISSE SUR L'EFFICACITE DE CAPTURE - MODELISATION NUMERIQUE

M. Bénesse, L. Le Coq

UMR 6144 GEPEA, Ecole des Mines de Nantes, 4 rue Alfred Kastler, BP 20722,
Nantes cedex 3
laurence.le-coq@emn.fr

TITLE

Influence of particle size and woven filter pore geometry on collection efficiency - Numerical modelling.

ABSTRACT

Numerical modelling of particle motion and capture on a woven filter is used to evaluate the collection efficiency according to pore geometry.

A simplified geometry of a two-mat fabric is designed and meshed in order to simulate a 3D air flow in this geometry for a mean velocity of 2.5 m/s. Obtained velocity fields show formation of large recirculation zones downstream to the filter and indicate an important three-dimensional behaviour of flow.

Then balance of forces acting on particles is coupled with air velocity and pressure fields to calculate particle trajectories through the fabrics for different particle sizes (100, 50, 10 and 5 μm). Considering capture when particles are in contact with yarn collectors, the fractional collection efficiency can be estimated.

RESUME

La modélisation numérique du transport des particules par une approche Lagrangienne est réalisée pour un écoulement d'air traversant une géométrie modèle d'un tissu filtrant constituée de différentes géométries de pores. Les résultats obtenus permettent d'estimer l'efficacité fractionnelle de capture des particules pour les géométries de pores rencontrées dans un tissu natté 2.

La géométrie modèle est constituée de fils pleins de section octogonale et entrelacés. Cette géométrie est disposée dans un volume d'étude maillé dans lequel un écoulement d'air de vitesse débitante 2,5 m/s est simulé en 3D. Les champs de vitesse obtenus indiquent l'existence de forts gradients de vitesse au voisinage et dans les pores ainsi que la présence de zones de recirculation en aval de ces pores. De plus, l'écoulement peut être considéré bidimensionnel en amont du filtre modèle, alors qu'en aval du filtre les lignes de courant sont tridimensionnelles.

Un bilan des forces agissant sur les particules en suspension est couplé aux champs de vitesse et pression obtenus afin de calculer la trajectoire des particules au sein du filtre tissé pour différentes tailles de particules (100, 50, 10 et 5 μm). En considérant que les particules sont capturées dès qu'elles entrent en contact avec un collecteur (fil ou autre particule), l'efficacité fractionnelle de filtration peut être estimée.

I . INTRODUCTION

La simulation de l'écoulement et au sein de filtres tissés multi- ou mono-filaments a fait l'objet de peu d'études dans la littérature. Parmi celles-ci, les travaux de Lu *et al.* (1997), Tung *et al.* (2002) et Tung (2006), ont montré l'influence du régime d'écoulement, du mode de tissage et du calandrage sur la structure de l'écoulement à l'intérieur des pores du filtre, et plus particulièrement sur les champs de vitesse et de pression du fluide. Ainsi, les travaux de Lu *et al.* (1997), Kanaoka (2002), Lehmann (2002) et Tung (2006), mettent en évidence une modification du bilan des forces s'exerçant sur les particules portées par l'écoulement et identifient son influence sur les trajectoires des particules. Par exemple, lorsque l'écoulement présente, au voisinage en amont des pores, des zones d'accélération et de changement brusques de direction, la capture des particules lourdes par impaction inertielle peut être favorisée (Bénesse *et al.*, 2004). Au contraire, la présence de zones de recirculation de l'écoulement en aval au voisinage des pores peut engendrer des contraintes de cisaillement néfastes à la capture des particules. Les résultats obtenus permettent une meilleure compréhension de l'évolution spatiale du dépôt des particules sur les collecteurs.

Les résultats de la présente étude font suite à une première modélisation numérique des écoulements et du transport des particules au sein d'une géométrie tissée 2D (Bénesse *et al.*, 2004). Pour cela une géométrie modèle constituée de fils pleins de section octogonale et entrelacés est disposée dans un volume d'étude dans lequel un écoulement d'air de vitesse débitante 2,5 m/s est simulé en 3D grâce au logiciel Fluent. L'écoulement en amont du filtre estensemencé avec des particules de différentes tailles (100, 50, 10 et 5 μm). Un bilan des forces agissant sur les particules placées dans l'écoulement et couplé aux champs de vitesse et pression obtenus, afin de déterminer la trajectoire des particules et de localiser leur zones préférentielles de capture.

II . SIMULATION DE L'ECOULEMENT DANS UNE GEOMETRIE TISSEE

La simulation de l'écoulement au sein des pores formés par tissage a été réalisée dans la géométrie 3D de la figure 1, pour une vitesse débitante de 2,5 m s⁻¹.

II.1. Conditions d'étude et choix du modèle

Le tissu modèle représente un tissu natté 2 constitué de fils pleins de section octogonale et de diamètre 400 μm . La validation du choix du maillage et des conditions initiales du modèle d'écoulement a été réalisée par comparaison des résultats obtenus expérimentalement (Le Coq *et al.*, 2001) et par simulation numérique (Bénesse *et al.*, 2003). Par la suite de l'étude, nous nous intéresserons plus particulièrement aux pores 1 (80x155 μm) et 3 (182x155 μm).

Ainsi, l'ensemble du volume d'étude est constitué de 1 150 000 cellules permettant d'accéder à un maillage fin au voisinage des fils.

La résolution des équations de Navier Stokes pour un écoulement laminaire instationnaire est réalisée à l'aide du logiciel commercial Fluent 6.0 pour une vitesse débitante de 2,5 m s⁻¹, soit $Re_{fil}=63$.

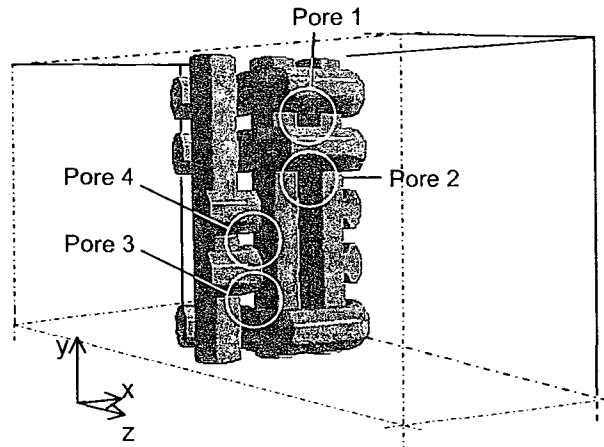


Figure 1. Géométrie modèle pour l'étude numérique

II.2. Résultats et discussions

Une vue 2D des lignes de courant passant dans le plan de coupe $0y0z$ au centre des pores 1 et 3 est présentée figure 2.

Les lignes de courant en amont du tissu sont peu perturbées par les fils et l'écoulement est bidimensionnel. Par contre, en aval des pores, les lignes de courant sont déviées par les jets issus des pores voisins. De plus, des recirculations importantes sont observées en aval des fils apportant un caractère tridimensionnel à l'écoulement.

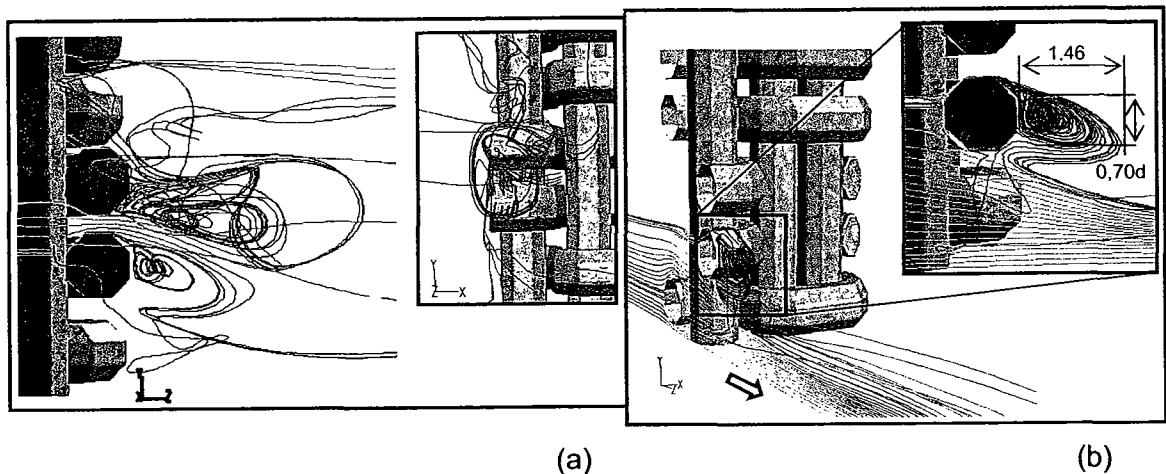


Figure 2. lignes de courants à travers des pores 1 (a) et 3 (b) à 2,5 m/s.

III . SIMULATION DE LA CAPTURE DES PARTICULES

III.1. Méthodologie

Dans cette étude, le transport des particules est modélisé suivant une approche lagrangienne. Ainsi, on considère que le bilan des forces s'exerçant sur une particule s'écrit d'après l'équation de Basset-Boussinesq-Oseen (Johnson, 1998) :

Force d'inertie des particules	Force de gravité et d'Archimède	Force de traînée	Force de masse ajoutée	Force de gradient de pression
-----------------------------------	------------------------------------	---------------------	---------------------------	----------------------------------

$$\frac{\pi d_p^3}{6} \rho_p \frac{d\bar{U}_p}{dt} = \frac{\pi d_p^3}{6} (\rho_p - \rho_f) \bar{g} + Cd \frac{\rho_f}{2} (\bar{U}_f - \bar{U}_p)^2 \frac{\pi d_p^2}{4} + \frac{\pi d_p^3}{12} \rho_f \left(\frac{d\bar{U}_f}{dt} - \frac{d\bar{U}_p}{dt} \right) + \frac{\pi d_p^3}{6} \text{grad} P$$

Dans cette équation, d_p est le diamètre de la particule, ρ une masse volumique, U une vitesse, t le temps, g l'accélération de la pesanteur, Cd le coefficient aérodynamique de traînée, \bar{U}_p désignant la particule et \bar{U}_f désignant le fluide.

La résolution de cette équation différentielle a été réalisée suivant les 3 directions de l'espace par la méthode de Runge Kutta pour différentes tailles de particules lâchées dans l'écoulement simulé en II. Ces particules sontensemencées aléatoirement sur toute la section de la conduite en amont du filtre. La condition initiale considérée pour la résolution du systèmes d'équation différentielle est $\bar{U}_{p,0} = \bar{U}_f$, soit la vitesse d'injection des particules dans l'écoulement est égale à la vitesse du fluide porteur au point d'injection.

Une condition d'arrêt est imposée aux particules qui entrent en contact avec un collecteur (fil ou particule déjà captée). On considère que les particules ainsi capturées ne rebondissent pas et ne sont pas remisent en suspension une fois capturées. Le nombre de particules lâchées pour chaque diamètre étudié est choisi de sorte que l'hypothèse « les particules capturées ne modifient pas significativement l'écoulement au voisinage des fils collecteurs » puisse être considérée.

III.2. Résultats et discussions

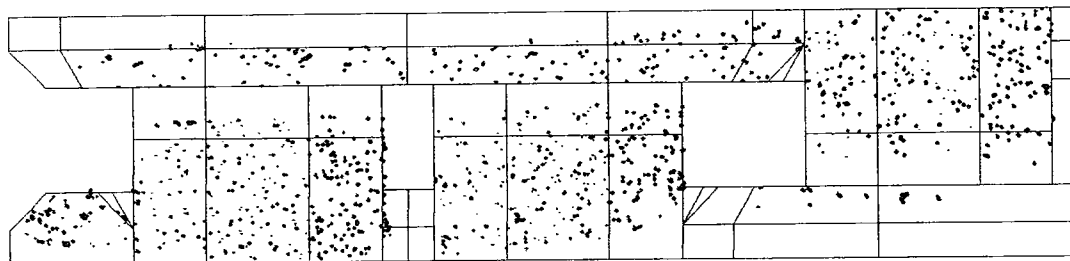
La modélisation numérique du transport et de la capture des particules est effectuée à une vitesse débitante de $2,5 \text{ m s}^{-1}$ pour des particules de diamètres différents, i.e. $d_p = 5, 10, 50$ et $100 \text{ }\mu\text{m}$. La masse volumique des particules est celle de la poudre d'alumine ($\rho_{\text{AL}_2\text{O}_3} = 3950 \text{ kg/m}^3$) pour laquelle des essais de filtration ont été réalisés expérimentalement sur des filtres tissés (Bénesse *et al.*, 2006).

Les résultats obtenus pour les différentes tailles de particules sont présentés figure 3.

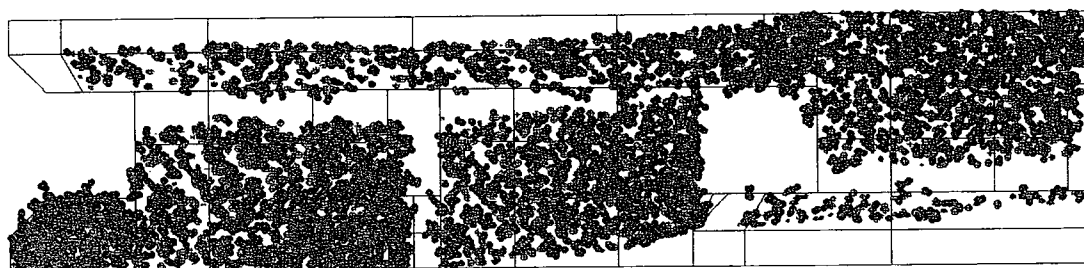
Plus les particules sont volumineuses, et plus elles quittent les lignes de courant du fluide porteur sous l'effet des forces d'inerties et viennent s'impacter sur les fils collecteurs (figure 4 c et d). Ainsi en observant la localisation des particules capturées sur les collecteurs, on constate que les particules volumineuses (100 et $50 \text{ }\mu\text{m}$) sont majoritairement capturées sur les faces amont des collecteurs alors que les particules plus fines (10 et $5 \text{ }\mu\text{m}$) sont plutôt capturées dans les pores interfils. En effet les particules fines étant moins lourdes, elles suivent les lignes de courant du fluide porteur tant que le fluide n'est pas soumis à de soudaines accélérations et des changements brusques de direction. Cependant en arrivant dans les pores, l'écoulement est fortement perturbé et accéléré (figure 2), ce qui a pour conséquence la capture des particules fines par impaction inertielle (figure 4 a et b).

De plus on remarque, figure 4 a et b, que la face la plus amont du collecteur horizontal supérieur est vierge de particules. Ceci s'explique par la présence d'une surface d'arrêt pour le fluide sur cette face d'où une vitesse très faible (de l'ordre de

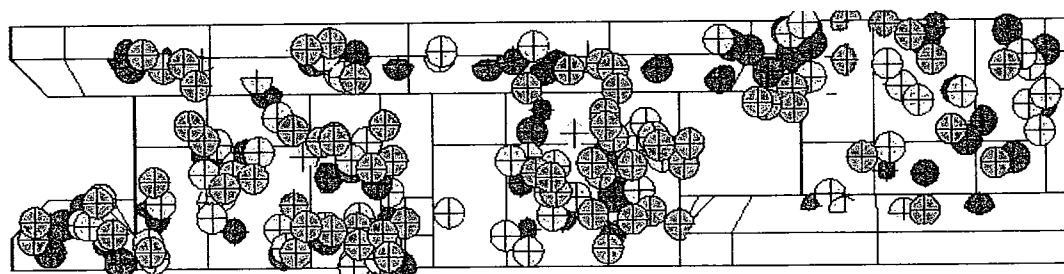
$1.10^{-3} \text{ m s}^{-1}$). Ainsi, les particules suivent les lignes de courant qui contourne cette face et n'entrent pas en contact avec cette zone. Ces fils horizontaux dévient donc les particules qui subissent une accélération en entrant dans la géométrie modèle et qui sont impactées sur les fils verticaux ce trouvant derrière.



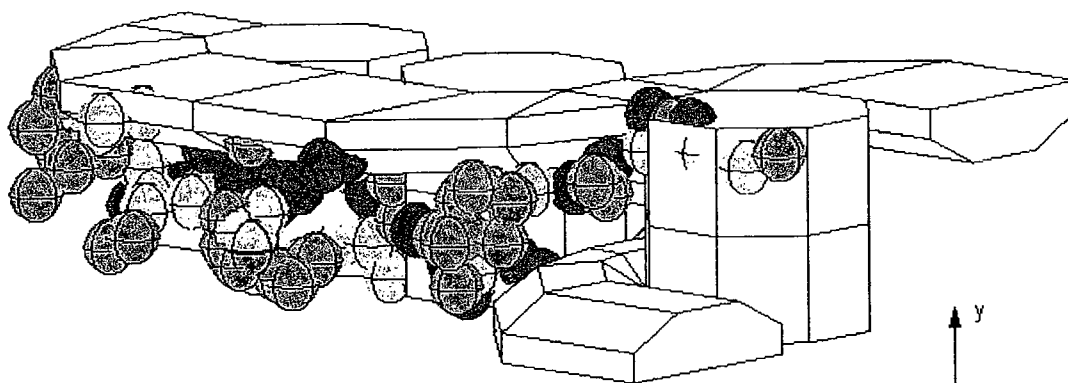
(a) Colmatage du filtre par 4700 particules de 5 μm .



(b) Colmatage du filtre par 8700 particules de 10 μm .



(c) Colmatage du filtre par 211 particules de 50 μm .



(d) Colmatage du filtre par 75 particules de 50 μm .

Figure 3. Capture des particules sur les fils collecteurs

L'ensemble des simulations effectuées permet de calculer les efficacités de collection du filtre pour les différentes tailles de particules étudiées. Les résultats d'efficacité de collection du tissu obtenus sont présentés à la figure 4.

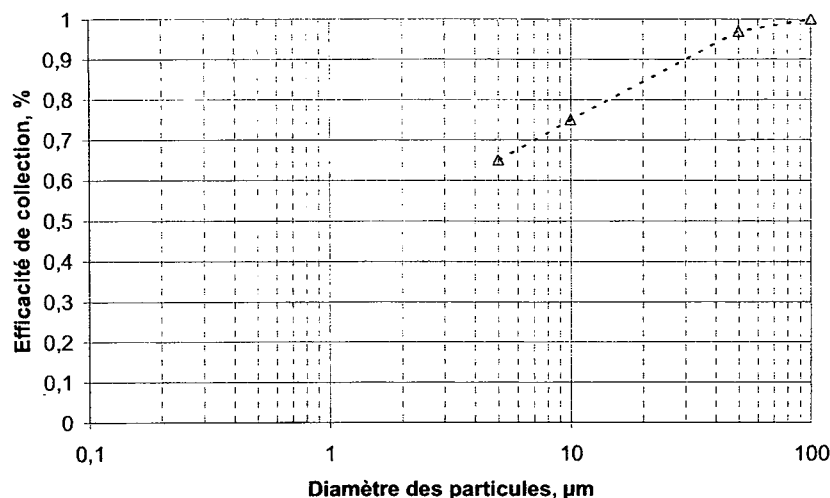


Figure 4. Estimation de l'efficacité de collection de la géométrie modèle suivant la taille des particules

IV . CONCLUSION

Cette étude a permis de simuler l'écoulement 3D à l'intérieur d'une géométrie modèle représentant un tissu natté 2. Un bilan des forces agissant sur les particules portées par cet écoulement a permis d'étudier l'influence de la taille des particules sur leur capture et leur localisation sur les fils collecteurs. Les résultats obtenus pour des tailles de particules variant de 5 à 100 μm ont conduit à l'estimation de l'efficacité fractionnelle de collection de la géométrie tissée.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Bénesse M., Le Coq L., Sollic C. (2006), Collection efficiency of a woven filter made of multifiber yarn: Experimental characterization during loading and clean filter modeling based on a two-tier single fiber approach, *Journal of Aerosol Science*, 37, 974-989.
- Bénesse M., Le Coq L., Sollic C., 2004, Modélisation numérique de l'écoulement et du transport des particules à l'intérieur d'un filtre tissé, *Congrès Français sur les Aérosols CFA 04 – Paris*.
- Bénesse M., Le Coq L., Bellettre J. et Sollic C., 2003, Analyse de l'écoulement à travers de filtres tissés : Approche expérimentale et numérique, *6^e Congrès Français de Mécanique, Nice*.
- Kanaoka C., 2002, Simulation of dust loading process at different filtration mechanisms including electrostatic effect, *International Workshop, Particle Loading and Kinetics of Filtration in Fibrous Filters, IMVM, Universität Karlsruhe*.
- Le Coq L., Pavageau M. et Sollic C., 2001, *Proceeding of 2001 ASME International Mechanical Engineering Congress and Exposition, November 11-16, New York, NY*.
- Lu W.M., Tung K.L., Hwang K.J., 1997, Effect of woven structure on transient characteristics of cake filtration, *Chemical Engineering Science*, 52, 11, pp 1743-1756.
- Lehmann M.J. et Kasper G., 2002, CFD Simulations of single fiber loading, *International Workshop, Particle Loading and Kinetics of Filtration in Fibrous Filters, IMVM, Universität Karlsruhe*.
- Tung K.L., 2006, CFD analysis on the effect of calendaring of filter cloth on transient characteristics of cake filtration, *2nd European Conference on Filtration and Separation, Compiègne*.
- Tung K.L., Shiau J.S., Chuang C.J., Li Y.L., Lu W.M., 2002, CFD analysis on fluid flow through multifilament woven filter cloths, *Separation Science and Technology*, 37(4), pp 799-821.

MESURE DE L'EFFICACITE DE FILTRATION DES PARTICULES NANOMETRIQUES

N. Michielsens* (1) et F. Mercier (1,2).

(1) 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.
nathalie.michielsens@irsn.fr

(2) Université Paris XII – Val de Marne. 61, avenue du général de Gaulle, 94010 Créteil Cedex.

TITLE

Nanometric particles and their collection efficiency measurement

ABSTRACT

The experiments from Balazy and al. (2004) and Van Gulijk and al. (2004) show a decrease of filter collection efficiency for particles under 25 nm. For the authors, that can be explained by the effects of thermal rebound and resuspension of the already deposited particles. A study is carried out at the IRSN to confirm or not this hypothesis. The test bench is described; it allows the measurement of the collection efficiency of several types of filter media using aerosols from 3 to 40 nm. Experimental results are presented and compared to theoretical value as well as other experimental values found in the literature.

RESUME

Les média filtrants sont de différentes natures, filtres à fibres, filtres membrane. Parmi ces différents médias, seules les efficacités des filtres à fibres et des filtres membrane à pores capillaires, avec des caractéristiques physiques connues, peuvent être déterminées théoriquement (Lee et Liu 1982 ; Spurny 1969 respectivement). Des expériences récentes, Balazy et al. (2004) et Van Gulijk et al. (2004), montrent une baisse d'efficacité des filtres à fibres pour des particules de taille inférieure à 25 nanomètres, qui, d'après les auteurs, pourrait s'expliquer par un rebond thermique qui n'est pas pris en compte dans les modèles d'efficacité des filtres. Une étude est actuellement menée à l'IRSN pour confirmer ou infirmer cette hypothèse. Après avoir décrit le banc d'essai permettant de mesurer l'efficacité de filtration de différents types de média filtrants pour une gamme d'aérosols comprise entre 3 et 40 nm, nous présentons les premiers résultats obtenus et nous les comparons aux valeurs théoriques et aux résultats expérimentaux trouvés dans la littérature. Nos résultats nous amènent à ne pas retenir l'hypothèse du rebond thermique comme phénomène responsable de la baisse d'efficacité des filtres qui résulterait de l'influence de la charge électrique de l'aérosol employé.

INTRODUCTION

Les aérosols nanométriques ou particules ultrafines font actuellement l'objet de recherches fondamentales et appliquées dans de nombreux domaines technologiques : peintures, production de nouvelles surfaces et de nouveaux matériaux... Parce que ces particules peuvent se déposer profondément dans les poumons ou parce que certaines sont si petites qu'elles peuvent atteindre le système nerveux via les parois nasales, il est légitime de chercher à s'en protéger et, dans ce cadre, d'évaluer l'efficacité des systèmes de filtration à leur égard.

Des études menées par Balazy et al. (2004) et Van Gulijk et al. (2004) montrent une baisse d'efficacité des filtres à fibres pour des particules de taille inférieure à 25 nanomètres, ce qui contredirait la théorie classique de la filtration qui prévoit une efficacité croissante, dans le domaine diffusif, inversement proportionnelle à la taille de la particule. Les auteurs expliquent cette différence entre les résultats expérimentaux et théoriques par un phénomène de rebond thermique des particules nanométriques qui n'est, pour l'instant, pas pris en compte dans les modèles d'efficacité

des filtres. Suite à ces travaux, Heim et al. (2005) ont réfuté l'hypothèse précédente et imputé la différence d'efficacité de collecte à des effets électrostatiques et/ou des artefacts de comptage du CPC (Condensation Particle Counter). Leurs expériences, consistant à mesurer l'efficacité de collecte de particules de NaCl inférieures à 20 nm, chargées électriquement ou globalement neutres, à travers des grilles métalliques et plastiques, montrent une hausse d'efficacité pour des particules chargées dans le cas de la grille en plastique et aucune différence dans le cas de la grille métallique.

L'objectif de l'étude réalisée à l'IRSN est de vérifier l'existence ou non d'un rebond thermique, notamment sur des média filtrants que nous utilisons couramment au laboratoire et sur lesquels des modèles théoriques ont été validés expérimentalement. Pour cela, nous avons commencé avec une grille métallique de dimensions connues dont l'efficacité de collecte a déjà fait l'objet de plusieurs expériences, en particulier pour la sélection en taille des descendants du radon et qui, de plus, est la base de la modélisation théorique de la filtration des filtres à fibres. Puis, poursuivant notre recherche de média à géométrie simple, bien définie, et donc modélisable, notre choix s'est porté sur un filtre membrane à pores capillaires. Ce filtre avait déjà été testé dans nos laboratoires avec des particules de l'ordre du dixième de micromètre (Montassier et al. 1996). Les expériences ont consisté à mesurer la perméance, à travers ces deux types de média, d'un aérosol chargé monodispersé, de taille comprise entre 3 nanomètres et 40 nanomètres, et à comparer les valeurs obtenues aux valeurs théoriques et aux résultats expérimentaux trouvés dans la littérature.

MATERIEL ET METHODES

Le banc expérimental servant à tester l'efficacité de collecte ou la perméance des particules nanométriques vis-à-vis des deux médias filtrants cités plus haut est décrit en figure 1.

La partie la plus importante du dispositif expérimental est le générateur de particules nanométriques composé (de gauche à droite sur le schéma) d'un purificateur d'air, d'un atomiseur et d'un sécheur de particules, d'un four tubulaire suivi d'une chambre de mélange puis d'un tube de coagulation. Ce système de génération, basé sur les travaux de Bartz, Fissan et Liu (1987), crée un aérosol nanométrique à partir d'une solution diluée de chlorure de sodium. La génération se fait par un jet turbulent dans la chambre de mélange permettant d'abaisser brutalement la température de la vapeur et de la condenser en particules de taille nanométrique.

Une fois créées, les particules sont sélectionnées suivant leur mobilité électrique par un SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) incluant un nanoDMA, puis envoyées vers le porte filtre aux bornes duquel sont mesurées la perte de charge et la concentration en particules. Le rapport concentration aval sur concentration amont, mesurées par un UCPC (Ultrafine Condensation Particles Counter), donne la perméance expérimentale du médium filtrant installé dans le porte filtre.

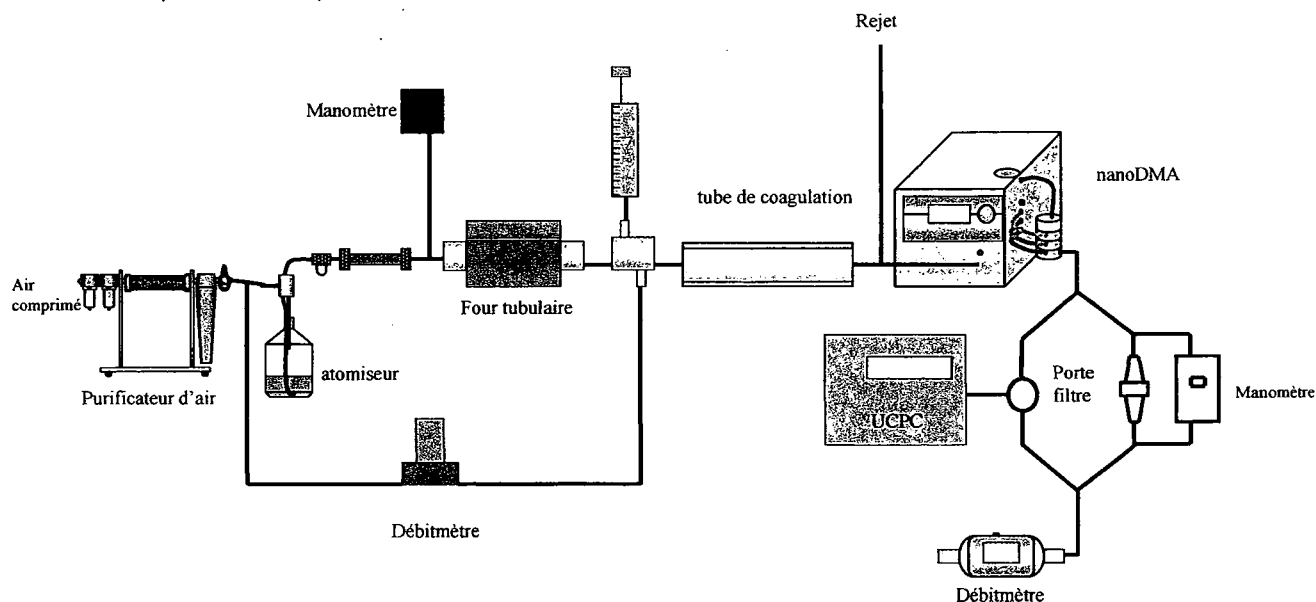


Figure 1 : Schéma du dispositif expérimental

Avant de mesurer les perméances, des tests préliminaires ont été effectués afin d'optimiser les paramètres de fonctionnement du système de génération de particules, le but étant d'obtenir une forte concentration et une petite taille stables dans le temps.

Le meilleur compromis taille/concentration est obtenu pour un débit d'air de 30 l/min et une température de 750°C dans le four. Dans ces conditions, la granulométrie de l'aérosol est représentée sur la figure 2 avec un diamètre médian en nombre de 8,5 nm, un écart-type géométrique de 1,5 et une concentration de $9 \cdot 10^6$ particules par cm^3 . La figure 3 montre la stabilité dans le temps de l'aérosol généré.

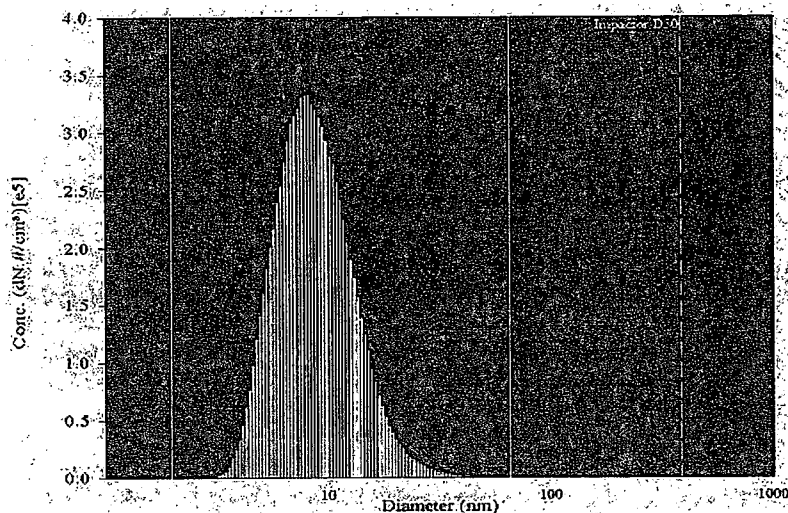


Figure 2 : Granulométrie de l'aérosol en sortie du banc

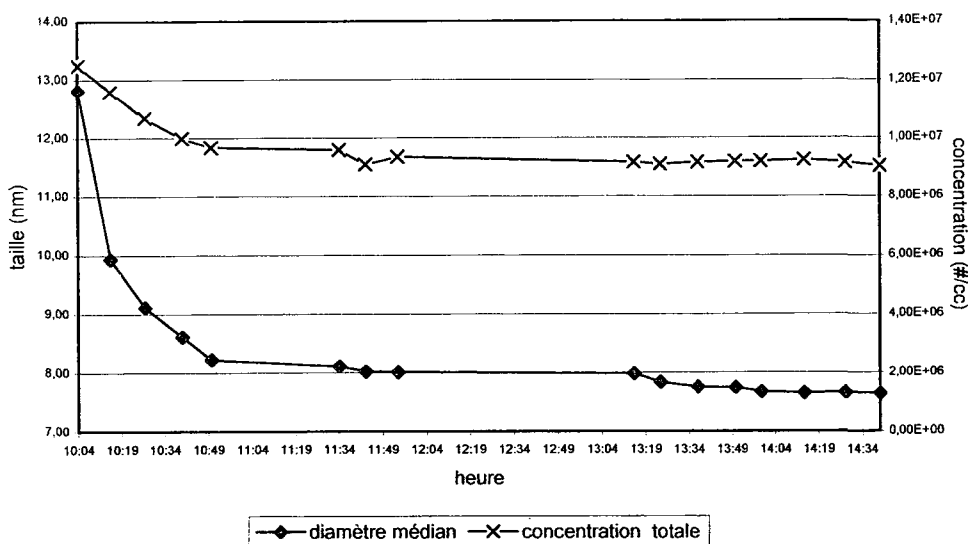


Figure 3 : Résultat de l'étude de la stabilité de génération.

Une fois le système de génération optimisé, nous pouvons commencer les mesures de perméance. Pour chaque taille de particules sélectionnée à l'aide du nanoDMA, la concentration amont et aval est mesurée alternativement par le même UCPC. Pour éviter les erreurs statistiques sur des mesures faibles de concentrations instantanées, nous avons choisi d'utiliser l'UCPC en mode comptage sur un temps qui permette, dans tous les cas, un comptage minimum de 100 particules (2000 s).

RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION

Sachant que le coefficient de diffusion des particules avec lesquelles nous travaillons est élevé, il est plus prudent de vérifier le « blanc » de l'expérimentation, c'est-à-dire de mesurer la perméance du porte-filtre lui-même, sans médium filtrant à l'intérieur. Les résultats sont reportés dans le tableau 1 pour un débit d'air à travers le porte filtre de 1,62 l/min et des tailles de particules inférieures à 10 nm pour lesquelles la mesure est significative.

Tableau 1 : Perméance du porte-filtre à 1,62 l/min

Diamètre (nm)	Nombre de mesures	Valeur moyenne de la perméance (%)	Ecart-type (%)
3	10	11,72	3,90
4	10	4,68	2,36
5	10	5,80	2,06
6	5	3,79	1,02

Les premiers média filtrants testés sont des grilles métalliques. Les expériences ont été réalisées avec un débit d'air de 1,62 l/min, soit une vitesse frontale de filtration de 3,5 cm/s. Les grilles sont caractérisées par deux paramètres principaux : le diamètre des fils ou des fibres qui les composent et l'ouverture, c'est-à-dire la distance séparant deux fils. La première grille avait des fils de 50 µm et une ouverture de 80 µm, la deuxième un diamètre de fils de 100 µm et une ouverture de 250 µm. Les essais ont été effectués pour une gamme de tailles allant de 3,2 à 40 nm.

Les résultats corrigés, c'est-à-dire en tenant compte du « blanc », sont présentés sur les figures 4 et 5. Les barres d'erreurs indiquent deux écarts-types. Ces résultats sont comparés à la courbe théorique de Cheng et Yeh (1980).

Perméance + dépôt grille 50-80 à 1,62 l/min

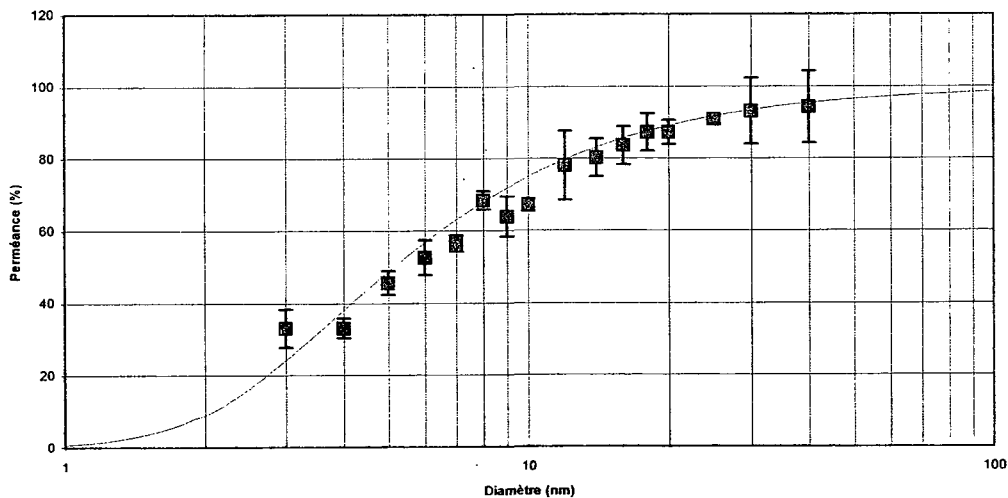


Figure 4 : Perméance corrigée, à travers la grille 50-80, en fonction du diamètre des particules

Perméance + dépôts grille 100-250 à 1,62 l/min

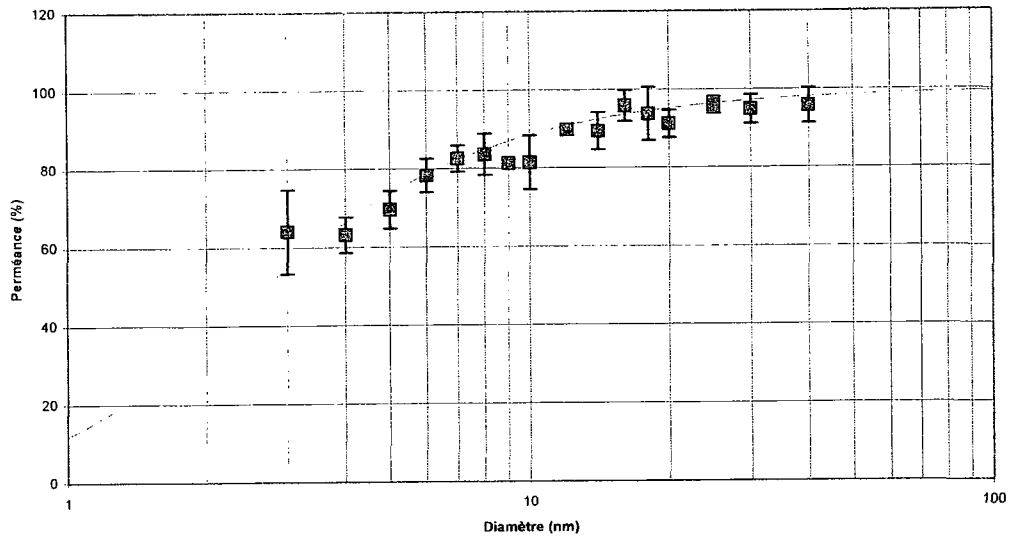


Figure 5 : Perméance corrigée, à travers la grille 100-250, en fonction du diamètre des particules

Nous observons un très bon accord théorie-expériences. Or, si un phénomène de rebond existait, il devrait être encore plus visible sur une grille que sur un filtre. En effet, une fois que la particule est libérée de sa surface d'attachement, elle peut se redéposer sur une autre surface et la probabilité de dépôt est plus importante pour un filtre que pour une grille. La perte d'efficacité du filtre observée par Balazy et al. n'est donc pas imputable au rebond thermique.

L'autre hypothèse avancée par Heim et al. pour expliquer la perte d'efficacité du filtre était un effet électrostatique. Nous allons vérifier cette hypothèse en testant une membrane filtrante Isopore ; ce type de média non conducteur est en effet susceptible de se charger électrostatiquement.

La membrane Isopore utilisée (HTTP 04700) a une épaisseur de 10 μm , un diamètre de pores de 0,4 μm et une porosité moyenne de 13 %. Le débit d'air qui la traverse est de 1,15 l/min (vitesse de filtration de 2,5 cm/s) et la perte de charge enregistrée à ses bornes est de 6 mbar. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure 6. Les barres d'erreurs indiquent deux écarts-types. L'échelle logarithmique, utilisée pour la représentation des perméances, nous montre ces écarts-types dissymétriques. Les perméances calculées théoriquement à l'aide de la relation de Spurny et al. (1969) donnent des valeurs inférieures à 10^{-12} pour des particules de diamètre inférieur à 20 nm.

Perméance des particules à travers la membrane Isopore

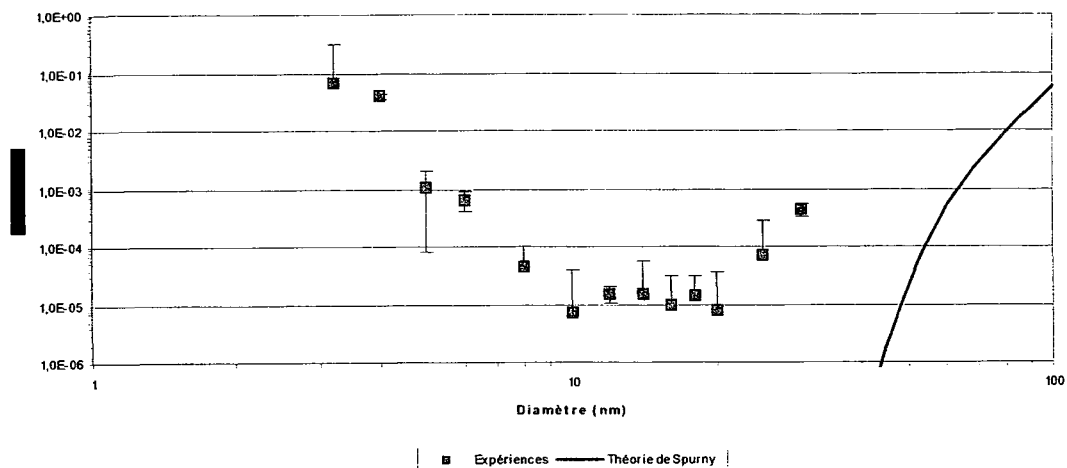


Figure 6 : Perméance, à travers le filtre membrane Isopore, en fonction du diamètre des particules

Les résultats montrent une stabilisation de la perméance entre 10 et 20 nm autour de 10^{-5} , puis une hausse significative et continue de la perméance avec les tailles de particules décroissantes pour atteindre une valeur proche de 0,1. Ces résultats ne sont pas conformes à la théorie ; par contre, ils montrent une hausse de la perméance comme l'a observé Balazy et contrairement à ce qu'a constaté Heim. Dans notre expérience, les particules sortant du NanoDMA sont chargées positivement (une fois) ; cette hausse de perméance pourrait être attribuée à l'influence de cette charge sur la collecte de l'aérosol par le filtre membrane.

CONCLUSION

Après avoir déterminé les paramètres et la granulométrie des particules générées par le dispositif de génération de particules nanométriques, des essais sur l'efficacité de collecte des particules nanométriques ont été réalisés avec des grilles calibrées et une membrane Isopore de caractéristiques connues. Les résultats obtenus pour les grilles sont en accord avec la théorie de Cheng et Yeh (1980) basée sur la théorie classique de la filtration, ce qui ne valide pas l'hypothèse de baisse d'efficacité due à un phénomène de rebond thermique pour les particules de taille supérieure à 3 nm. Par contre, nous observons une perte d'efficacité de la membrane pour des particules chargées en dessous de 10 nm ; des expériences complémentaires avec des particules neutres sont en cours afin de mieux appréhender l'influence de ces effets électrostatiques.

Références bibliographiques

- Balazy A., Podgorski A. et Gradon L. (2004). Filtration of nanosized aerosol particles in fibrous filters. Experimental results. *Journal of Aerosol Science*, 35, S967
- Bartz H., Fissan H. et Liu B. Y. H. (1987). A new generator for ultrafine aerosols below 10 nm. *Aerosol Science Technology*, 6, 163-171
- Cheng Y. S. et Yeh H. C. (1980). Theory of a screen-type diffusion battery. *Journal of Aerosol Science*, 11, 313-320
- Heim M., Kasper G., Meyer J., Mullins B. et Wild M. (2005). Nanofiltration – Critical review and new results. *Abstracts of European Aerosol Conference*, 445
- Lee K. W. et Liu B. Y. H. (1982). Theoretical study of aerosol filtration by fibrous filters. *Aerosol Science and Technology*, 1, 147-161
- Montassier N., Dupin L. et Boulaud D. (1996). Experimental study of the collection efficiency of membranes filters. *Journal of Aerosol Science*, 27, S637-638
- Spurny K. R. et al. (1969). Aerosol filtration by means of nuclepore filters : Structural and filtration properties. *Environment Science Technology*, 2, 79-87
- Van Gulijk C. et Bal E. A. (2004). Measurement of aerosol filtration for ultrafine particles. *Journal of Aerosol Science*, 35, S979

ANALYSE DES CONCENTRATIONS NUMERIQUE ET MASSIQUE A L'AVAL D'UN DEPOUSSIÉREUR A MANCHES – INFLUENCE DU TRAITEMENT DE SURFACE SUR LES PERFORMANCES DU FILTRE

X. Simon¹(1), D. Bémer(2), D. Thomas(1), G. Jardon(2), S. Callé(1), R. Régner(2)

Laboratoire de Filtration des Aérosols

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

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

TITLE

Downstream numerical and mass concentration analysis on bag filters dust collector - Influence of the surface treatment on the filter medium performances

ABSTRACT

The main objective of the study is to compare the performances of two types of non-woven polyester fibres' filter medias: one benefits from a smooth anti-adhesive thermo-bonded surface treatment (media CT) and the other is covered with a microporous polymeric membrane (media EM). A preliminary study on plane filter media ($\phi = 130$ mm) permits to determine that the initial fractional efficiency for the media EM is considerably better than for the media CT. A comparative study is then undertaken on a 24 filter bags pilot dust collector which offers the advantages of both a laboratory system (instrumentation, flexibility, accessibility) and industrial equipment (representativeness, realistic operating conditions). The performances of the two types of filter medias are mainly analyzed in term of numerical and mass downstream particles concentrations during cycles of filtration. The loading solid aerosol is a wood dust with a mass median diameter of 33.8 micrometers. The consequences of a defected air-tightness between the filtration chamber and the downstream air cap (crack in the rubber 'air and dust' seal) is also highlighted; the increase in the downstream particles concentration is quantified.

RESUME

Cette étude a comme objectif principal la comparaison des performances de deux types de médias filtrants non tissés en fibres de polyester : l'un bénéficiant d'un traitement de surface anti-colmatant par calandrage thermique (média CT) et l'autre étant recouvert d'une membrane polymère microporeuse en acrylique (média EM). Une étude préliminaire sur média plan ($\phi = 130$ mm) a permis de déterminer que l'efficacité fractionnelle à l'état neuf du média EM était considérablement meilleure que celle mesurée pour le média CT. Une étude comparative est ensuite menée sur un dépoussiéreur pilote comportant 24 manches filtrantes et présentant des caractéristiques dimensionnelles et opératoires similaires à celles rencontrées en milieu industriel. Les performances des deux types de manches sont principalement analysées en terme de concentrations numérique et massique en particules en aval du dépoussiéreur au cours des cycles de filtration. L'aérosol solide testé est constitué de particules de bois (poussières de ponçage) présentant un diamètre médian massique de 33,8 micromètres. Les conséquences d'un défaut d'étanchéité des joints entre les compartiments amont et aval ont également été mises en évidence; dans ce cadre, la dégradation de la concentration en particules mesurées à l'aval a été quantifiée.

1. INTRODUCTION ET ELEMENTS BIBLIOGRAPHIQUES

Le Laboratoire de Filtration des Aérosols travaille sur la thématique des aérosols et s'intéresse notamment à la filtration des aérosols solides par les dépoussiéreurs à médias filtrants. Plusieurs travaux du laboratoire concernant ce sujet ont été présentés par le passé dans le cadre du CFA (Simon et al. (2002, 2003 et 2004)). Ces précédents travaux ont permis une meilleure compréhension du fonctionnement cyclique des dépoussiéreurs suivant des cycles de colmatage et de décolmatage pneumatique. Les poussières filtrées entraînent un colmatage du média et la formation d'une couche de particules à la surface du média appelée gâteau de filtration. Le décolmatage a essentiellement pour objectif de détacher le gâteau de filtration, afin de diminuer la résistance à l'écoulement. Le filtre

étant ainsi régénéré, un nouveau cycle peut débuter. Le décolmatage s'accompagne simultanément d'une baisse de la perte de charge jusqu'à une valeur résiduelle et d'une chute brutale de l'efficacité du fait de l'émission de bouffées de particules à l'aval des éléments filtrants. Une étude menée sur des poussières de bois (Simon (2005)) a montré que les mesures de concentration en particules à l'aval des dépoussiéreurs étudiés sont majoritairement inférieures à la limite recommandée de $0,2 \text{ mg.m}^{-3}$ (recyclage). Cependant, les valeurs se trouvent souvent à la limite de la valeur recommandée. Cette situation ne tolère alors aucune dérive telle qu'une augmentation de la production de poussières dans l'usine ou que le vieillissement des éléments filtrants. De plus, certains dépoussiéreurs présentent des pics de concentration lors du décolmatage, qui dépassent systématiquement la valeur recommandée. Des dégradations de la qualité de l'air recyclé au cours d'une journée de travail peuvent également apparaître. Elles proviennent d'une augmentation temporaire de l'activité de l'entreprise et sont généralement associées au démarrage de machines qui génèrent de grosses quantités de poussières et qui viennent considérablement enrichir la concentration en particules à l'amont. Le recyclage de l'air s'accompagne également d'une réintroduction dans le local de travail de fines particules dont le spectre granulométrique est bien plus bas que les poussières sources à l'amont. Le respect des normes en vigueur, basé sur un calcul massique peut donc, parfois, être atteint tout en relevant d'importante concentration numérique en fines particules. Ce constat soulève donc une interrogation quant aux effets de ce type de particules sur la santé humaine et sur leur prise en considération dans le domaine de l'hygiène et de sécurité. Nous nous proposons de tester un média réputé plus performant (média EM) et de comparer les résultats avec ceux obtenus avec un média filtrant couramment utilisé dans le milieu du bois (média CT). Les résultats de ces travaux devront permettre de déterminer si l'un ou l'autre de ces deux médias présente des capacités de filtration significativement plus intéressantes à la fois d'un point de vue réduction des bouffées de concentrations en particules consécutives aux décolmatages mais également en terme de concentration moyenne en particules au cours des cycles. Cette étude comparative a également débouché sur le choix du média filtrant qui équipera un dépoussiéreur industriel en fonctionnement sur site et dont les performances seront mesurées pour la première fois sur une période longue (au minimum plusieurs mois).

2. MOYENS D'ESSAIS ET MESURES EFFECTUEES

L'étude a nécessité des expérimentations sur deux bancs d'essais :

- Une unité de tests mettant en œuvre un média plan circulaire de 0,13 m de diamètre :
La méthode de détermination de l'efficacité initiale des médias à l'aide du banc d'essais pour échantillons plans est celle décrite dans la norme EN 779 (1998). Le principe repose sur le prélèvement alterné à l'amont et à l'aval du média filtrant d'un aérosol test polydispersé par un compteur optique (aérosol de KCl de diamètre médian aérodynamique en masse de $2,1 \mu\text{m}$ et d'écart-type géométrique de 2,2 généré par un nébuliseur).
- Un dépoussiéreur pilote comportant 24 manches ($1,5 \text{ m} \times \varnothing 0,13 \text{ m}$), réparties sur 5 rails :

La bonne tenue mécanique des manches sur l'ensemble de leur hauteur est assurée par cinq anneaux de soutien. Ils assurent une certaine rigidité qui évite l'écrasement de la manche lors de la filtration (pas de cage support métallique interne).

L'aérosol de colmatage est généré par un générateur de particules Parimix 'DZ 2 DMR 30 A' (vis sans fin). La concentration massique injectée à l'amont a été fixée à $3,9 \text{ g.m}^{-3}$. L'aérosol solide testé est constitué de particules de bois (poussières de ponçage) présentant un diamètre médian massique de $33,8 \mu\text{m}$. Les poussières de bois proviennent d'un circuit de ponçage séparé d'une ébénisterie ; elles sont donc exemptes de déchets type copeaux. Il s'agit d'un mélange de chêne et de hêtre (essences de bois dur), facile à générer car il présente un faible pouvoir collant.

La régénération des manches s'effectue par décolmatage pneumatique. Le réservoir d'air comprimé possède un volume de 54 litres et une soupape de sécurité tarée à 7 bars. La pression du réservoir d'air comprimé est égale à $P_r = 3 \text{ bars}$. Cinq rampes d'alimentation en air comprimé circulent au dessus des manches et sont connectées aux 24 électrovannes de décolmatage (électrovannes 'power pulse' à membrane, Asco/Joucomatic). La durée d'impulsion de l'à-coup de pression (t_d) est fixée à 100 ms pour ces essais.

Le débit volumique global de l'installation est mesuré en conduit par un débitmètre à ultrasons (Panametrics Model XGM868). Son principe de fonctionnement repose sur la mesure par différence du temps de transit d'une onde codée (modèle breveté) entre une paire de transducteurs. Le principal avantage de ce débitmètre est qu'il est non intrusif et qu'il ne vient donc pas perturber l'écoulement de l'air en conduit. Le débit d'air est régulé afin d'assurer un débit de

filtration constant quel que soit l'état de colmatage des manches filtrantes (régulateur West model 8200). La vitesse de filtration (U_f) est égale à $4,7 \text{ cm.s}^{-1}$.

Deux lignes de prélèvements, à l'amont et à l'aval des manches filtrantes, permettent de prélever et d'analyser l'aérosol transporté en conduit. Une sonde de prélèvement profilée, située à l'extrémité d'un tube coudé, est placée au centre du conduit. Le tube de prélèvement est lui même relié soit à un dispositif de prélèvement sur filtre très haute efficacité (filtre THE Whatman en fibres de verre - amont, fortement empoussiéré), soit à un compteur optique de particules (aval, faible concentration en poussières). Le diamètre d'ouverture de la sonde profilée est déterminé de telle sorte que le prélèvement s'effectue de manière isocinétique.

Le lecteur pourra se référer à d'autres publications pour la description complète des deux bancs d'essais et de leur instrumentation (Simon et al. (2002, 2003 et 2005)). Chaque banc d'essais est conçu de manière à pouvoir effectuer des cycles de colmatage par des aérosols solides microniques et décolmatage par à-coup de pression à contre-courant. Les évolutions de la perte de charge et de la concentration en particules à l'aval au cours des cycles sont enregistrées, respectivement, par des capteurs de pression différentielle et un compteur optique (Grimm® 1.108, 15 canaux de $0,3$ à $20 \mu\text{m}$).

Les performances du média EM ont été déterminées sur le dépoussiéreur à manches pendant 200 cycles de filtration. Les conditions opératoires ont parfois été modifiées suivant les besoins des essais. Les évolutions de la perte de charge du média et des concentrations numérique et massique à l'aval au cours des cycles ont été analysées et comparées aux performances du média CT dans les mêmes conditions (essais préalablement réalisés au cours de la thèse de X. Simon). Des expériences ont été (involontairement) effectuées avec un joint d'étanchéité entre l'amont et l'aval défectueux : ces résultats ont également été analysés et permettent d'estimer les dégradations de performances de filtration que peuvent entraîner ce genre de fuites.

3. RESULTATS ET DISCUSSION

3.1. Caractérisation des médias filtrants à l'état neuf

Le média EM est un média non tissé de fibres de polyester bénéficiant d'un traitement de surface constitué par une membrane polymère microporeuse en acrylique (dépôt sur la surface filtrante d'un mélange à base de résine acrylique gélifiée ensuite à chaud). Les fournisseurs annoncent des performances en terme d'efficacité de filtration qui sont à comparer avec les très bons résultats d'un traitement de surface par laminage d'une fine membrane PTFE. Il est utilisé dans de nombreuses applications industrielles jugées délicates, souvent d'ailleurs en remplacement d'une membrane PTFE qui possède une résistance mécanique plus faible et qui est donc plus fragile. De surcroît, le prix du média EM est généralement 20 à 30 % moins cher qu'un traitement de surface par membrane PTFE. Les qualités que semblent présenter ce média filtrant – grande efficacité de filtration, robustesse et coût d'achat – ont été les critères de choix principaux pour effectuer les tests de comparaison qui vont suivre avec le média CT. Le traitement de surface par enduction microporeuse confère à la surface du média EM un aspect alvéolaire (Figures 1a et 1b – Observations au MEB).

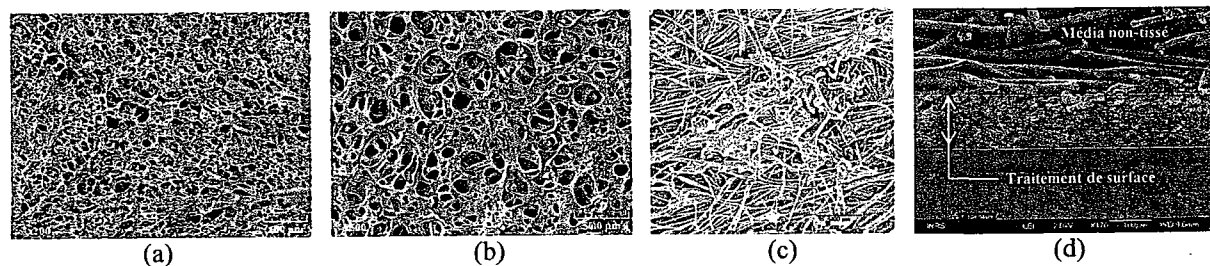


Figure 5 : Aspects de la surface filtrante du média EM (a, b) et du média CT (c). Observations en coupe du média EM (d).

Le média CT est constitué de fibres de polyester non tissées et bénéficie d'un traitement de surface anti-colmatant par calandrage thermique (opération qui consiste à faire passer le non-tissé entre deux cylindres en pression et chauffés - Figure 5c). Ce média est souvent employé pour la confection de manches de dépoussiéreurs dans l'industrie de la transformation du bois, en raison de sa faible perte de charge et de son faible coût. Le traitement de surface par calandrage thermique améliore principalement l'efficacité de décolmatage du gâteau (surface plus lisse donc moins de forces d'adhésion entre le gâteau et le média) mais n'améliore pas l'efficacité de collecte du média.

Le traitement de surface par calandrage thermique ne modifie pas l'épaisseur du média CT. L'épaisseur du traitement de surface du média EM est quant à elle non négligeable. Elle a pu être déterminée précisément par observations au MEB (Figure 5d). Elle est égale à 133 μm en moyenne. Les propriétés physiques des médias filtrants EM et CT sont indiquées dans le tableau 1.

Média filtrant	EM	CT
Grammage G (g.m^{-2})	590 \pm 10	400 \pm 5
Épaisseur Z (mm)	2,40 \pm 0,16	1,22 \pm 0,10
Compacité α_f	0,173 \pm 0,016	0,237 \pm 0,021
Diamètre aérolitique de Davies d_f (μm)	\approx 39	20,3 \pm 3,4
Perte de charge initiale ΔP_0 à $U_f = 4,7 \text{ cm.s}^{-1}$ (Pa)	120	40

Tableau 1 : Caractéristiques physiques à l'état neuf des médias filtrants testés.

La compacité α_f des médias vierges, qui se définit comme le rapport du volume des fibres sur le volume total du filtre, se déduit de la relation suivante : $\alpha_f = \frac{m_f}{S_f \cdot \rho_f \cdot Z} = \frac{G}{\rho_f \cdot Z}$.

Sur la figure 1d, il apparaît clairement qu'il existe une différence de compacité entre la membrane polymère alvéolaire qui semble très élevée par rapport à la compacité du support non tissé en fibres de polyester pour lequel le volume des vides est manifestement beaucoup plus important. Le colmatage interne du média EM risque d'être fortement réduit et il est probable que la construction du gâteau se fasse directement en surface dès les premiers cycles de filtration. D'autre part, la nature complètement différente du traitement de surface du média EM laisse à penser que les valeurs de compacité et diamètre de Davies indiquées dans le tableau 1 pour ce média ne caractérisent ni l'une, ni l'autre des deux milieux (non tissé ou membrane acrylique).

Pour $U_f = 4,7 \text{ cm.s}^{-1}$, le média EM occasionne une perte de charge 3 fois plus élevée que le média CT. L'épaisseur plus grande du média EM et la grande compacité du traitement de surface par enduction microporeuse sont les deux principaux facteurs qui peuvent expliquer ces résultats.

Les déterminations de l'efficacité de filtration initiale, réalisés sur le banc d'essais pour médias plans, ont été effectuées pour chacun des deux médias (Figure 2). A noter que les points correspondant aux dernières classes du compteur optique de particules Lasair 310 (3 - 5, 5 - 10 et $>10 \mu\text{m}$) n'ont pas été indiqués car leurs incertitudes étaient trop importantes (pas assez de particules $> 3 \mu\text{m}$ pour que les mesures soient représentatives).

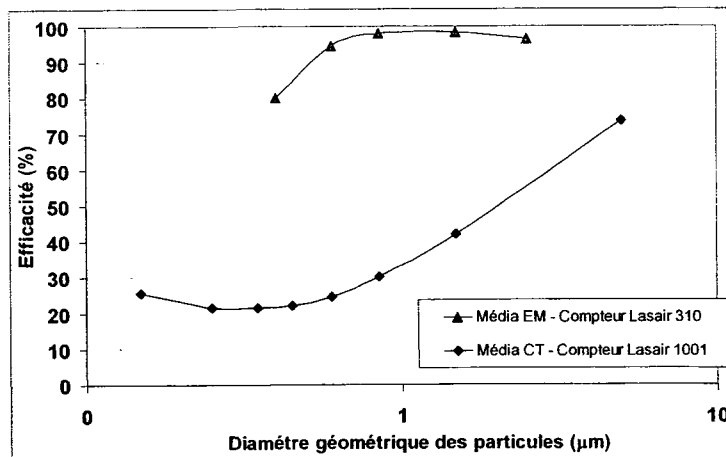


Figure 2 : Efficacité initiale en fonction du diamètre géométrique des particules pour les deux médias.

Le média CT est un média moyenne efficacité (seulement 20 % d'efficacité pour les particules de diamètre compris entre 0,2 et 0,4 μm) alors que les résultats pour le média EM montrent des efficacités supérieures à 80 % pour les particules de diamètre supérieur à 0,3 μm . Le traitement de surface par enduction microporeuse confère au média EM une efficacité de filtration initiale plus grande que celle du média CT. Les performances du média EM sont équivalentes à celles que l'on peut obtenir avec un non tissé bénéficiant d'un laminage d'une membrane PTFE. Au regard de ces premiers résultats, le média EM semble plus performant en terme d'efficacité de filtration que le média avec traitement de surface par calandrage thermique, classiquement utilisé pour la filtration des particules de bois. Cette première tendance devra cependant être confirmée au cours d'essais incluant de nombreux cycles de filtration (prise en compte de paramètres tels que le vieillissement du média, l'évolution du colmatage interne, l'usure potentielle du traitement de surface ...).

3.2. Analyse de la concentration en particules à l'aval des manches du dépoussiéreur pilote au cours des cycles de filtration

Les résultats qui vont être présentés sont issus de l'analyse des courbes de suivi de la perte de charge et de la concentration en particules à l'aval. Le tableau 2 permet de comparer les valeurs de trois types de concentrations (calculs effectués sur un minimum de 20 cycles successifs) pour les deux médias filtrants et pour différentes pertes de charge maximale avant décolmatage (ΔP_{max}) :

- La valeur maximale des pics de concentration numériques en particules après décolmatage, $C_{n,max}$.
- La concentration massique moyenne des bouffées de concentration en particules, $C_{m,bouffées}$. Elle représente la moyenne arithmétique des valeurs de concentrations massiques en particules pendant les seules périodes d'existence des bouffées de concentration en particules.
- La concentration moyenne en particules sur les cycles, $C_{m,cycles}$. Elle représente la moyenne arithmétique de l'ensemble des valeurs de concentrations massiques en particules pendant plusieurs cycles.

Conditions opératoires			Concentrations en particules à l'aval		
Média filtrant	Etat du joint d'étanchéité	ΔP_{max}	$C_{n,max} \times 10^{-6}$ (Nbre.L ⁻¹)	$C_{m,bouffées}$ (mg.m ⁻³)	$C_{m,cycles}$ (mg.m ⁻³)
Média CT	Neuf	10. ΔP_0	5,2	0,94	0,15
		20. ΔP_0	2,5	2,70	0,25
Média EM	Neuf	10. ΔP_0	0,6	0,25	0,006
		20. ΔP_0	2,2	0,40	0,008
	Détérioré	10. ΔP_0	0,9	1,07	0,14
		20. ΔP_0	2,9	2,08	0,17

Tableau 2 : Synthèse des concentrations en particules à l'aval du dépoussiéreur pilote à manches pour les deux médias et dans les différentes conditions opératoires étudiées.

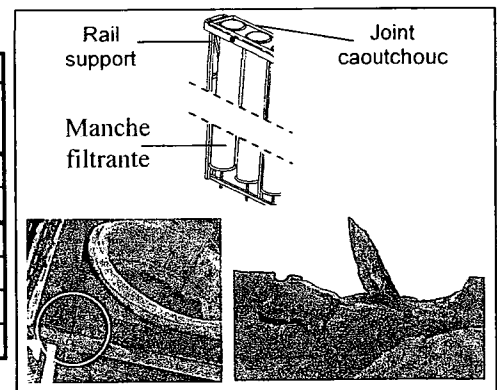


Figure 3 : Positionnement des manches filtrantes sur leur rail support et observations du joint d'étanchéité détérioré.

Les résultats montrent tout d'abord que les pics des bouffées de concentration numérique en particules mesurées à l'aval après décolmatage et les valeurs de $C_{m,bouffées}$ sont plus importants pour le média CT que ceux correspondant au média EM. Le média EM semble donc être plus performant dans l'objectif de réduire les bouffées de particules consécutives aux décolmatages pneumatiques. Ceci est, encore une fois, d'autant plus vrai que le média EM se retrouve dans des conditions plus défavorables d'un point de vue concentration à l'amont. On peut supposer d'une part que le traitement de surface par enduction microporeuse limite considérablement la migration interne des particules (limitation du passage de particules vers l'aval par des mécanismes de relargage des particules piégées en profondeur). D'autre part, le média EM possède une efficacité propre plus grande que le média CT (Figure 2) et il s'expose moins aux passages directs de particules en l'absence du gâteau.

Depuis le 1^{er} juillet 2005, la valeur limite d'exposition professionnelle (VLEP) en présence d'aérosol de bois est fixée en France à 1 mg.m⁻³. Il est recommandé que la concentration dans les conduits de recyclage de l'air à l'aval du dispositif de dépoussiérage soit inférieure au cinquième de la valeur limite soit 0,2 mg.m⁻³. Les valeurs de concentration massiques présentes dans le tableau sont donc à comparer à cette valeur de référence.

Les valeurs moyennes de l'émission particulaire à l'aval pour le média CT sont inférieures à 0,25 mg.m⁻³. Pour ce média, les valeurs de concentration massique moyenne en particules de bois dans l'air recyclé, calculées sur plusieurs cycles de colmatage et de décolmatage, sont donc proches ou inférieures à la limite de 0,2 mg.m⁻³ recommandée dans les conduits de recyclage de l'air à l'aval des dispositifs de dépoussiérage. Malgré la dégradation significative de l'efficacité de filtration consécutivement aux décolmatages pneumatiques, causée par la brutale émission de particules sous forme de bouffées et par la disparition momentanée du gâteau de filtration, il semble donc que les concentrations massiques moyennes, intégrant plusieurs cycles, restent faibles pour le média en fibres de polyester non tissées avec traitement de surface par calandrage thermique. A noter toutefois que la valeur de la concentration amont ($C_p = 3,9$ g.m⁻³) est en dessous des valeurs généralement rencontrées en milieu industriel (habituellement comprises entre 5 et 10 g.m⁻³ selon le rythme de travail de l'atelier). Le média EM montre des valeurs de concentration massique moyenne en particules de bois dans l'air recyclé à la fois très inférieures à 0,2 mg.m⁻³ et très inférieures aux valeurs obtenues avec le média CT.

Quels que soient le média considéré ou les conditions opératoires utilisées, les pics de concentrations dans le conduit aval intervenant après chaque décolmatage, $C_{m, \text{bouffées}}$, dépassent systématiquement la valeur recommandée de $0,2 \text{ mg.m}^{-3}$. On note cependant que les valeurs obtenues pour le média EM sont entre 4 et 7 fois plus petites que celles observées pour le média CT.

L'autre résultat intéressant de cette étude vient de la comparaison entre les valeurs de concentrations pour le média EM d'une part lorsque le joint d'étanchéité est parfaitement opérationnel (état neuf) et d'autre part lorsque celui-ci présente des fuites (état détérioré). L'étanchéité des rails supports contre le plateau de séparation entre le caisson de filtration et la coiffe du dépoussiéreur est en effet assurée au moyen d'un joint caoutchouc comprimé (Figure 3) qui est devenu défaillant après une longue période d'utilisation. Les joints en question ont en effet subis de nombreuses sollicitations (écrasements, lavage à l'eau, températures basses en hiver, frottements et torsions lors des changements de manches ou vérifications diverses) au cours des nombreux essais expérimentaux depuis l'acquisition du dépoussiéreur pilote à manches en 2002.

Ils présentaient des fissures, déchirures et défauts de raccord qui n'avaient pas été détectées au moment de la reprise des essais. L'existence de ces fuites a été détectée par l'observation de la forme des courbes de la concentration numérique en fonction de la masse surfacique générée. Les résultats habituellement obtenus avec un média fibreux tels que ceux testés montrent une diminution progressive de cette concentration au fur et à mesure que le gâteau de filtration se construit et que la perte de charge augmente. L'efficacité de filtration augmente progressivement au cours du dépôt des particules filtrées, de plus en plus nombreuses à constituer le gâteau et à améliorer l'efficacité globale de capture. Or, les résultats obtenus avec le média EM détérioré n'étaient pas conformes à cette évolution logique. Après la bouffée de particules, la concentration à l'aval augmentait au cours du temps au lieu de diminuer. Cette tendance est caractéristique d'un débit de fuite, qui augmenterait au fur et à mesure que la perte de charge croît. Plus la valeur de perte de charge est élevée, plus le débit d'air régulé de l'installation augmente également afin de maintenir une valeur constante et plus le suintement de particules à travers des fuites dans les joints est important.

Malgré une faible dégradation apparente (quelques dizaines de millimètres de joints détériorés sur plusieurs mètres de joint utilisé), les conséquences sur la concentration massique mesurée à l'aval sont importantes : des augmentations par un facteur supérieur à 20 des valeurs de $C_{m, \text{cycles}}$.

4. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Une étude préliminaire sur médias plans a permis de déterminer que l'efficacité fractionnelle à l'état neuf du média EM était considérablement meilleure que celle mesurée pour le média CT. Une étude comparative a ensuite été menée sur un dépoussiéreur à manches pilote, présentant des caractéristiques dimensionnelles et opératoires similaires à celles rencontrées en milieu industriel. Les performances des deux types de manches ont été analysées en terme de concentrations numérique et massique en particules en aval du dépoussiéreur au cours de nombreux cycles de filtration.

En terme de performances de filtration, le média EM est significativement plus intéressant que le média CT sur la base de ces essais. Il possède des caractéristiques intéressantes en vue de réduire les émissions particulaires à l'aval des dépoussiéreurs à décolmatage pneumatique (et ainsi de se mettre en conformité avec les exigences normatives), notamment en terme de bouffées de particules émises après régénération. Un suivi des performances du média EM sur une longue durée devrait débiter prochainement sur un dépoussiéreur industriel. Les deux questions suivantes seront au cœur des investigations : Les bonnes performances du média EM subsistent-elles après de nombreuses heures de fonctionnement ? Son coût 2 fois plus élevé en moyenne que celui du média CT se justifie-t-il d'un point de vue prévention et qualité de l'air dans les ateliers de travail fonctionnant en mode recyclage ? Une chose est sûre, à la vue des résultats présentés dans ce papier, il est inutile d'équiper un dépoussiéreur avec des manches neuves et très performantes si l'étanchéité entre les compartiments amont et aval n'est pas parfaitement réalisée : environ 4 cm de joints détériorés et de mauvais raccords ont suffi à faire augmenter la concentration à l'aval par un facteur supérieur à 20.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Norme EN 779 (1998). Particulate air filters for general ventilation – Determination of the filtration performance.
- Simon X., Bémer D., Callé S., Thomas D., Régnier R., Contal P. (11 – 12 déc 2002). Performances des dépoussiéreurs à manches – Etude sur média plan et sur pilote, 18^{ème} Congrès Français sur les Aérosols, Paris.
- Simon X., Bémer D., Thomas D., Callé S., Régnier R., Contal P. (10 – 11 déc 2003). Etude et optimisation du décolmatage des filtres à manches – Influences des paramètres d'un à-coup de pression sur les performances de décolmatage, 19^{ème} CFA, Paris.
- Simon X., Bémer D., Thomas D., Callé S., Régnier R. (7 – 8 déc 2004). Description des bouffées de particules émises à l'aval d'un dépoussiéreur consécutivement à des décolmatages par à-coup de pression, 20^{ème} CFA, Paris.
- Simon X. (nov 2005). Etude du décolmatage pneumatique des dépoussiéreurs à manches. Thèse INPL.

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

J.-C. Appert-Collin* (1), B. Sutter (1)(2), D. Bemer (2) et D. Thomas (1)

Laboratoire de Filtration des Aérosols

(1) Laboratoire des Sciences du Génie Chimique / Nancy Université
1, rue Grandville, BP 20451, 54001 Nancy Cedex.

Jean-christophe.appert-collin@ensic.inpl-nancy.fr

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

TITLE

Study of the evaporation losses of semi-volatile or 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 semi volatile or 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, and mass of deposit aerosol. To understand the evaporation of low deposit aerosol, new detectors of vapour have been studied.

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 ou volatils. L'étude menée ici, en association étroite avec l'INRS, couvre principalement l'aspect expérimental même si une modélisation simple sera présentée. 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. Afin de comprendre les phénomènes d'évaporation pour les faibles charges, des détecteurs de vapeurs ont été étudiés

INTRODUCTION

Le besoin de connaissances dans le domaine de l'évaporation liée à la filtration des aérosols liquides tels que les brouillards d'huile ou de produits phytosanitaires, nous a conduit à mener cette 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 fait suite à une première ébauche sur l'évaluation de la cinétique d'évaporation d'aérosols liquides collectés sur un filtre à fibre balayé par un flux d'air par suivi gravimétrique. Ici, le but est de mettre au point une quantification des vapeurs entraînées à l'aide de capteurs. Ces expérimentations ont été menées sur un filtre Whatman à très haute efficacité (THE) et avec deux liquides « modèles » (alcools), à différentes vitesses de perméation de l'air et pour différentes températures. Les capteurs mis au point sont de 2 types : détecteurs à photo ionisation et capteurs semi conducteurs.

MATERIEL ET METHODES

Lors de ces expérimentations, seul un type de filtre a été utilisé ; il s'agit d'un filtre Whatman en fibres de quartz THE dont les caractéristiques sont données dans le tableau suivant.

Tableau 1 : Caractéristiques des 2 filtres utilisés

	Whatman
Masse surfacique (g.m^{-2})	74,7
Epaisseur (mm)	0,41
Compacité	0,073
Diamètre moyen fibre (arithmétique) (μm)	0,36

Dans un premier temps, 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 μm et 0,58 μm respectivement pour l'hexanol et l'octanol.

Bancs expérimentaux

Les manipulations effectuées se sont déroulées en 2 étapes : une première étape (figure 1) de génération de l'aérosol à l'aide d'un nébuliseur en verre (type DeVilbiss 40) et de filtration au travers du media fibreux, puis une seconde étape (figure 2) de balayage à l'air propre.

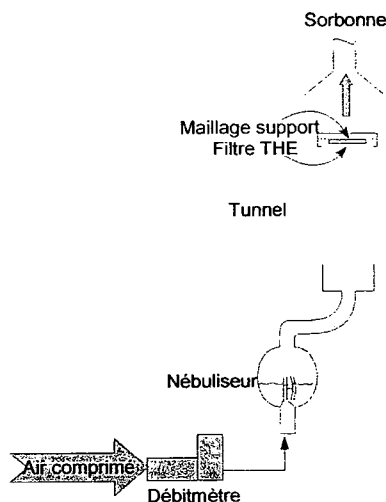


Figure 1 : Montage expérimental de génération et de collecte

Pour le montage lié au balayage à l'air, la maîtrise de la température de l'air traversant le media filtrant a nécessité la mise en place de calorifuge, de rubans chauffants ainsi qu'un bain thermostaté dans lequel circule préalablement l'alimentation en air. Une sonde de température miniature de type Pt100 permet un suivi de la température.

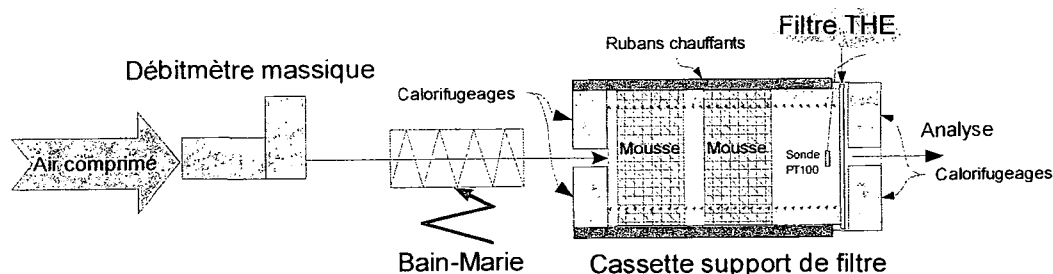


Figure 2 : Montage expérimental du balayage à l'air propre

les détecteurs de vapeur

Détecteur à photo-ionisation (PID miniRAE)

La technique de détection des gaz de cet appareil repose sur l'ionisation des molécules du gaz prélevé.

D'un point de vue de la mise en œuvre, les PID sont d'une utilisation relativement simple mais nécessitent cependant un contrôle régulier car ces appareils présentent une dérive dans le temps non négligeable. Cette dérive provient essentiellement de l'état de propreté de la lampe UV.

Le principal défaut d'un PID reste une non sélectivité et une sensibilité variable selon les composés analysés. En effet, tous les gaz ayant un potentiel d'ionisation inférieur au potentiel de la lampe UV seront détectés. Ainsi, à moins d'être en mono pollution ou de connaître précisément tous les polluants et leur proportion dans l'air ambiant, il est impossible de déterminer une concentration précise et encore moins d'identifier un polluant.

Afin de connaître la réponse du PID aux vapeurs d'hexanol, un étalonnage dans une enceinte hermétique homogénéisée a été effectué [5]; la figure 3 donne la courbe d'étalonnage correspondante.

La courbe d'étalonnage est dans un premier temps linéaire jusqu'à une concentration de 3 g.m^{-3} , puis s'incurve au-delà. Ce phénomène s'explique par l'adsorption de plus en plus importante des vapeurs d'hexanol sur les parois de l'enceinte lorsque la concentration devient élevée. Entre 3 et $4,15 \text{ g.m}^{-3}$, les vapeurs se condensent progressivement sur les parois. En effet, la température du gaz à l'intérieur de l'enceinte est légèrement supérieure à celle du gaz en contact avec les parois. Au-delà de $4,15 \text{ g.m}^{-3}$ d'hexanol, la concentration saturante théorique est atteinte. Il y a condensation sur les parois de la vapeur d'hexanol et formation d'un brouillard d'hexanol dans l'enceinte.

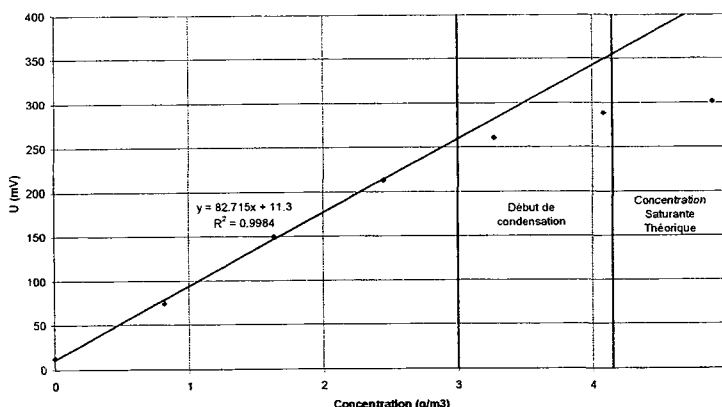


Figure 4 : Courbe d'étalonnage de la réponse analogique du PID MiniRAE 2000 en fonction de la concentration en vapeur d'hexanol dans l'enceinte d'étalonnage

Les capteurs semi conducteurs (SC)

Différents types de capteurs SC sont testés. Ils portent les références du constructeur FIGARO suivantes : TGS 2600, TGS 2602, et TGS 2620. Leur comportement étant inconnu, des étalonnages successifs dans une enceinte hermétique homogénéisée sont réalisés pour dans un premier temps modéliser leur réponse en fonction de la concentration en vapeur d'hexanol, et pour dans un deuxième temps, étudier leur reproductibilité.

Les gaz à détecter pénètrent dans la chambre d'analyse du capteur par diffusion à travers une grille de protection, puis s'adsorbent sur la couche semi-conductrice. La résistance de la couche sensible est modifiée en fonction de la nature et de la quantité de molécules adsorbées à sa surface. Afin de ne pas saturer la couche sensible en molécules, une désorption thermique des molécules est rendue possible par l'élévation de température de la couche sensible par l'élément chauffant (jusqu'à 500°C).

L'inconvénient majeur de ce type de capteurs est leur non-spécificité. La couche sensible semi-conductrice n'est pas spécifique d'une molécule, mais d'une famille de molécules, ce qui peut poser des problèmes lorsqu'il s'agit de ne détecter qu'une seule molécule (pollutions, etc.).

Description des manipulations

Au cours de cette étude, 3 « charges » (5, 10 et 60 mg correspondant à des temps de génération de 5, 10 et 60s) d'aérosols et 3 vitesses de balayage de l'air (1,25 – 2,5 et 5 cm.s⁻¹) ont été testées à différentes températures (22, 30, 35 et 40°C) pour l'hexanol sur filtre Whatman.

RESULTATS

Rappel sur les résultats gravimétriques sur l'hexanol

Les premiers essais avec suivi gravimétrique ont montré (figure 5) que la totalité de l'aérosol collecté est ré-entrainé (ou évaporé). On observe une partie linéaire jusqu'environ 80% de la charge initiale puis une courbe type 1^{er} 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. L'évolution de ce flux d'évaporation en fonction de la température de l'air semble être linéaire (figure 6) ce qui correspond bien à une force motrice liée à la pression de vapeur saturante du liquide. Une modélisation simple (non représentée ici) atteste ce comportement mais révèle un mauvais contrôle de la température

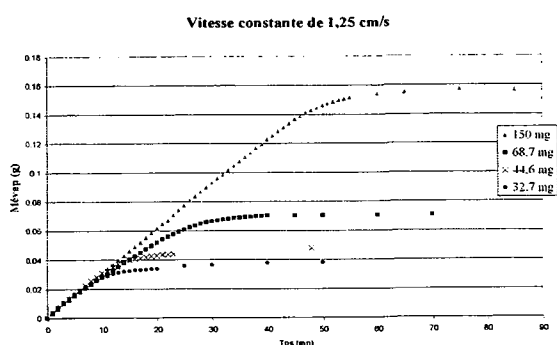


Figure 5 : Evaporation de l'hexanol pour différentes charges collectées à température ambiante et vitesse constante sur le filtre Whatman

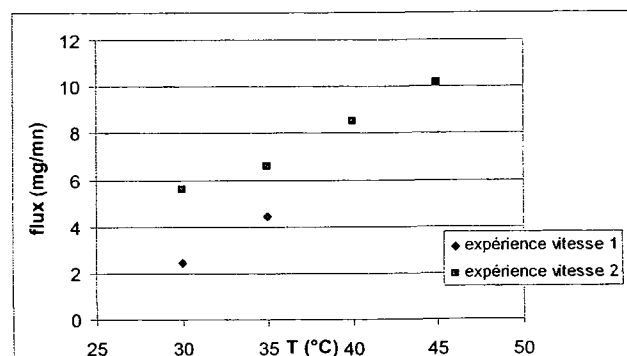


Figure 6 : flux d'évaporation d'un aérosol d'hexanol, obtenu par suivi gravimétrique, en fonction de la vitesse (1 : 1,25cm.s⁻¹ – 2 : 2,5cm.s⁻¹) et de la température.

Etude sur l'hexanol à l'aide du PID

Les expériences d'évaporation avec détection PID ont été menées pour différentes masses collectées sur le filtre (lié au temps de génération G) et pour différentes vitesses de passage de l'air U et ceci pour une température de 22°C. Compte tenu de l'étalonnage préalable, les tensions mesurées sont converties en concentration. Ces résultats sont présentés sur la figure 7 avec la comparaison aux flux théoriques obtenus à saturation. Les expériences ont été doublées (non représenté) et montrent une bonne reproductibilité. On observe une bonne adéquation entre les flux calculés lors d'une évaporation maximale à saturation en tenant compte de la quantité de chaleur nécessaire à cette évaporation et les plateaux d'évaporation expérimentaux.

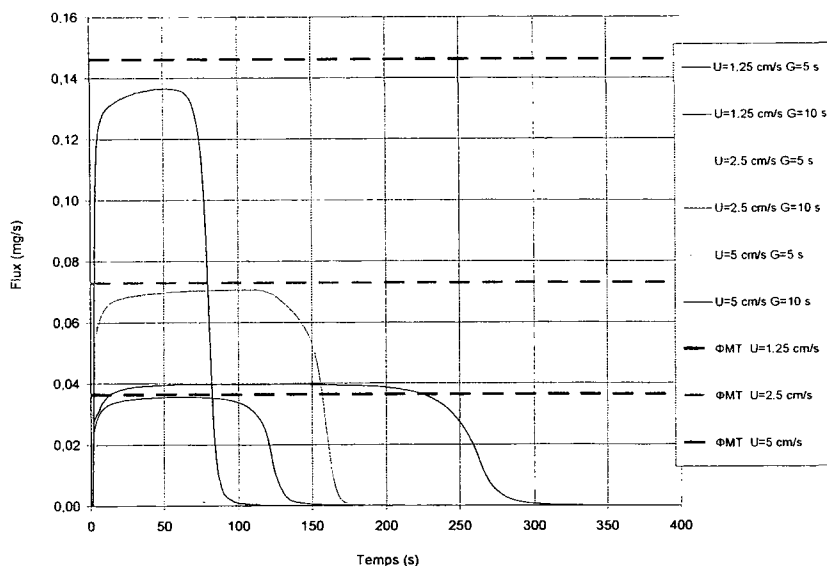


Figure 7 : Flux d'évaporation théoriques et expérimentaux d'un aérosol d'hexanol collecté sur filtre Whatman en fonction de la vitesse de perméation du gaz propre à travers le filtre U et du temps de génération G . Température de l'air à l'amont du filtre $T=22^{\circ}\text{C}$.

La figure suivante (figure 8) représente la masse réduite m' représentant la masse évaporée sur la masse initiale en fonction du temps pour les mêmes conditions opératoires que précédemment. Comme en gravimétrie, on obtient une évaporation totale de l'hexanol mais contrairement à ce qui avait été observé, le changement de mode d'évaporation (entre linéaire et type 1^{er} ordre) se fait aux environs de 95% ce qui est plus tard que les 80% observé et parfois décrit dans la littérature. Cette différence n'a pour l'instant pas d'explication.

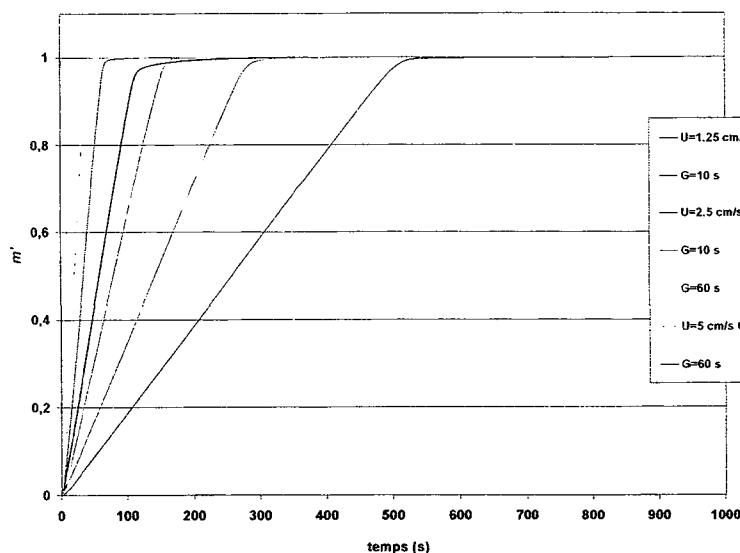


Figure 8 : Evolution de la masse évaporée réduite m' expérimentale d'un aérosol d'hexanol collecté sur filtre Whatman en fonction du temps, de la vitesse de perméation du gaz propre à travers le filtre U et du temps de génération G . Température de l'air à l'amont du filtre $T=22^{\circ}\text{C}$.

Comme lors des essais gravimétriques, l'étude de l'influence de la température de l'air a été menée avec détection à l'aide du PID. La figure 9 représente la concentration (ou flux) pour trois températures différentes : 30, 35 et 40°C ainsi que l'estimation de ce flux par le modèle simple décrit précédemment. On vérifie bien l'augmentation du flux avec la température. Par contre les modèles d'évaporation ne sont pas en accord avec les expériences pour les 3 températures et la variation n'est pas dans le même sens pour les 3. Ceci est peut-être dû à une mauvaise calibration du détecteur PID à l'isobutylène car lors de cette calibration, l'ensemble doit être à la température de travail ce qui n'est pas obligatoirement le cas pour l'isobutylène.

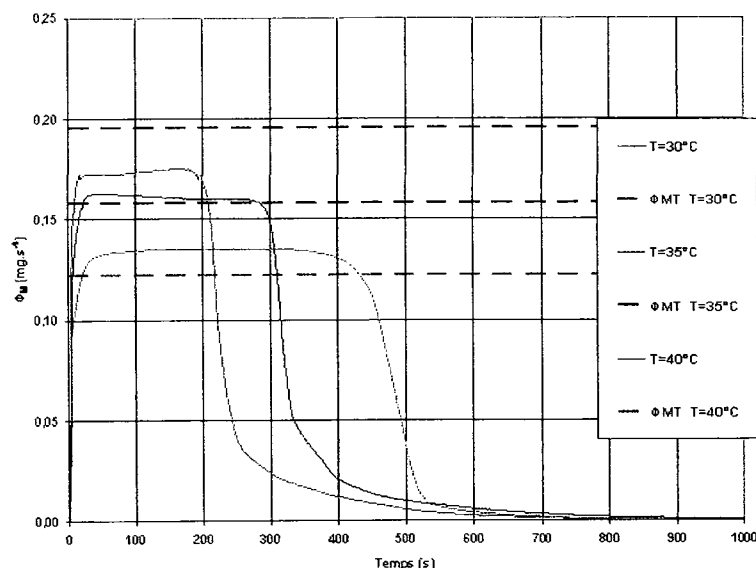


Figure 9 : Flux d'évaporation théoriques et expérimentaux d'un aérosol d'hexanol collecté sur filtre Whatman en fonction de la température du gaz à l'amont du filtre. Temps de génération $G=60s$ et vitesse du gaz $U=2,5 \text{ cm.s}^{-1}$.

CONCLUSION

Après avoir montré la faisabilité et l'intérêt de l'étude sur l'évaporation d'aérosols initialement collectés sur un filtre à fibre par suivi gravimétrique, ces expériences avec mesure de vapeur par photoioniseur demandent à être améliorées mais ont donné des résultats très intéressants. On a pu ainsi effectuer le suivi en continu de l'évaporation de l'hexanol pour différentes masses collectées et pour différentes vitesses de passage de l'air. La comparaison avec le flux maximum évaporable à saturation montre une bonne adéquation à température ambiante mais montre un léger écart à température plus élevée. L'utilisation de capteurs semi conducteurs, par leur plus grande sensibilité, va permettre de compléter l'étude pour de faibles masses d'aérosols déposés, des produits à faible tension de vapeur ($<100\text{mPa}$). Leur étalonnage pour l'hexanol est en cours dans une enceinte adaptée avec paramètres contrôlés.

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 - B. Sutter (2006). Etude des pertes par évaporation lors de la perméation à l'air d'un filtre à fibre initialement chargé d'un aérosol semi volatil – Master recherche (Université de Savoie)

CARACTERISATION DES PARTICULES DE SUIE EMISES DANS UN FOYER SUR-VENTILE

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

(1) *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.*

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

e-mail de l'auteur : francois-xavier.ouf@irsn.fr

TITLE

Characterization of soot particles emitted in a over-ventilated furnace

ABSTRACT

Fire is the greatest industrial risk and in nuclear facility the containment of the plant must be maintained in any case, from normal to accidental situation. The soot particles emitted during a fire have a double impact, firstly on the containment of the installation (clogging of filtration barriers in the ventilation network) and secondly on the propagation of fire through the radiative properties of these particles. Consequently, a better knowledge of the properties of soot particles is needed in the fire zones but also in the plume of diffusion flames encountered during a fire. Here, we present a study of the physical parameters (concentration, size distribution and morphology) of soot particles sampled in the plumes of over-ventilated diffusion flames of acetylene, toluene and PolyMethyl Methacrylate.

RESUME

L'incendie est un risque industriel majeur et dans une installation nucléaire, le confinement doit être maintenu dans toutes les situations, qu'elles soient normales ou accidentelles. Les particules de suie émises au cours d'un incendie présentent un impact double, premièrement sur le confinement des matières dans l'installation (colmatage des barrières de filtration du réseau de ventilation) et en second sur la propagation de l'incendie à travers les propriétés radiatives de ces particules. Par conséquent, une meilleure connaissance des propriétés des particules de suie est nécessaire dans la zone de flamme mais aussi dans le panache des flammes de diffusion rencontrées au cours d'un incendie. La présente étude porte sur la caractérisation physique (concentration, granulométrie et morphologie) des particules de suie prélevées dans le panache de flammes de diffusion sur-ventilées d'acétylène, toluène et PolyMéthyl Méthacrylate.

CONTEXTE ET OBJECTIFS DE L'ETUDE

Les particules émises lors de la combustion sont un sujet de préoccupation constante dans le cadre de l'étude de la sûreté d'une installation vis-à-vis du risque incendie, mais aussi dans le cadre de l'environnement puisqu'elles représentent une part importante des pollutions constatées au niveau urbain. La présente étude se situe dans le contexte particulier de l'incendie dans un local ventilé tel que celui d'une installation nucléaire. Dans cette éventualité, les particules de suie produites présentent un double impact : le premier porte sur le confinement de la contamination dans l'installation (colmatage des filtres à Très Haute Efficacité), le second porte plus spécifiquement sur le bilan radiatif de l'incendie et ce à travers les propriétés optiques des particules produites. Ce travail se focalise plus particulièrement sur les flammes de diffusion représentatives d'un incendie. Il vise à quantifier les émissions de suies produites et à apporter des informations sur les caractéristiques dimensionnelles et morphologiques des particules émises. Un dispositif expérimental a été mis en œuvre au cours de cette étude et divers combustibles ont été étudiés. Les résultats expérimentaux seront présentés en fonction d'un paramètre pertinent, quantifiant la ventilation du foyer : la richesse, et une réflexion sur l'influence de ce paramètre sera détaillée dans la présente étude.

DESCRIPTION GENERALE DE L'ETUDE

Cette étude vise à caractériser les agrégats de suie émis lors d'un incendie afin d'apporter des paramètres d'entrée utilisables à la fois dans les modèles de comportement des dispositifs de confinement et dans la modélisation des incendies. La première phase de ce travail a fourni des caractéristiques morphologiques et granulométriques pour les modèles de colmatage des filtres THE. La granulométrie des particules a été établie à l'aide d'un SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer TSI 3936). La morphologie des suies (cf. Figure 1) se définit à partir d'une relation fractale liant, par l'intermédiaire de la dimension fractale D_f et du préfacteur k_f , le nombre de particules primaires N_{pp} composant l'agrégat à deux diamètres caractéristiques, le diamètre des particules primaires D_{pp} et le diamètre de giration D_g .

$$N_{pp} = k_f \cdot \left(\frac{D_g}{D_{pp}} \right)^{D_f}$$

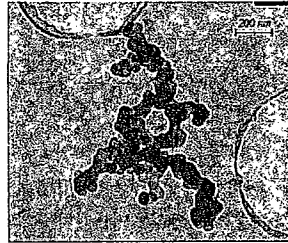


Figure 1 : Cliché de microscopie électronique d'un agrégat de suie

DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Le dispositif expérimental, présenté sur la Figure 2, est composé d'un foyer de 1 m^3 , surmonté d'une ligne de ventilation. Le débit de ventilation, déterminé à l'aide de diaphragmes, est compris entre 50 et $500 \text{ m}^3/\text{h}$ et il impose la richesse globale (Φ) dans le foyer. La richesse globale caractérise le mode de combustion, elle est définie comme étant le rapport entre le ratio de la masse de combustible ($m_{\text{combustible}}$) sur la masse d'air (m_{air}) utilisées au cours d'une expérience sur ce même ratio dans des conditions stœchiométriques.

$$\Phi = \frac{\left(\frac{m_{\text{combustible}}}{m_{\text{air}}} \right)_{\text{expérience}}}{\left(\frac{m_{\text{combustible}}}{m_{\text{air}}} \right)_{\text{stoechio}}}$$

Dans la présente étude les richesses globales, très inférieures à 1, soulignent une réaction pauvre en combustible et un foyer sur-ventilé. Trois combustibles ont été étudiés sur cette installation, un gaz : l'acétylène, un liquide : le toluène et un solide : le PolyMéthacrylate de Méthyle (PMMA).

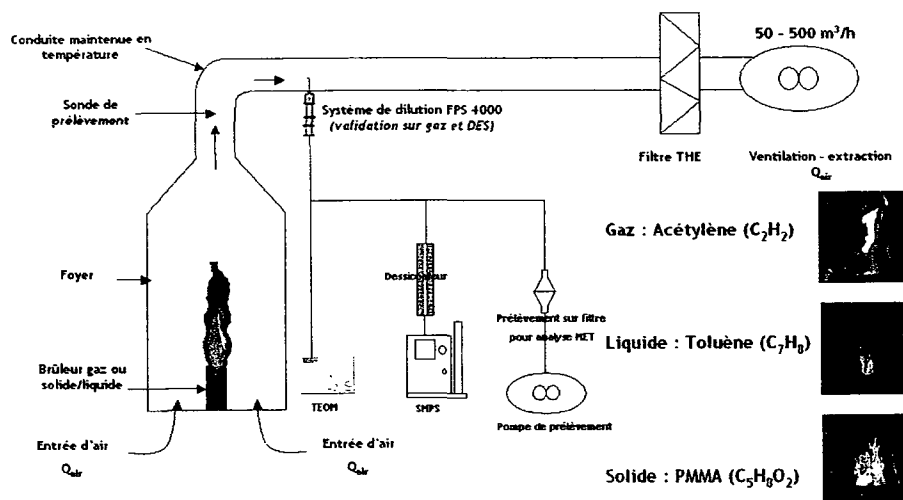


Figure 2 : Schéma descriptif du dispositif expérimental BANCO

L'échantillonnage de l'aérosol est assuré à l'aide d'un prélèvement isocinétique et d'un système de dilution. Les agrégats sont caractérisés en termes de concentration massique à l'aide d'un TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) et de granulométrie à l'aide d'un SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer). La morphologie est déterminée en effectuant des prélèvements sur filtres "nucléopore" analysés en microscopie électronique par transmission (Ouf *et al.*, 2005a).

RESULTATS EXPERIMENTAUX

1. Facteur d'émission de suie des différents combustibles

Une information pertinente afin de quantifier la propension d'un combustible à produire des suies est leur facteur d'émission. Celui-ci est défini comme étant le rapport entre le débit massique de suie et le débit massique de combustible au cours de l'expérience. Le débit massique de combustible a été déterminé à l'aide d'une balance de précision tandis que le débit massique de suie a été mesuré à l'aide de la microbalance TEOM. La *Figure 3* présente l'évolution, en fonction de la richesse, du facteur d'émission et du nombre d'agrégats produits par heure pour les différents combustibles utilisés. On retrouve ainsi, pour l'ensemble des combustibles, des facteurs d'émission cohérents avec les données issues de la littérature et obtenus pour des conditions de sur-ventilation du foyer (Tewarson, 2002). La nature du combustible joue évidemment un rôle fondamental ; cependant, l'influence de la richesse sur le facteur d'émission apparaît peu notable. Les comportements contradictoires des combustibles étudiés s'avèrent en revanche être d'un intérêt particulier et ce point sera discuté par la suite. Le nombre d'agrégats produits par heure est quant à lui plus sensible à la richesse globale et ce quel que soit le combustible, une augmentation de cette richesse réduisant la production globale en nombre d'agrégats.

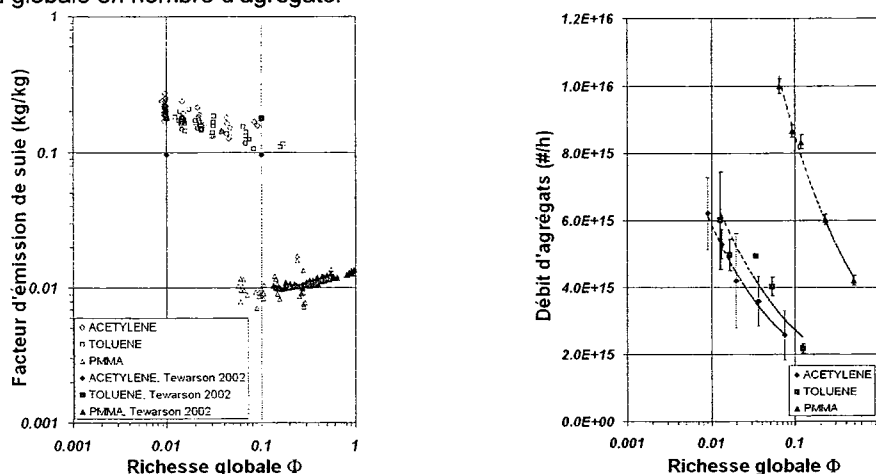


Figure 3 : Facteur d'émission et production en nombre d'agrégats en fonction de la richesse globale

2. Granulométrie et morphologie des particules de suie

La *Figure 4* présente d'une part, la fonction de distribution du diamètre des particules primaires, d'autre part, l'évolution des diamètres médians des particules primaires d'acétylène, de toluène, de PMMA et d'un mélange LEXAN-PMMA en fonction de la richesse. A travers la fonction de densité de probabilité du diamètre des particules primaires, il apparaît que, quelles que soient la nature du combustible et la richesse, une distribution gaussienne, en accord avec les modèles de formation des suies (Haynes et Wagner, 1981), représente de manière tout à fait acceptable la distribution de diamètre des particules primaires. Le diamètre des particules primaires dépend logiquement de la nature du combustible ; cependant, la richesse joue elle aussi un rôle fondamental. Ainsi une augmentation de cette richesse entraîne, pour la majeure partie des combustibles, une augmentation du diamètre des particules primaires. Cet accroissement de la taille des particules primaires peut s'expliquer par le fait qu'une augmentation de la richesse entraîne une diminution de la dilution dans la flamme, la quantité d'atomes de carbone disponibles afin de former des particules primaires est alors plus importante.

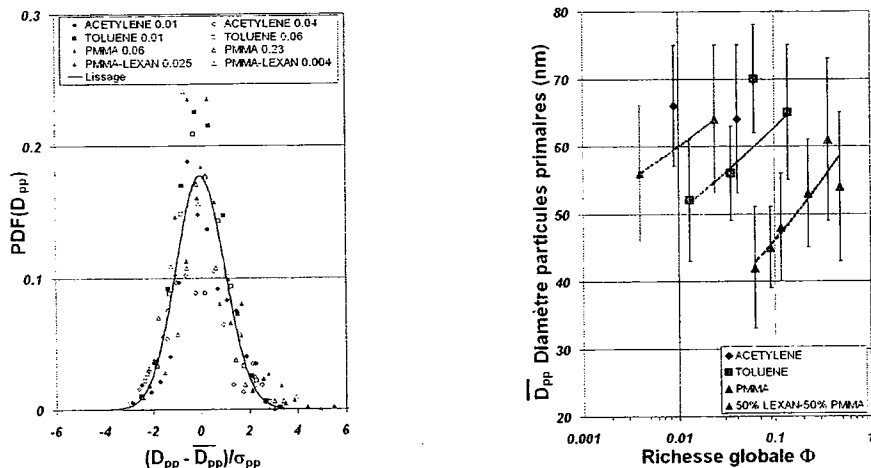


Figure 4 : Fonction de densité de probabilité du diamètre des particules primaires et évolution du diamètre médian des particules primaires en fonction de la richesse

La Figure 5 présente les distributions granulométriques en diamètre de mobilité électrique pour les agrégats de suie d'acétylène, de toluène et de PMMA ainsi que l'évolution du diamètre médian de mobilité électrique de ces agrégats en fonction de la richesse globale. Les agrégats présentent, sur la Figure 5, des distributions en taille largement polydispersées, allant du diamètre des particules primaires à près d'un micromètre. Une fois encore la nature du combustible joue un rôle notable sur la taille et sur la forme de la distribution granulométrique des agrégats.

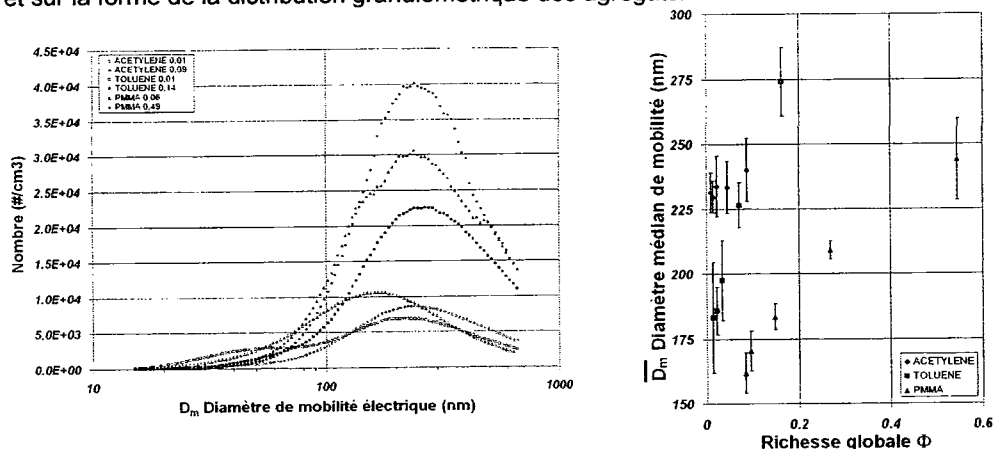


Figure 5 : Distribution granulométrique des agrégats et évolution de leur diamètre médian de mobilité électrique en fonction de la richesse globale

La richesse joue aussi un rôle prépondérant sur le diamètre médian des agrégats : ainsi, lorsqu'elle augmente le diamètre médian des agrégats augmente lui aussi sensiblement. Si à première vue l'augmentation de la taille des particules primaires et des agrégats semble logique, il convient de remarquer que, selon Wu et Friedlander (1993), cette augmentation conjointe est contradictoire. Ainsi la formation des agrégats de suie étant régie par les phénomènes de diffusion (Witten et Sander, 1981), une augmentation de la taille des particules primaires engendre donc, à fraction volumique de particules primaires constante, une diminution de la taille des agrégats. L'hypothèse d'une agglomération prépondérante des agrégats en sortie de flamme lorsque la richesse augmente (le temps de résidence augmente lorsque la richesse diminue) n'est donc pas à écarter. La Figure 6 présente l'évolution de la dimension fractale et du préfacteur en fonction de la richesse globale. Aucune influence notable de la richesse sur la morphologie des agrégats n'a été constatée. De plus, la nature des combustibles n'induit que peu d'influence sur la structure des suies produites ($D_f = 1,78 \pm 0,15$ et $k_f = 2,44 \pm 0,82$), les mécanismes de formation des suies étant toujours gouvernés par la diffusion. Cette remarque apparaît cependant plus nuancée si l'on considère les mélanges de

combustibles (50% PMMA-50% LEXAN) pour lesquels les suies présentent une structure moins compacte ($D_f \approx 1,6$ et $k_f \approx 3,3$).

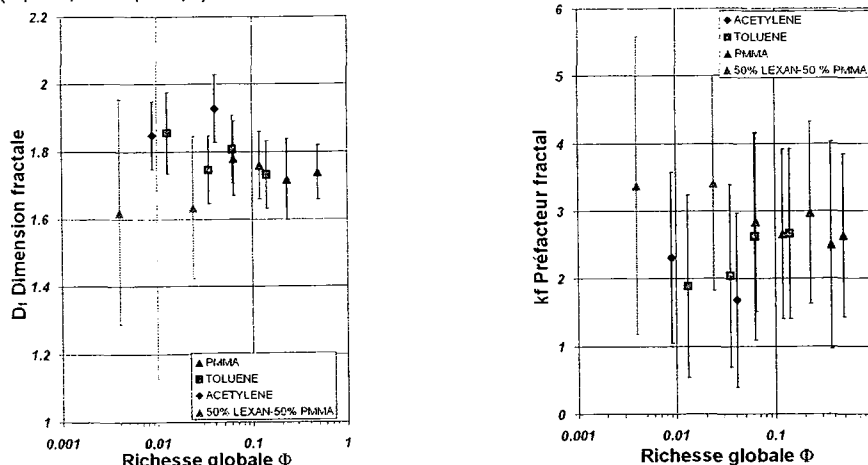


Figure 6 : Dimension fractale D_f et préfacteur k_f des suies en fonction de la richesse

DISCUSSION SUR L'INFLUENCE DE LA RICHESSE

A partir des résultats expérimentaux, il semble donc que la richesse ait une influence significative sur le facteur d'émission et sur la taille des agrégats. A l'inverse cette même richesse ne présente que peu d'influence sur la morphologie des suies produites. L'ensemble de ces informations permet de déterminer l'influence réelle de la richesse sur la nature et la structure des agrégats formés. La Figure 7 présente ainsi les fonctions de densité de probabilité du nombre de particules primaires composant les agrégats de suie de toluène et de PMMA et ce pour trois richesses distinctes. Ce nombre de particules primaires apparaît alors indépendamment de la richesse, les agrégats comportant donc constamment le même nombre moyen de particules primaires. L'hypothèse d'agglomération prédominante des suies dans le foyer lorsque la richesse augmente est alors à écarter. En effet un tel phénomène, s'il se produit, engendre une modification du nombre de particules primaires composant un agrégat et semble ici en désaccord avec les résultats présentés sur la Figure 7.

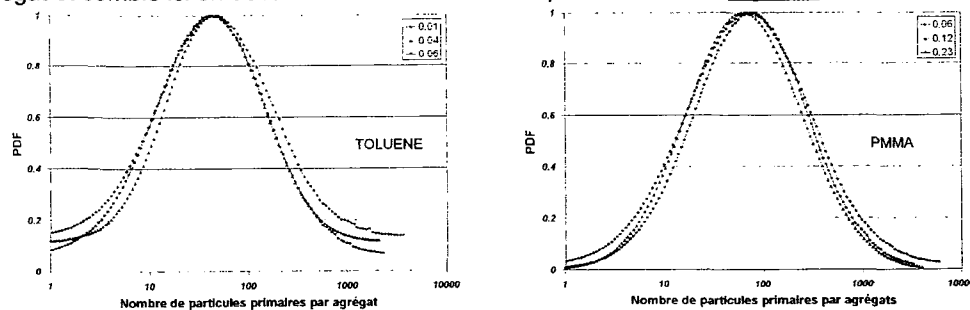


Figure 7 : Fonction de densité de probabilité du nombre de particules primaires par agrégats pour le toluène et le PMMA pour trois richesses globales

La Figure 8 présente les fonctions de densité de probabilité de la masse des suies de toluène et PMMA pour trois richesses. Afin d'effectuer ce calcul, la masse volumique des particules primaires de suie produites par les trois combustibles a été déterminée à l'aide d'une méthode normalisée présentée dans les travaux de Ouf *et al.* (2005b). La masse des agrégats augmente donc avec la richesse. Ce résultat s'explique par le fait que le nombre de particules primaires composant les agrégats n'évolue pas avec la richesse (Figure 7), tandis que leur diamètre augmente significativement (Figure 5). Cette augmentation de la masse des agrégats permet de comprendre l'évolution du facteur d'émission en fonction de la richesse. Les comportements opposés des différents combustibles s'expliquent alors :

- l'augmentation du facteur d'émission pour le PMMA s'explique par la production d'agrégats de masse plus importante lorsque la richesse augmente,

- la diminution du facteur d'émission de l'acétylène et du toluène en fonction de la richesse s'explique par l'augmentation moins prononcée de la masse des agrégats en fonction de la richesse (Figure 8) qui est compensée par la diminution significative du nombre d'agrégats produits (Figure 3).

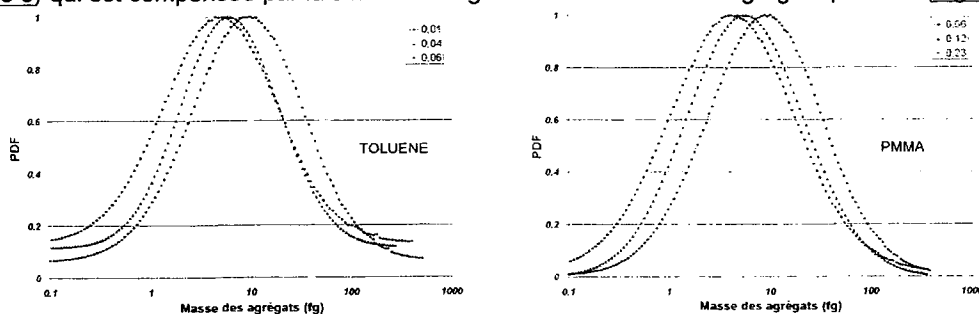


Figure 8 : Evolution de la distribution en masse des agrégats de suie de toluène et de PMMA en fonction de la richesse globale

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Au cours de ce travail un dispositif expérimental a été développé permettant une production maîtrisée d'aérosols de combustion. Une étude comparative des propriétés des suies produites par différents combustibles (acétylène, toluène et PMMA) a été menée et a mis en évidence l'influence de la richesse sur la granulométrie des particules primaires et des agrégats de suie, avec cependant une morphologie semblable entre les combustibles. Les agrégats de suie présentent ainsi des dimensions fractales D_f comprises entre 1,62 et 1,93, des préfacteurs k_f compris entre 1,68 et 3,41, des diamètres de particules primaires compris entre 40 et 70 nm, des diamètres de mobilité électrique s'étalant de 50 à 1000 nm et des facteurs d'émission compris entre 1 et 20 %. Une réflexion a été menée sur l'influence des conditions de production des suies. Ainsi, l'augmentation de la richesse induit :

- peu d'influence sur les caractéristiques morphologiques des agrégats : D_f , k_f et N_{pp} ,
- une augmentation de la taille et de la masse des particules primaires et des agrégats,
- une diminution du nombre total d'agrégats produits,
- une faible modification du facteur d'émission de suie.

La faible influence de la richesse sur la morphologie des suies dénote le faible effet de cette richesse sur le processus d'agrégation dans la flamme. La principale explication vient de l'effet conjugué de la richesse sur la fraction volumique et le diamètre des particules primaires. L'augmentation de la fraction volumique de suie dans la flamme compense ainsi l'effet réducteur de l'augmentation de la taille des particules primaires sur le phénomène d'agrégation dans la flamme. Le paramètre clé régissant la formation des suies dans la flamme reste donc bien le diamètre des particules primaires et la fraction volumique de suies dans la flamme.

Les perspectives de ce travail sont nombreuses ; en effet, la présente étude ne concerne que des conditions de sur-ventilation du foyer ($\Phi < 1$). Afin de comprendre pleinement les mécanismes de production des suies dans les incendies, il convient alors d'étendre la gamme de cette étude au cas du régime de sous-ventilation ($\Phi > 1$). Le second axe de perspectives porte sur la transposition des essais analytiques à une échelle représentative d'incendies. Un travail relatif à la prise en compte de l'effet d'échelle sur le facteur d'émission et la structure des particules de suie reste encore à être mené.

REFERENCES

- Haynes B.S. et Wagner H. GG. (1981) Soot formation, *Prog. Energ. Combust. Sci.*, **7**, 229-273
- Ouf F.X., Coursil C., Gehin E. et Vendel J. (2005a) Comparaison de différentes méthodes de détermination des caractéristiques fractales d'agrégats de suie d'acétylène. *21^{ème} 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^{ème} Congrès Français sur les Aérosols*
- Tewarson A. (2002) Generation of heat and chemical compounds in fire, *The SFPE handbook of fire protection engineering*, 3d edition, ISBN 087765-451-4
- Witten T. A. et Sander C. M. (1981) Diffusion limited aggregation, a kinetic critical phenomenon *Phys. Rev. Letters* **47** 1400-1403
- Wu M. K. et Friedlander S. K. (1993) Enhanced power law agglomerate growth in the free molecule regime *J. Aerosol Sci.* **24** 273-282

GRANULOMETRIE DE MILIEUX DENSES PAR LASER FEMTOSECONDE

M.Barthelemy*(1), L.Hespel*(1),G.Gréhan*(2)

(1)ONERA DOTA BP 4025 2, avenue Edouard Belin 31055 Toulouse CEDEX 4,

(2)CORIA INSA Université de Rouen avenue de l'université BP12, 76801 Saint Etienne du Rouvray

TITLE : Granulometry of optically denses media by using femtosecond Laser

ABSTRACT

The current optical techniques of granulometry characterization are strongly limited in dense media – for example in denses sprays encountered in direct injection processes and in thrust nozzle, but also in bio-medical imaging- . Indeed, when the optical density increases , multiple scattering becomes dominant. So we aim at overcoming this difficulty by using femtosecond pulses. Time resolved detection at this scale permits to separate ballistic photons –containing information- from the scattered ones.

Our approach consists first in model direct problem with a Monte Carlo technique using the temporal Lorenz Mie theory at different wavelengths. After dimensioning the corresponding experiment, the inverse problem resolution (turbidimetry) to obtain granulometry will be possible.

RESUME

Les techniques actuelles de granulométrie sont rapidement limitées lorsque la densité optique augmente – par exemple en sortie de tuyère ou dans les processus d'injection directe, mais aussi en imagerie médicale-.

En effet, la diffusion multiple augmente avec l'épaisseur optique. La difficulté peut être surmontée par l'utilisation d'impulsions femtoseconde. Une détection résolue en temps permet la discrimination des photons balistiques, sources d'information.

Notre approche consiste d'une part à modéliser le problème direct par une technique de Monte Carlo dans le cadre de la théorie de Lorenz Mie temporelle. Ce modèle va permettre une analyse des aspects temporels du problème, mais aussi le dimensionnement de la manipulation correspondante. La mesure d'extinction multi spectrale (turbidimétrie) permettra , par inversion, d'accéder directement à la granulométrie de tels milieux.

- [1]C. Calba , C. Rozé , T. Girasole, L. Meès (march2006) Monte carlo simulation of the interaction between an ultra-short pulse and a strongly scattering medium: the case of large particles *Optics communications*
- [2]C.Roze , T.Girasole, L.Mees, G.Grehan, L.HespeL, A.Delfour (May 2003) Interaction between ultra short pulses and a dense scattering medium by Monte Carlo simulation: consideration of particle size effect. *Optics communications*, Vol 220, Issue 4-6 , p 237-245
- [3]L.HespeL, A. Delfour (December 2000) Mie light scattering granulometer with adaptative numerical filtering.I. Theory . *Applied optics* Vol. 39, No 36, 6897-6917
- [4]M. Paciaroni, M. Linne, *Applied Optics* 43 (26) 5100-5109

0.Introduction

L'étude de l'interaction entre lumière et milieux hétérogènes est répandue dans de nombreux processus industriels dont le secteur aéronautique . Ce thème vise à développer des outils théoriques et expérimentaux pour le diagnostic optique de matériaux ou de jets. Ainsi le DOTA dispose d'un logiciel capable d'effectuer deux types d'inversion statistique pour remonter à la granulométrie :

- soit des coefficients d'extinction en balayant spectralement la source (turbidimétrie appliquée à la transmission spectrale). Pour des objets dont les dimension sont de l'ordre de la longueur d'onde
- soit des données de néphéLométrie , pour des objets dont la taille peut être beaucoup plus grande que la longueur d'onde.

Cependant, lorsque la concentration en particule et/ou les dimensions du nuage augmentent, aussi bien en turbidimétrie qu'en néphéLométrie, le signal est brouillé par la multidiffusion. Ainsi pour des milieux optiquement épais, où le régime multidiffusif est prépondérant, l'inversion n'est possible que si l'on est capable de sélectionner les 'photons' qui atteignent le détecteur directement (photons balistiques en turbidimétrie) ou après une seule interaction (diffusion simple en néphéLométrie). Pour un milieu en évolution rapide (comme en sortie de tuyère), cette sélection peut être temporelle si la source est un laser pulsé femto-seconde.

Dans un premier temps, nos travaux se concentrent sur l'analyse directe du problème. Après une validation par une approche analytique simplifiée, l'outil développé sera utilisé pour : d'une part l'analyse temporelle de la physique du problème, et d'autre part , le dimensionnement du protocole expérimental.

Notre approche consiste donc à intégrer dans un code de Monte Carlo résolu en temps, la réponse temporelle d'un centre diffuseur sphérique (de diamètre D de l'ordre de la longueur d'onde) à une impulsion ultra-brève (de longueur de cohérence L_c) gaussienne.

1. Problème direct local

On cherche à obtenir la fonction de phase temporelle d'un centre diffuseur sphérique à une impulsion gaussienne.

Le champ incident s'écrit :

$$X_i(\mathbf{r}, \tau) = X_0 X_i^s(\mathbf{r}) \exp(2 i \pi \nu_0 \tau) g(\tau) \quad \text{avec} \quad \tau = t - \frac{z}{c}, \quad \mathbf{X} = \mathbf{E} \text{ ou } \mathbf{H}$$

et le champ diffusé par la particule

$$X_i^p(\mathbf{r}, \tau) = \overline{TF}^{-1} \left[G(\nu - \nu_0) \times X_i^{cw}(\mathbf{r}, \nu) \right] \quad \text{si on note} \quad g(\tau) \leftarrow TF \rightarrow G(\nu)$$

A chaque composante harmonique de l'impulsion incidente correspond un calcul de Lorenz Mie . La transformée de Fourier inverse donne la réponse temporelle.

On peut dissocier deux classes de particules par leur type de réponse. En effet, si l'on note L_c la longueur de cohérence de l'impulsion et D le diamètre de la particule considérée, la diffusion est [1],[2]:

- instantanée si $L_c > D$, -petites particules-
- temporelle si $L_c < D$ -grosses particules-. Les modes de diffusions se séparent temporellement, on observe alors un train d'impulsions en sortie de chaque diffuseur

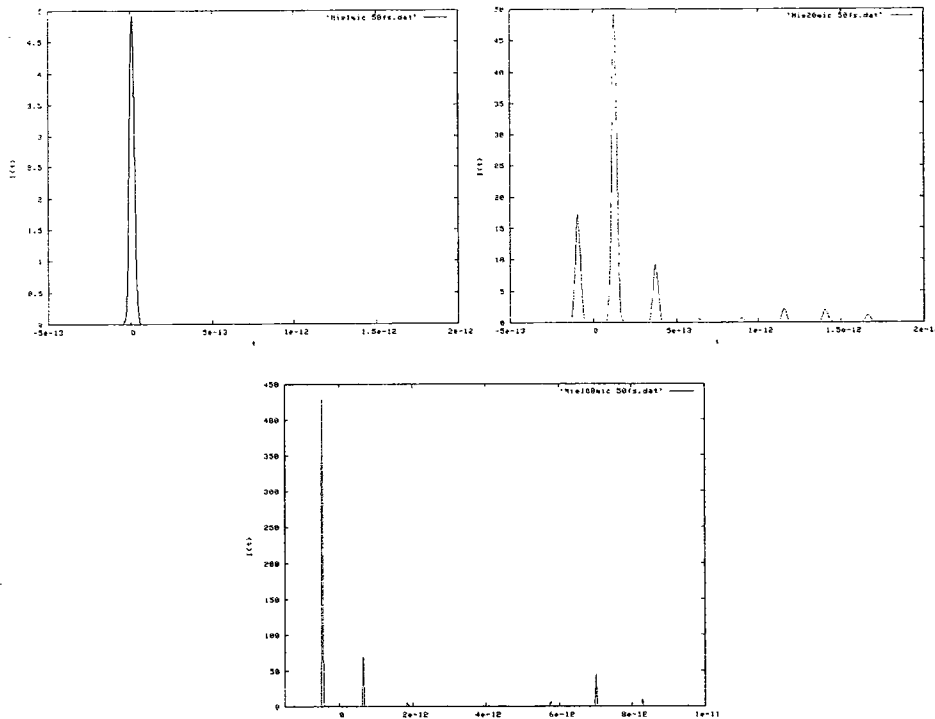


Fig. 1. Réponse temporelle(en champs lointain) d'une particule de $D= 1\mu\text{m}$ (en haut à gauche) , $D=50\mu\text{m}$ (en haut à droite) et $D= 100\mu\text{m}$ (en bas) à une impulsion de 50fs de largeur temporelle pour un angle de 90° de détection. Le temps 0 est le temps correspondant au centre de la particule en espace libre.

Les écarts temporels augmentent avec la taille car le temps de vol intra particule augmente . Le choix de la fenêtre temporelle de détection dépendra donc du type de milieu étudié.

La théorie de Debye (développement des coefficients de diffusion de Mie en série de Debye) permet l'interprétation géométrique de ces pics[1].

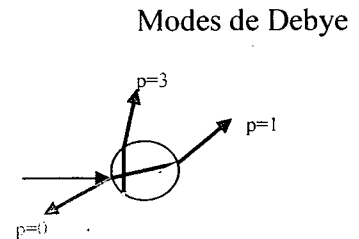
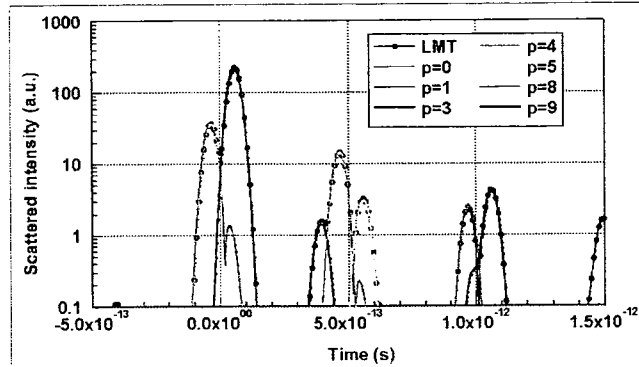
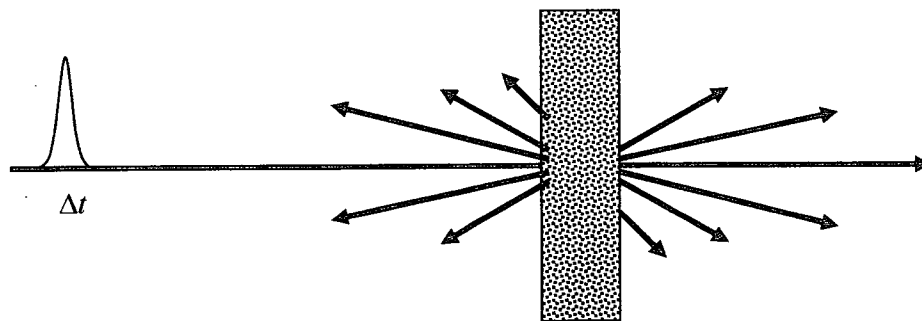


Fig2. Superposition d'un calcul de Debye et de Mie pour une particule de 100 μm de diamètre et un impulsion incidente de 50fs

2.Problème direct global



milieu diffusant

- épaisseur physique L
- Diamètre et indice des particules d et n
- Concentration en particule N (m-3)

La résolution du problème global reviendrait à résoudre l'équation de transfert radiatif temporelle suivante à tous les ordres de diffusion :

$$\frac{1}{c} \frac{\partial I(\vec{x}, \vec{\Omega}, t)}{\partial t} + \frac{\partial I(\vec{x}, \vec{\Omega}, t)}{\partial x} = -(k + s)I(\vec{x}, \vec{\Omega}, t) + s \int_{\Omega} I(\vec{x}, \vec{\Omega}', t) f(\vec{\Omega}', \vec{\Omega}, t) d\Omega'$$

avec k et s les coefficients respectifs d'absorption et de diffusion et $\vec{\Omega}$ la direction de diffusion.

La prise en compte de l'aspect temporel de la diffusion dans le code de Monte Carlo se caractérise en deux parties :

- i. Pour les petites particules : une technique de réjection traditionnelle s'applique sur la fonction de phase pour obtenir l'angle de diffusion à chaque événement.
Pour les grosses particules : technique de double réjection sur la fonction de phase temporelle pour obtenir un temps -retard- et un angle de diffusion.
- ii. la prise en compte du temps de vol inter particule -centre à centre-.

La réponse de chaque type de diffuseur doit être pré calculée pour plusieurs tailles de particules -correspondant à la granulométrie du milieu étudié- et interpolée angulairement. Le choix du type de réponse de Lorenz Mie dépendra donc du rapport Lc/D du système étudié.

La simulation du problème direct permet d'obtenir la répartition d'intensité transmise pour une configuration donnée. Ainsi, cette étude préliminaire permettra le dimensionnement de la manipulation.

3.Perspectives

Pour déterminer la granulométrie d'un milieu, on dispose d'un code d'inversion basé sur une méthode de turbidimétrie[3].

La loi de Beer Lambert s'écrit :

$$\frac{I_{transmise}}{I_{incidente}} = e^{-k_{ext}.L}$$

avec l'épaisseur optique d'un milieu de concentration N :

$$e.o. = -k_{ext}.L = -N.C_{ext}(d, n, \lambda).L$$

Le coefficient d'extinction s'écrit en fonction de la distribution en taille $f(D)$ du milieu et de la section efficace d'extinction

$$C_{ext}(d, n, \lambda) = \int_0^{\infty} f(D)\sigma_{ext}(D/\lambda, n(\lambda)).dD$$

Ainsi, la connaissance des propriétés d'extinction d'un milieu permet de remonter à sa granulométrie. Les problèmes induits par le bruit de mesure seront surmontés par un filtrage numérique adaptatif qui nécessite une mesure d'extinction multi spectrale. La manipulation envisagée doit donc être dotée d'une fenêtre temporelle suffisamment étroite pour la ségrégation des photons balistiques[4] et d'une source accordable en fréquence .

Détermination de la granulométrie des aérosols dans les émissions canalisées : cas d'une cimenterie.

I Fraboulet*(1), X. Chaucherie (2), F. Gouriou (3), B. Graziotin (2), N. Karoski (1), H. Thille(4),
O. Le Bihan (1)

(1) Direction des risques chroniques, Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques,
Parc Technologique ALATA, BP 2, 60550 Verneuil-en-Halatte,

(2) SECHAUD Environnement (LECES) BP 40223 – 57282 Maizières-Lès-Metz,

(3) CERTAM, 1 rue J. Fourier, Technopôle du Madrillet, 76800 Saint-Etienne du Rouvray,

(4) Holcim (France) S.A.S., 192, avenue Charles de Gaulle 2200 Neuilly-sur-Seine

TITLE

Aerosol size distribution determination from stack emissions: the case of a cement plant.

ABSTRACT

Monitoring emissions of particles with a diameter smaller than 10 µm (PM10) has become of growing interest. However, measuring such particles is rather difficult, it appears as a result necessary to develop and assess measurement methods for the monitoring of PM10 from stack and fugitive emissions. The aim of the GAEC program [Granulométrie des Aérosols dans les Emissions Canalisées : Aerosol size distribution from stack emissions] is double: developing monitoring methods and improving knowledge on fine particulate stack emissions. Three institutes are involved in the program: Séchaud Environnement (formerly LECES), INERIS and CERTAM.

This paper concerns the results obtained from the first two steps of the program:

- a state of the art of the available techniques,
- the evaluation of the selected techniques during a sampling campaign at a cement plant.

RESUME

Face à l'intérêt grandissant concernant les émissions de particules de diamètre inférieur à 10 µm et aux difficultés rencontrées lors de la mesure de ces particules, des développements métrologiques et l'évaluation des méthodes de mesurage en émissions canalisées et diffuses sont nécessaires. Le projet GAEC [Granulométrie des Aérosols dans les Emissions Canalisées] s'inscrit dans ce double contexte de développement métrologique et d'amélioration des connaissances sur les sources d'émission de particules fines. Il porte plus précisément sur la «Détermination de la granulométrie des aérosols dans les émissions industrielles canalisées : PM10, PM_{2,5}, PM₁ et PM_{0,1}». Il réunit trois partenaires : Séchaud Environnement (anciennement LECES), INERIS et CERTAM.

L'intervention proposée ici a pour objectif de rapporter les résultats obtenus lors des deux premières phases du projet, à savoir :

- une étude bibliographique de l'état de l'art sur les techniques de mesure disponibles
- la mise en œuvre des techniques retenues lors d'une campagne de mesure menée sur une cimenterie.

1. INTRODUCTION

Afin de répondre à l'intérêt grandissant concernant les émissions de particules de diamètre inférieur à 10 µm et aux difficultés rencontrées lors de la mesure de ces particules, un cadre normatif a été mis en place : un groupe de travail international s'est constitué en 2003 sur le sujet de la mesure de PM₁₀ et PM_{2,5} à l'émission des sources fixes (ISO TC 146 SC1 GT 20). Le projet GAEC [Granulométrie des Aérosols dans les Emissions Canalisées] objet de cette communication, s'inscrit dans un double contexte de développement métrologique et d'amélioration des connaissances sur les sources d'émission de particules fines. Financée par le MEDD et l'ADEME (convention ADEME n° 02-74-C0018), cette étude porte plus précisément sur la « Détermination de la granulométrie des aérosols dans les émissions industrielles canalisées : PM₁₀, PM_{2,5}, PM₁ et PM_{0,1} ». Elle réunit trois partenaires : Séchaud Environnement (anciennement LECES), INERIS et CERTAM.

Les objectifs généraux du projet GAEC sont au nombre de quatre :

- définir une méthodologie de mesurage de la granulométrie des aérosols dans les émissions canalisées,
- tester des techniques de mesurage manuelles et automatiques permettant de couvrir un large spectre granulométrique : de 0,03 à 10 µm,
- étudier, sur 3 émetteurs industriels, les résultats obtenus par les différentes techniques retenues,
- soutenir par des données expérimentales les travaux du groupe de normalisation ISO TC 146 SC1 GT 20 relatif aux PM à l'émission.

Une première phase a permis la réalisation d'un état de l'art sur l'enjeu sanitaire des particules et les techniques de mesurage disponibles ; un certain nombre de techniques ont alors été sélectionnées pour être mises en œuvre et testées sur le terrain lors d'une première campagne de mesurage (phase 2). Les objectifs de cette première campagne ont été d'évaluer l'aspect opérationnel des appareillages ainsi que de vérifier leur cohérence en terme de métrologie. Il ne s'agissait en aucun cas de démontrer leur équivalence, ce qui nécessiterait un nombre plus important d'essais et d'appareils.

2. CONDITIONS EXPERIMENTALES

2.1 SITE DE MESURE

La première campagne a eu lieu en cimenterie. La fabrication du ciment comprend principalement 4 étapes :

- Extraction des matières premières :
Les matières premières qui entrent dans la fabrication du ciment, essentiellement le calcaire et l'argile, sont extraites de carrière. D'autres produits sont utilisés pour corriger les teneurs en silice (sables de fonderie), en fer (oxydes de fer) et éventuellement en alumine (boues d'alumine).
- Séchage et broyage des matières premières :
Pour favoriser les réactions chimiques ultérieures, ces matières sont séchées et broyées très finement pour en faire une farine crue.
- Cuisson :
La cuisson du mélange cru a lieu dans un four rotatif.
Au cours de la cuisson, les réactions chimiques suivantes se produisent :
 - le calcaire est décarbonaté (formation de chaux),
 - l'argile est dissocié (silice et alumine) et se combine avec la chaux pour former des silicates et aluminates de chaux constituant le clinker.
- Préparation pour passer du clinker au ciment.
Le clinker est ensuite stocké puis subit différentes opérations (broyage, ajout de différents éléments comme le gypse ou d'autres minéraux) pour en faire du ciment.

Les mesures ont été réalisées sur la cheminée principale d'évacuation des fumées d'un des fours après dépoussiérage par électrofiltre ; ce four fonctionne par voie semi sèche (grille LEPOL à chaîne)

2.2 TECHNIQUES MISES EN OEUVRE

Les techniques sélectionnées pour cette campagne sont présentées ci-dessous :

- Méthodes manuelles
 - Un impacteur en cascade JOHNAS (Hermans, 2001)
 - Un impacteur en cascade DEKATI
 - La méthode de référence TSP
- Méthodes automatiques : granulomètres
 - Un impacteur électrique ELPI avec diluteur préleveur FPS (avec tête de prélèvement PM2,5) ; taux de dilution 9
 - Un analyseur de mobilité SMPS avec diluteur préleveur FPS et diluteur PALAS VKL10 (avec tête de prélèvement PM2,5), taux de dilution 90
- Méthodes automatiques : massiques
 - Une microbalance TEOM 7000 (version PM2,5)
 - Une microbalance TEOM 1105 avec préleveur diluteur FPS (avec tête de prélèvement PM2,5)

3. RESULTATS ET DISCUSSION

3.1 METHODES MANUELLES

Les objectifs de la comparaison des méthodes manuelles étaient d'évaluer l'aspect opérationnel des impacteurs ainsi que de vérifier la cohérence des résultats fournis. Il ne s'agissait pas de démontrer leur équivalence, ce qui nécessiterait un nombre plus important d'essais et d'appareils permettant de réaliser une étude statistique des résultats.

D'un point de vue opérationnel, durant la campagne, il n'y a pas eu de problème relatif à la mise en œuvre des deux impacteurs, contrairement à ce qui avait été observé pour la génération précédente de ce type d'appareils. Les résultats bruts obtenus par les deux impacteurs et la méthode TSP ainsi que les répartitions par fraction sont présentés dans les deux tableaux suivants.

Tableau 1 : Résultats bruts méthodes manuelles

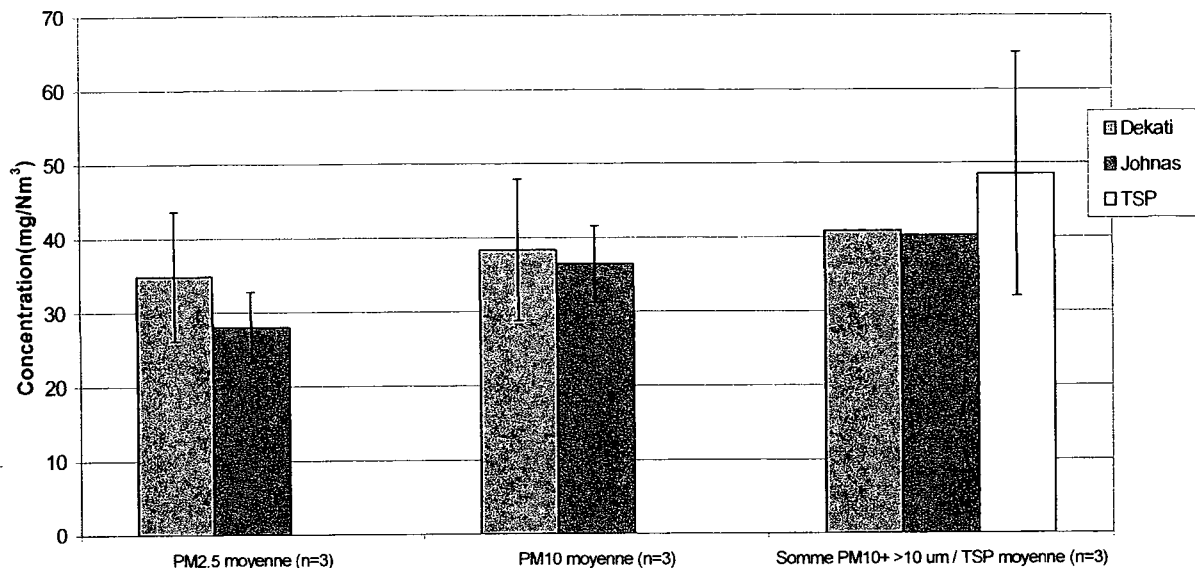
	Essai 1			Essai 2			Essai 3		
	DEKATI	JOHNAS	TSP	DEKATI	JOHNAS	TSP	DEKATI	JOHNAS	TSP
PM1 mg/m ³ *	26,4			34,9			29,3		
PM2,5 mg/m ³	31,5	19,4		39,8	38,8		33,4	25,8	
PM10 mg/m ³	35,3	28,1		43,3	49,9		37,3	32,4	
Total mg/m ³	36,7	31,9	43,8	47,1	54,8	56,6	39,8	35,0	45,2

* volume rapporté aux conditions normales de pressions et de température (t : 0°C, P : 1013 hPa)

Tableau 2 : Répartition (%) par fractions

	Essai 1		Essai 2		Essai 3	
	DEKATI	JOHNAS	DEKATI	JOHNAS	DEKATI	JOHNAS
PM1	72		74		74	
PM2,5	85	61	85	71	85	74
PM10	96	88	92	91	94	93

Figure 1 : Comparaison des résultats moyens obtenus avec les deux impacteurs et la méthode de référence

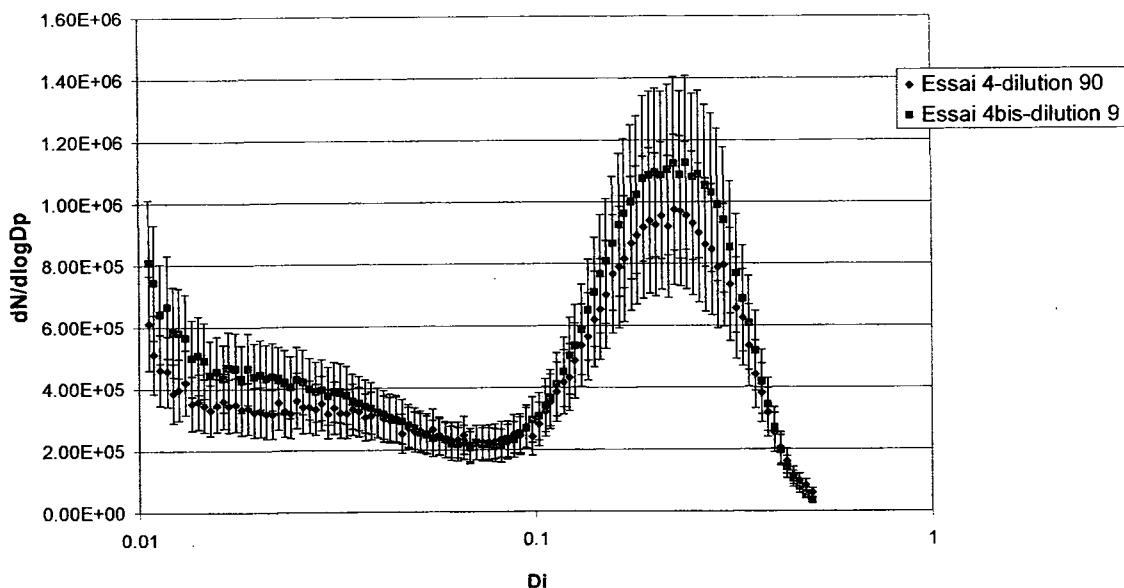


Pour les mesures PM_{10} et $PM_{2,5}$, sur la base des intervalles de confiance de répétabilité définis dans le projet de norme ISO, les résultats obtenus par les deux impacteurs peuvent être considérés comme comparables (Figure 1).

3.2 GRANULOMETRIE

La comparaison des granulométries obtenues par le SMPS à deux taux de dilution (9 et 90) différents a permis de montrer que la multiplication du taux de dilution par un facteur 10 n'entraîne pas de variation significative de la granulométrie, tout particulièrement, nous n'observons pas de transformation telle qu'un grossissement (Figure 2).

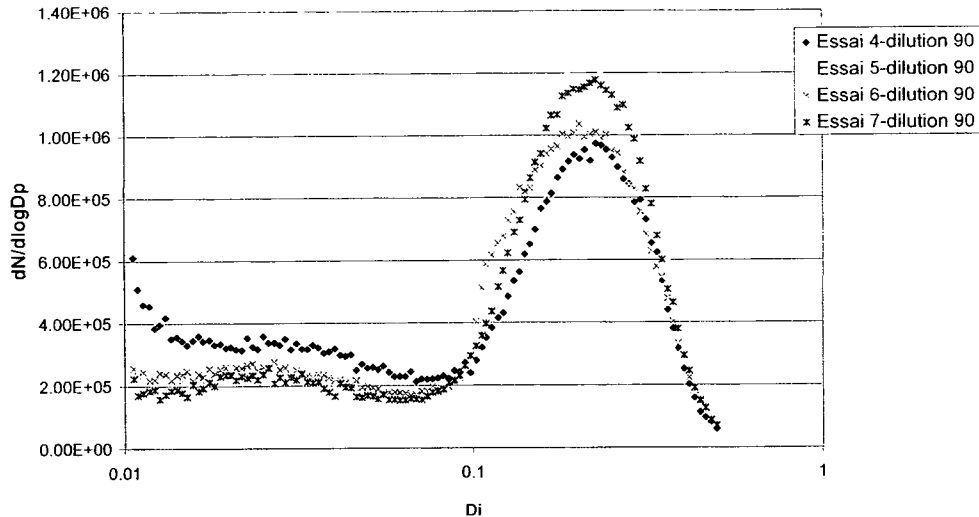
Figure 2 : Comparaison des granulométries obtenues par le SMPS à deux taux de dilution



Les granulométries obtenues par le SMPS au cours de la campagne sont très comparables, puisque le mode (D_p pour lequel $dN/d\log D_p$ est maximal) pour les quatre essais est situé vers 200 nm, et que

le $dN/d\log D_p$ max varie de $1.0 \text{ E}+6$ à $1.2 \text{ E}+6$ (Figure 3). La granulométrie de l'aérosol étant a priori fortement liée au régime du procédé, les résultats obtenus suggèrent que celui-ci était stable au cours des essais.

Figure 3 : Comparaison des granulométries obtenues par le SMPS



L'utilisation conjointe de l'ELPI et du SMPS pour mesurer la granulométrie des aérosols a été décrite précédemment (Keskinen et al, 1998 ; Ristimäki et al, 2002); si cette pratique a montré de bons résultats dans le cas de particules sphériques et dans une moindre mesure de particules non sphériques compactes, elle s'applique difficilement aux aérosols plus complexes tels que les agrégats de suie. Après évaluation des diamètres de Stokes mesurés par l'ELPI à différentes densités, il est possible de comparer les diamètres mesurés par l'ELPI et le SMPS. La méthode de comparaison utilisée ici, permet d'émettre l'hypothèse d'une valeur de densité de l'aérosol égale à 3 ; il est intéressant de souligner le fait que cette valeur est compatible avec la valeur de densité du produit fini obtenu par l'exploitant du site industriel.

3.3 METHODES AUTOMATIQUES MASSIQUES

Les mesures massiques automatiques ($n=4$) ont été réalisées avec les TEOMs d'une part et l'ELPI d'autre part. Les concentrations massiques obtenues par les méthodes automatiques sont du même ordre de grandeur, cependant nous avons noté que l'ELPI surestimait la détermination massique alors que les TEOMs ont tendance à la sous-estimer par rapport à la méthode gravimétrique.

En ce qui concerne le TEOM 7000, la mesure des $PM_{2.5}$ à l'émission constituait une première ; si une bonne cohérence a été démontrée dans le passé entre le TEOM 7000 et la méthode TSP pour la mesure des particules totales (Chaucherie et Gonnet, 2003), des essais supplémentaires sont nécessaires afin de pouvoir conclure sur la mesure des $PM_{2.5}$.

3.4 CONCLUSION

Cette campagne réalisée en cimenterie a constitué une étape très importante du projet GAEC. En effet, son objectif a été de mettre en œuvre, sur le terrain l'ensemble des instruments sélectionnés dans la première phase du projet.

En ce qui concerne les méthodes manuelles, les impacteurs DEKATI et JOHNAS ont montré de bonnes qualités opérationnelles et une bonne cohérence au niveau des mesures PM_{10} et $PM_{2.5}$. L'un et l'autre seront utilisés indifféremment pour la suite du projet.

S'agissant des méthodes automatiques, les résultats obtenus pour la détermination de la masse par les TEOMs et l'ELPI sont du même ordre de grandeur. La configuration $PM_{2.5}$ du TEOM7000 semble prometteuse ; cependant ses qualités de mise en œuvre doivent être confirmées.

En terme de granulométrie submicronique, le site a montré des caractéristiques très intéressantes avec une grande stabilité granulométrique (équivalence des granulométries d'heure en heure et

même d'un jour à l'autre), mais aussi en terme d'évolution avec des résultats très comparables après des dilutions d'un facteur dix et cent. La sonde de prélèvement et de dilution FPS atteint d'ores et déjà, pour un produit récent, un très bon niveau de maturité. Elle devrait se révéler un pré requis indispensable à la mise en œuvre des granulomètres.

Le couplage des granulomètres ELPI et SMPS s'est avéré très utile, d'une part parce qu'il facilite la validation des observations et d'autre part parce qu'il ouvre la voie à la détermination de la masse volumique du rejet particulaire.

REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient l'ADEME (Contrat 04-74-C0018), le Ministère de L'Ecologie et du Développement Durable (programme INERIS/DRC07) et la société HOLCIM.

REFERENCES

Chaucherie X et Gonnet, Mesure en temps réel des concentrations massiques de poussières à l'émission de sources fixes. CFA, 2003

ISO TC 146/SC 1 Stationary source emissions – Determination of PM10/PM2,5 primary particle mass concentration in flue gas

John AC, Kuhlbusch TAJ, Fissan H, Broker G, Geueke KJ, Development of a PM10/PM2.5 cascade impactor and in-stack measurements, *Aerosol Science and Technology*, 37(9) : 694-702, Sep 2003

Keskinen J, Virtanen A, Ahlvik P, Ntziachrstos L, Estimation of effective density of diesel particles, *Journal of Aerosol Science*, Volume 29, Supplement 2, Pages S1007-S1008, September 1998

Marjamaki M.; Keskinen J.; Chen D.-R.; Pui D.Y.H. Performance evaluation of the electrical low-pressure impactor (ELPI), *Journal of Aerosol Science*, Volume 31, Number 2, pp. 249-261(13), February 2000

Ristimaki J.; Virtanen A.; Marjamaki M.; Rostedt A.; Keskinen J, On-line measurement of size distribution and effective density of submicron aerosol particles, *Journal of Aerosol Science*, Volume 33, Number 11, pp. 1541-1557(17), November 2002,

Vincent, J. J. *Aerosol Science for Industrial Hygienists*. New York: Pergamon, 1995

MESURE DE LA SURFACE DES AEROSOLS ULTRAFINS : ETAT DES LIEUX ET PERSPECTIVES

Sébastien Bau^{*1,2}, Olivier Witschger¹, François Gensdarmes², Dominique Thomas³

1 — *Institut National de Recherche et de Sécurité
Laboratoire de Métrologie des Aérosols, Département Métrologie des Polluants
BP 27, 54501 Vandoeuvre, France*

2 — *Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire
Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols, Service d'Etudes et de Recherches en
Aérodispersion des polluants et en Confinement
BP 68, 91192 Gif-sur-Yvette, France*

3 — *Laboratoire des Sciences du Génie Chimique – Université Henri Poincaré
1, rue Grandville
BP 20451, 54001 Nancy Cedex, France*

courriel : sebastien.bau@inrs.fr

TITLE

Measurement of the surface area of ultrafine aerosols: state-of-art and perspectives.

ABSTRACT

Ultrafine aerosols are now considered to be a significant human health concern. In occupational health, they are considered as new health risk factors and the practice of occupational health and safety also faces many challenges. Some ultrafine particles are generated by natural processes. In the workplaces, many of the high energy activities have the potentials of producing ultrafine particles as one of the by-products. With the development of nanotechnology, many nanoparticles are purposely made for certain functions. A major challenge in evaluating human exposure posed by airborne nanoparticles is to find a set of suitable sampling and analytical methods. In particular it is necessary to consider surface area, instead of mass concentration. However, the means of measuring exposure to ultrafine aerosol surface area are not readily available. The objective of our research work is to evaluate and compare different new methods and instruments that could be used to characterize exposure to ultrafine aerosols.

RESUME

Les effets des aérosols ultrafins chez l'homme fait aujourd'hui l'objet de nombreux questionnements. Dans le domaine de la santé au travail, ils sont considérés comme un nouveau facteur de risque, ce qui soulève une problématique nouvelle de prévention. Les particules ultrafines peuvent provenir de processus naturels. Sur les lieux de travail, les procédés à haute énergie peuvent potentiellement produire des particules ultrafines notamment en tant que sous produits. Avec le développement des nanotechnologies, des nanoparticules sont également synthétisées pour diverses utilisations. Un des enjeux de l'évaluation de l'exposition professionnelle est de mettre au point des méthodes adéquates pour l'échantillonnage et l'analyse. En particulier, il semble plus approprié de raisonner en termes de surface active de particules plutôt qu'en masse. Cependant, les moyens de mesure de surface active des aérosols ultrafins restent limités à ce jour. L'objectif de notre travail est d'évaluer et de comparer différentes méthodes et instruments qui pourraient être utilisés afin de caractériser l'exposition aux aérosols ultrafins.

1 - INTRODUCTION

On désigne par aérosol ultrafin une suspension de particules ultrafines dans l'air qui peuvent se trouver sous forme individuelle (dimension généralement admise comme étant inférieure à 100 nanomètres) ou groupées en agglomérats ou agrégats (dimension pouvant aller jusqu'à quelques centaines de nanomètres) (Witschger et Fabriès, 2005a).

Dans l'environnement, notamment urbain, les particules ultrafines dispersées dans l'air sont en partie de nature anthropogénique et proviennent des procédés de combustion, et en particulier de l'émission des véhicules motorisés. Les réactions chimiques en phase gazeuse ainsi que la nucléation constituent également une source de particules ultrafines. Leur concentration en nombre, qui peut varier de mille à un million de particules par centimètre cube, est de plusieurs ordres de grandeur supérieure à celle des particules micrométriques (Harrison *et al.*, 2000).

Sur les lieux de travail, les particules ultrafines peuvent être émises dans l'air par différentes sources. Dans l'industrie classique, ce sont majoritairement les procédés chauds, comme ceux employés lors de l'élaboration et du traitement des métaux et alliages, le soudage, l'utilisation de laser et la dégradation thermique qui sont à l'origine de particules ultrafines (Vincent et Clement, 2000). Dans le domaine de la radioprotection, les particules ultrafines considérées proviennent de la désintégration du gaz radon en descendants solides (Malet, 1997). Un domaine nouveau dans lequel les particules ultrafines peuvent également exister est celui des nanotechnologies et plus particulièrement des nanomatériaux. En effet, du fait de l'essor de ce domaine, il existe de plus en plus d'opérations de fabrication, manipulation et transport pouvant émettre des aérosols ultrafins.

Les particules ultrafines sont considérées comme des facteurs de risque pour la santé au travail et correspondent à de forts enjeux de prévention (Witschger et Fabriès, 2005a). Les trois voies de contamination associées à l'exposition aux particules ultrafines sont l'ingestion, le passage transcutané et l'inhalation.

Les effets sur la santé des particules inhalées dépendent de nombreux facteurs physiques et chimiques. Afin d'évaluer l'exposition professionnelle, il est donc essentiel d'en définir un indicateur pertinent, ainsi que d'identifier les stratégies de mesure de ce paramètre.

2 - IDENTIFICATION DES PARAMETRES CARACTERISTIQUES DES AEROSOLS ULTRAFINS

2.1 - Inhalation et dépôt des particules ultrafines

La voie de contamination prépondérante dans le cas des aérosols ultrafins est l'inhalation. La Commission Internationale de Protection Radiobiologique (CIPR, 1994) a développé un modèle permettant de déterminer la probabilité de dépôt dans les trois régions anatomiques de l'arbre respiratoire (extra-thoracique, trachéo-bronchique et alvéolaire) en fonction du diamètre aérodynamique des particules. Elle correspond à la probabilité qu'une particule de l'aérosol ambiant d'un diamètre donné soit inhalée puis se dépose dans une des régions des voies respiratoires.

Les calculs réalisés par Witschger (2005) à l'aide du modèle de la CIPR montrent que le dépôt total croît en deçà du minimum situé aux alentours de 300 nm car la diffusion brownienne devient prédominante. Les particules ultrafines se déposent dans l'ensemble des régions de l'arbre respiratoire, contrairement aux particules microniques dont le dépôt est localisé majoritairement dans la région extra-thoracique. Ceci contribue à créer plus de sites d'interaction et donc une plus grande capacité d'absorption.

Le diamètre des particules et la fraction déposée sont donc liés ; ces paramètres sont déterminants pour l'évaluation de l'exposition. En conséquence, signalons que la caractérisation directe de la fraction déposée en fonction du diamètre des particules peut être un élément à prendre en compte dans l'évaluation de l'exposition.

2.2 - Toxicologie des particules ultrafines

Un grand nombre d'études sur la toxicologie des particules ultrafines composées de substances insolubles ou faiblement solubles a été mené ces dernières années. Les résultats expérimentaux remettent en cause, pour les particules ultrafines, le paramètre de la masse utilisé habituellement comme indicateur d'exposition, et ils suggèrent, entre autres, que la métrique surface devrait constituer un meilleur critère.

Par exemple, Oberdörster *et al.* (2000) ont mis en évidence que le potentiel inflammatoire pulmonaire par unité de masse est plus élevé pour les particules ultrafines (30 nm) de TiO₂ chez le rat que pour des particules fines (200 nm) ; ce résultat est illustré sur la figure 1a. En revanche, les mêmes données portées en fonction de la surface de particule, obtenue par la méthode BET

(Brunauer, Emmet et Teller), indiquent une bonne corrélation quelque soit la taille des particules (figure 1b).

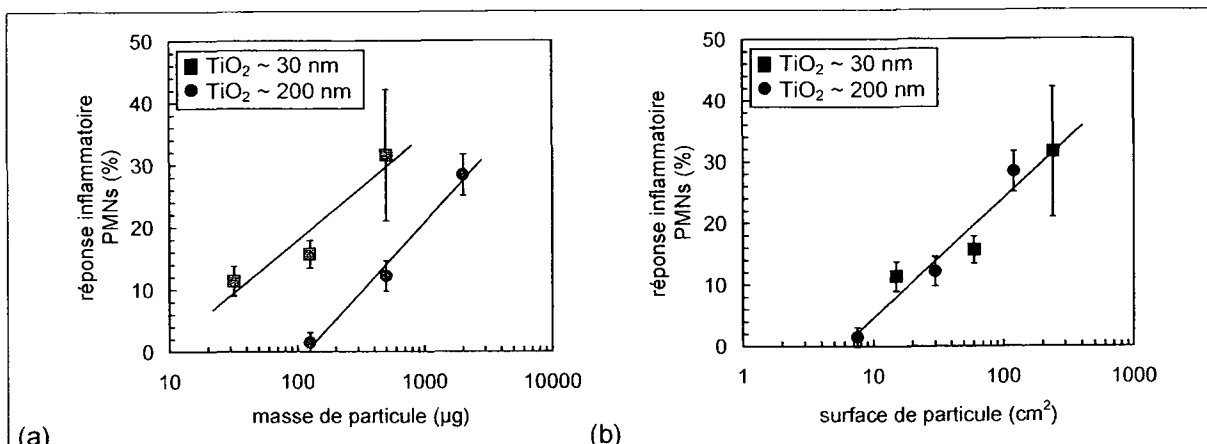


Figure 1 : Réponse inflammatoire obtenue chez le rat après instillation de TiO₂ fin (200 nm) et ultrafin (30 nm), d'après Oberdörster *et al.*, 2000.

Maynard et Kuempel (2005) ont rassemblé des données concernant la réponse inflammatoire pulmonaire à différentes substances sous forme de particules fines et ultrafines. Leurs résultats montrent également une relation linéaire dose-réponse lorsque la dose est exprimée en termes de surface. Il semble donc que la surface soit un paramètre approprié en l'état des connaissances pour caractériser les effets des particules ultrafines sur la santé.

A l'heure actuelle, l'ensemble des données acquises rend plausible l'hypothèse qu'une même substance inhalée sous la forme de particules ultrafines est plus toxique que lorsqu'elle est inhalée sous la forme de particules plus grosses (Witschger et Fabriès, 2005a). Bien entendu, la composition chimique ainsi que la réactivité de surface des particules sont également des facteurs qui conditionnent leur toxicité.

3 - IDENTIFICATION DES DIFFERENTES STRATEGIES POUR LA MESURE DE LA SURFACE DES PARTICULES ULTRAFINES DISPENSEES DANS L'AIR (AEROSOLS ULTRAFINS)

Afin d'étudier la réponse des techniques expérimentées, il est essentiel de définir une méthode de référence. Sur des échantillons de matériaux pulvérulents, la mesure de la surface spécifique (exprimée en m²/g de poudre) est couramment effectuée par adsorption physique d'un gaz (méthode BET, pycnométrie hélium), et est devenue la référence pour les études de toxicologie et de caractérisation des poudres (Kaye, 1999). Cette méthode nécessite une quantité en masse relativement importante de matière, c'est pourquoi elle ne semble pas adaptée aux aérosols ultrafins. De plus, sa mise en œuvre paraît délicate pour des mesures d'exposition (Witschger et Fabriès, 2005b).

A ce jour, aucune technique ne permet une mesure directe de la surface géométrique d'un aérosol. Pour mesurer la surface de façon indirecte, il est nécessaire de positionner ce paramètre de surface par rapport aux autres grandeurs pour lesquelles on dispose de moyens de mesure directs. La figure 2 identifie les liens entre différents paramètres intervenant dans l'estimation de la surface de particules ultrafines. Les éléments obtenus par mesure directe correspondent aux cases grisées. Chacun des chemins aboutissant à la surface nécessite une ou plusieurs hypothèses, qui peuvent porter sur la forme des particules (flèches en tirets), la loi de distribution (flèches en points) ou encore la connaissance d'une grandeur annexe (flèches en traits doubles).

La figure 2 met en exergue différents moyens directs de détermination de la surface : les techniques de microscopie pour les agrégats (N_{pp} , d_{pp} , d_{AP}), le couplage entre une mesure de masse et la surface spécifique (M et a_M), l'intégration de la distribution en surface $S(d_p)$ ou encore la connaissance à tout instant de la surface $S(t)$.

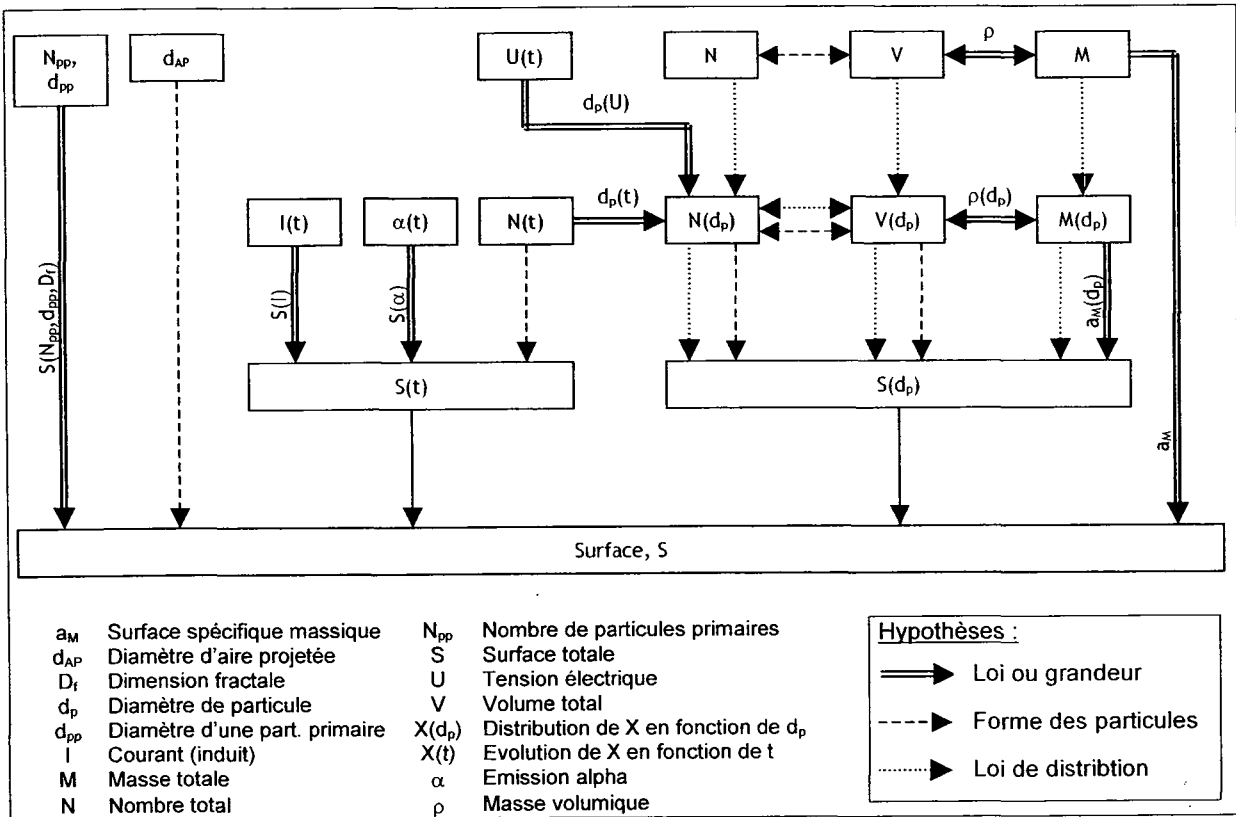


Figure 2 : Relations entre les différentes variables permettant l'estimation de la surface des particules

4 - ELEMENTS BIBLIOGRAPHIQUES

A ce jour, quelques méthodes de mesure de surface des particules ultrafines dispersées dans l'air ont été développées et testées. Les méthodes dites directes consistent à effectuer la mesure d'une quantité directement liée à la surface des particules. Trois techniques ont été mises au point : la mesure de l'attachement d'atomes de plomb radioactif ou d'ions sur la surface des particules et le chargement photoélectrique par rayonnement ultraviolet. Dans ces techniques, les quantités mesurées sont directement des fonctions de la surface active des aérosols. Cette surface active est définie comme la fraction de la surface géométrique directement accessible par des composés présent dans le gaz environnant.

Une méthode indirecte, basée sur un calcul d'optimisation de la distribution granulométrique en surface satisfaisant des mesures intégrales (concentrations en nombre et en masse ainsi qu'une mesure de charge électrique), a également été développée.

4.1 - Eléments de théorie

Pour des particules sphériques, une relation permettant de calculer la surface active en fonction de leur diamètre d_p est fournie par la relation suivante (Kasper *et al.*, 2001 ; Jung et Kittelson, 2005) :

$$S = \pi d_p^2 \frac{2\lambda_g(\alpha + \beta)}{d_p + 2\lambda_g \left[\alpha + \beta \cdot \exp\left(-\frac{d_p \gamma}{2\lambda_g}\right) \right]} \quad (1)$$

où α , β et γ correspondent aux coefficients définissant le facteur de Cunningham :

$$Cu(d_p) = 1 + \frac{2\lambda_g}{d_p} \left[\alpha + \beta \cdot \exp\left(-\frac{d_p \gamma}{2\lambda_g}\right) \right] \quad (2)$$

Les valeurs de ces coefficients déterminés dans l'étude récente de Kim *et al.* (2005) sont :

$$\alpha = 1,165 \quad \beta = 0,483 \quad \gamma = 0,997$$

et le libre parcours moyen des molécules dans l'air est pris égal à $\lambda_g = 66,4$ nm dans les conditions standard de température et de pression.

La figure 3 présente l'évolution de la surface active de particules supposées sphériques en fonction du diamètre ainsi que la surface géométrique fournie par l'expression suivante :

$$S = \pi d_p^2 \quad (3)$$

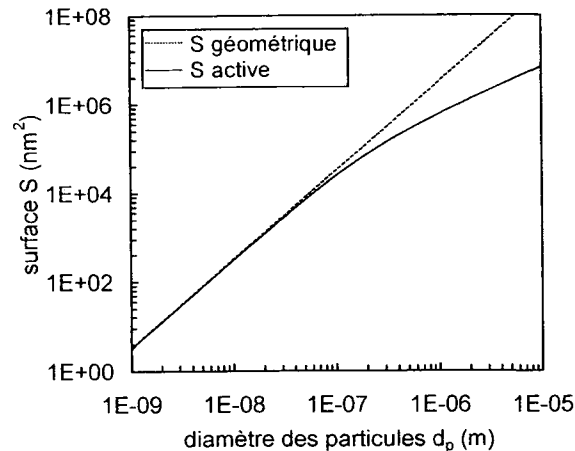


Figure 3 : Evolution de la surface active des particules en fonction de leur diamètre, d'après Jung et Kittelson (2005)

On remarque ainsi que dans la gamme de 1 à 80 nm, la surface active des particules correspond à la surface géométrique. En revanche, au delà de 100 nm, ces deux grandeurs diffèrent, la surface active ne représentant qu'une fraction de la surface géométrique.

4.2 - Estimation de la surface par une mesure de courant (méthode directe)

Jung et Kittelson (2005) ont étudié la réponse d'instruments basés sur une mesure de courant électrique (LQ1-DC et EAD) destinés à la mesure de la surface active d'un aérosol ultrafin. Le principe des deux systèmes est similaire : les particules ultrafines entrant dans l'appareil sont électriquement chargées par la fixation des ions provenant de l'ionisation d'air propre par un effet couronne. Un piège à ions est ensuite disposé dans le flux d'aérosol afin de retirer les ions restés libres ; les particules chargées sont recueillies sur un filtre dont on mesure le courant en fonction du temps. L'intensité du courant rapporté au débit d'aspiration est corrélée à la concentration en surface active des particules. En amont de ce détecteur, l'emploi d'un DMA permet la sélection des particules selon leur diamètre de mobilité électrique ; et une loi de type $S \propto d_m^\alpha$ peut ainsi être obtenue.

Des particules de chlorure de sodium (NaCl) produites par nébulisation ont fait l'objet de la première partie de l'étude. Elles sont grossièrement considérées sphériques dans le domaine de 30 à 150 nm et la théorie énoncée ci-dessus prévoit une loi de type $S \propto d_m^{1,39}$ pour cette gamme de dimension. Les résultats expérimentaux obtenus mettent en évidence que le LQ1-DC ($\alpha = 1,36$) répond bien à cette corrélation contrairement à l'EAD ($\alpha = 1,13$). Pour ce dernier instrument, les auteurs supposent que l'écart observé peut être dû à un procédé de chargement électrique plus complexe faisant intervenir les caractéristiques de l'écoulement.

Ensuite, des agglomérats de suie produites par un moteur ont été étudiés. La charge électrique mesurée sur les suies par les instruments est supérieure de 15 à 17 % à celle des particules de sel de même diamètre équivalent en mobilité électrique. Les agglomérats sont donc plus chargés que les sphères de même mobilité, ce qui est en accord avec les résultats de Laframboise et Chang (1977) et Rogak et Flagan (1992). Néanmoins, dans cette étude les particules de suie ne sont pas caractérisées du point de vue de leur morphologie et les analyses des expériences restent qualitatives. De nouvelles expériences seront donc nécessaires pour étudier la surface active des agglomérats en fonction de paramètres caractérisant leur morphologie.

4.3 - Estimation de la surface à partir de mesures intégrales (méthode indirecte)

Woo *et al.* (2001) ont étudié une méthode de suivi en continu d'un aérosol atmosphérique à partir de mesures intégrales. Pour ce faire, trois techniques ont été utilisées : une mesure de la concentration en nombre (CPC), une mesure de la concentration en masse (MCM), et une mesure de

courant (EAD). Afin de connaître la distribution en nombre de l'aérosol étudié, un SMPS a été ajouté en parallèle.

La méthode décrite consiste à construire, à l'aide d'une méthode mathématique d'optimisation, la distribution en surface des particules supposée lognormale. Cette distribution est soumise à des contraintes correspondant aux mesures intégrales. La surface totale S_1 est ensuite calculée par intégration de la distribution.

Une comparaison a été effectuée avec la surface totale S_2 obtenue à partir de la distribution en surface calculée avec la mesure SMPS en nombre en faisant l'hypothèse de particules sphériques.

Les résultats expérimentaux obtenus mettent en évidence une corrélation linéaire entre les deux surfaces ($S_2 = 0,485 S_1$). La sélection d'une des deux méthodes de détermination de la surface est toutefois difficile car toutes deux sont basées sur des hypothèses. Il est cependant possible de suivre en continu l'évolution du nombre total, de la surface totale et du volume total d'un aérosol à partir de trois mesures intégrales.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Les effets sur la santé liés à l'exposition professionnelle aux particules ultrafines dépendent de nombreux paramètres, dont l'un des plus importants est la taille des particules. En effet, elle définit le site de dépôt dans les voies respiratoires ainsi que les interactions avec le système biologique. De nombreux résultats issus d'études épidémiologiques et toxicologiques publiés ces dix dernières années ont révélé que la métrique surface permettrait une meilleure corrélation avec les effets biologiques. Ceci remet donc en cause l'approche traditionnelle d'évaluation de l'exposition aux aérosols ultrafins qui jusqu'à présent est toujours basée sur la masse.

A ce jour, quelques méthodes ont d'ores et déjà été développées et testées dans le but de déterminer la concentration en surface d'un aérosol ultrafin. Cependant, leur mise en œuvre sur le terrain reste délicate. Le développement de méthodes de caractérisation des particules ultrafines est donc crucial en vue d'effectuer des mesures d'exposition.

Afin d'évaluer les performances des instruments et des méthodes associées, notre perspective est de réaliser une étude expérimentale sur des particules ultrafines de référence produites en laboratoire. Elle permettra de qualifier chacune des techniques en regard d'autres paramètres tels que la morphologie, la granulométrie ou encore l'état de charge électrique de l'aérosol.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Commission Internationale pour la Protection Radiobiologique, Publication 66 (1994): Human respiratory tract model for radiological protection. Pergamon: Oxford. 482 p.
- Harrison, R.M., Ping Shi, J., Xi, S., Khan, A., Mark, D., Kinnersley, R. and Yin, J. (2000) Measurement of number, mass and size distribution of particles in the atmosphere, *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, **358**: 2567-2580.
- Jung, H. and Kittelson, D.B. (2005) Characterization of aerosol surface instruments in transition regime. *Aerosol Science and Technology*, **39**: p. 902-911.
- Kasper, M., Matter, U., Burtscher, H., Bukowiecki, N. and Mayer, A., (2001) Nanomet, a new instrument for on-line size- and substance-specific particle emission analysis, *SAE Technical Paper Series*, 2001-01-0216, p. 79-88.
- Kaye, B.H. (1999) Characterization of powders and aerosols, Wiley-Vch: Weinheim. 312 p.
- Kim, J.H., Mulholland, G.W., Kukuck, S.R. and Pui, D.Y.H. (2005) Slip correction measurements of certified psl nanoparticles using a nanometer differential mobility analyzer (nano-dma) for Knudsen number from 0.5 to 83, *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology*, **110**(1): p. 31-54.
- Laframboise, J.G. and Chang, J. (1977) Theory of charge deposition on charged aerosol particles of arbitrary shape. *Journal of Aerosol Science*, **8**: p. 331-338.
- Malet, J. (1997) Transport et dépôt des aérosols nanométriques : application à la fraction libre des descendants à vie courte du radon, Thèse de doctorat, Université de Paris XII, CEA R 5776. 184 p.
- Maynard, A.D. and Kuempel, E.D. (2005) Airborne nanostructured particles and occupational health. *Journal of Nanoparticle Research*, **7**: p. 587-614.
- Oberdörster, G., Ferin, J., Finkelstein, G., Wade, P. and Corson, N. (2000) Increased pulmonary toxicity of ultrafine particles ? II. Lung lavage studies. *Journal of Aerosol Science*, **21**: p. 384-387.
- Rogak, S.N. and Flagan, R.C (1992) Bipolar diffusion charging of spheres and agglomerate aerosol-particles. *Journal of Aerosol Science*, **23**: p. 693.
- Vincent, J.H. and Clement C.F (2000), Ultrafine particles in workplace atmospheres, *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, **358**: p. 2673-2682.
- Vitschger, O. (2005) Particules ultrafines (nanoparticules) et santé au travail, acte du 21^{ème} congrès français sur les aérosols, décembre 2005, p. 73-78.

METHODE DE CARACTERISATION PHYSICO-CHIMIQUE POUR LA SECURISATION DES PROCEDES DE FABRICATION DES PARTICULES ULTRAFINES ET DES NANOPARTICULES.

T. Amodeo* (1), C. Dutouquet (1), M. Attoui (2), E. Fréjafon (1), O. Le Bihan (1).

(1) INERIS, Direction des Risques Chroniques, Unité Qualité de l'Air, Parc Technologique Alata, 60550 Verneuil En Halatte.
tanguy.amodeo@ineris.fr

(2) Université Paris 12 Val de Marne, 61 avenues du Général De Gaulle, 94010 Créteil Cedex.

TITLE:

Chemical and physical detection of manufactured Nanoparticles in ambient air as a tool for risk assessments.

ABSTRACT:

Since a few years ago, the nanotechnology industry has extended and the nanoparticles production has become very important. Thus the European research program Nanosafe2 has been initialised in order to assess the risk related to this production. Accidental and toxicological risks have been the main topics of interest. Indeed, the small size of these particles generates some confinement and protection issues. Moreover their health impact is poorly characterised.

Our aim is to develop a method that is able to characterise the physical and chemical properties of nanoparticles in air matrix. In order to measure these particles characteristics, we have coupled both methods: the LIBS techniques (Laser Induced Breakdown Spectroscopy) based on a plasma spectroscopy method, and an electrical mobility analysis that implies the use of a DMA (Differential Mobility Analyser). The use of both of these techniques allows us to know direct information about the size, the concentration and the chemical composition of particles in air matrix.

Some preliminary studies have been carried out on polydisperse salt aerosols, then monodisperse aerosols have been analysed, down to sizes around 40 nm. These first results show the ability of this kind of tool for on line nanoparticles measurement with a limit concentration of a few micrograms per cubic meter.

RESUME:

Depuis quelques années l'industrie des nanotechnologies est en plein essor et la production de nanomatériaux ne cesse de croître. Le travail présenté ici, se situe dans le cadre du projet européen nanosafe2 qui vise à étudier les risques liés à la production des nanoparticules. Les risques toxicologiques et accidentels sont particulièrement visés. En effet, la petite taille de ces particules pose des problèmes de confinement et de protection, de plus leur impact sur la santé est mal connu.

Notre objectif est de développer une méthode de caractérisation physico-chimique de ces particules dans l'air et à l'émission. Pour cela nous avons couplé deux méthodes de mesure : la technique LIBS (Laser-Induced Breakdown Spectroscopy) qui est une méthode d'analyse de plasma, et une technique basée sur l'analyse de mobilité électrique à l'aide d'un DMA (Analyseur de Mobilité Electrique). Le couplage de l'analyse de plasma avec un DMA nous permet d'obtenir, respectivement, une information directe sur la composition chimique et sur la taille des particules dans l'air.

La faisabilité de ce couplage a été considérée dans un premier temps, sur la base d'aérosols de sels polydispersés, puis dans un second temps sur des aérosols monodispersés jusqu'à des tailles de 40 nm. Ces premiers résultats montrent la capacité d'un tel dispositif à mesurer des nanoparticules avec une limite de détection de quelques microgrammes par mètre cube.

Introduction

Le début du 21^{ème} siècle est marqué par l'avènement d'une nouvelle industrie : celle des nanotechnologies. En effet les matériaux structurés à l'échelle nanométrique présentent des propriétés nouvelles et leurs applications sont très variées dans des domaines tels que la chimie, la pharmacie, l'électronique et la liste n'est pas exhaustive. L'accroissement de ce marché est exponentiel et a doublé ces six dernières années en Europe pour atteindre un montant de 900 millions de dollars en 2005. C'est dans ce cadre que le projet européen Nanosafe a vu le jour (www.nanosafe.org). Il regroupe de nombreux organismes de recherche et des entreprises productrices de nanomatériaux. Ce projet vise à étudier les risques liés à la production de nanoparticules. Ces risques peuvent être toxiques (Afsset, 2006) dans le cadre d'expositions, mais également accidentels en cas de fuites. En effet les propriétés physiques des nanoparticules leurs permettent de passer les systèmes de filtrations et de protection des travailleurs. De plus ces particules sont susceptibles de s'oxyder très rapidement et accentuent les risques d'explosion inhérents à toute poudre en suspension.

Il apparaît donc indispensable de développer un outil capable de suivre l'évolution de la composition physico-chimique des aérosols, sur les chaînes de production que ce soit pour la sécurité ou pour des études toxicologiques. Il apparaît également intéressant qu'un tel dispositif puisse mesurer en temps réel la composition chimique et la taille de l'aérosol. Il semble qu'une connaissance de cette information puisse permettre une meilleure compréhension de l'origine et de l'évolution des nanoparticules dans l'espace et le temps, étant données leurs capacités à diffuser et à s'agglomérer. Dans le cas d'un suivi de procédés industriels, cette information doit nous permettre de repérer les particules manufacturées dans un fond ambiant et d'en suivre l'évolution. Enfin l'aspect direct de la mesure doit nous permettre également de surveiller l'apparition d'une fuite potentiellement dangereuse en terme de risque d'explosion.

La solution apportée dans ce travail est basée sur le couplage de deux méthodes de mesure : une technique d'analyse chimique grâce à la technique LIBS (Laser-Induced Breakdown Spectroscopy), et une autre qui s'attache aux propriétés physiques de l'aérosol grâce à un DMA (Differential Mobility Analyser). La technique LIBS est une méthode d'analyse basée sur la spectroscopie d'émission de plasma dans les gammes de longueur d'onde visible. Elle permet une analyse très rapide, à distance, de tout type d'éléments qu'ils soient gazeux, solides ou liquides. Cette méthode connaît un succès croissant depuis quelques années avec l'avènement de lasers et de spectroscopes de plus en plus puissants. Plusieurs études (Hahn & Lunden, 2000 ; Cheng, 1999 ; Radziemski, Loree, Cremers & Hoffman, 1983) ont montré la faisabilité d'une analyse chimique en ligne des aérosols à l'aide de la technique LIBS, que ce soit pour de la surveillance de l'air ambiant (Carranza, Ficher, Yoder & Hahn, 2001) ou le contrôle d'émissions industrielles (Hahn, Flower et Henken, 1997). Cette technique peut également être quantitative (Mukherjee, Rai & Zachariah, 2005). Le couplage du LIBS avec un analyseur de mobilité électrique, va nous permettre d'obtenir en plus de la dimension chimique la composante dimensionnelle des aérosols. Les DMA couplés avec des compteurs de particules (CNC) permettent de connaître la distribution en taille et en nombre des aérosols dans l'air avec une haute résolution jusqu'au nanomètre (Rosser & De La Mora, 2005).

Dans cette étude nous allons montrer la faisabilité d'une telle méthode à effectuer des analyses directes quantitatives de nanoparticules polydispersées. Ensuite nous nous attacherons à montrer l'effet de la taille des nanoparticules sur la mesure LIBS à l'aide d'une étude paramétrique sur des particules monodispersées.

Descriptif expérimental.

Le système LIBS.

Un plasma est créé dans l'air à l'aide d'un laser Q-switched Nd:YAG délivrant une énergie de 50 mJ par pulse pour une durée de 5 ns à une longueur d'onde de 1064 nm. Le faisceau est focalisé à l'aide d'une lentille plan convexe en silice fondu de 35 mm. Le rayonnement du plasma est collecté à 90° avec un télescope de type newton puis envoyé via une fibre dans un spectromètre à échelle couplé avec une camera ICCD intensifiée (1024x1024). L'ensemble possède une résolution spectrale de 0,04 nm à 200 nm et 0.2 nm à 1000 nm.

La génération d'aérosol.

Les particules sont produites à l'aide d'un atomiseur (tsi model 3076). Les aérosols ainsi produits sont polydispersés avec des diamètres qui varient en fonction de la concentration de la solution mère. Dans ce travail les solutions sont salines et le diamètre médian des particules produites se situe autour de 50 nm. Les aérosols circulent ensuite vers une buse de sortie située au-dessus du plasma à environ 2mm. En utilisant un DMA en aval de l'atomiseur, il est possible de générer un flux d'aérosol monodispersé.

Résultats préliminaires et discussion.

Des premiers tests ont été menés sur des aérosols polydispersés de type salin afin de connaître la faisabilité de la méthode LIBS ainsi que sa sensibilité. Des spectres ont été réalisés pour différentes concentrations d'aérosols. Sur le graphique 1 sont reportées les intensités, corrigées du continuum, des spectres correspondants à quatre concentrations de Chlorure de Sodium ainsi que quatre concentrations de Chlorure de Potassium. Pour cette courbe, ont été utilisés le doublet du sodium à 588,99 et 589,59 nm ainsi qu'une raie du potassium à 766,5 nm. Cette courbe met en évidence une réponse linéaire de l'intensité LIBS en fonction de la masse vaporisée. Des résultats équivalents ont été obtenus avec l'analyse d'autres sels comme le calcium et le magnésium.

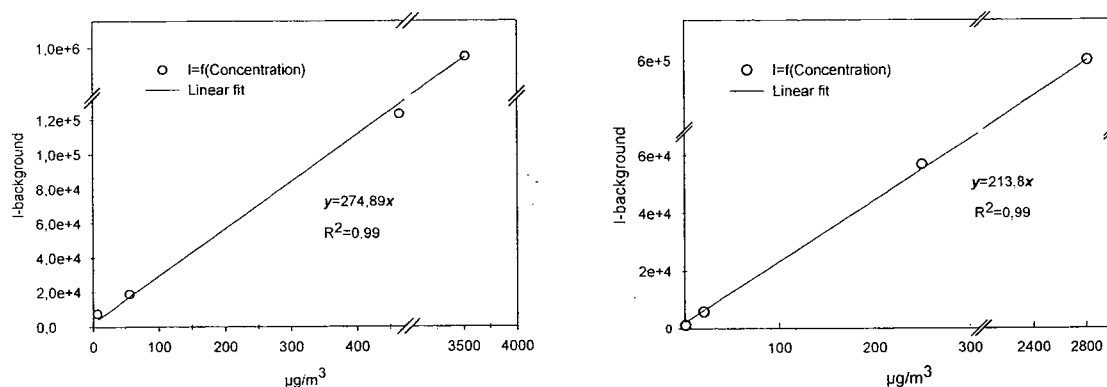


Figure 1 : Signal corrigé du fond en fonction de la concentration massique dans l'air de sodium (à droite) et de potassium (à gauche).

Dans un second temps la question de l'effet de la taille des particules sur l'analyse LIBS a été abordée. Une étude (Hahn & Carranza, (2002)) a émis l'hypothèse d'une ablation non complète des particules dans le plasma au-delà d'une certaine taille, ce qui avait pour effet d'induire un aplatissement de la courbe d'étalonnage. Dans notre cas, les plus grosses particules sont de l'ordre de 200 nm. Une étude en puissance n'a pas mis en évidence une augmentation du signal LIBS en fonction de l'intensité laser. Le plasma créé par des impulsions de 50 mJ est suffisamment intense pour vaporiser la totalité des nanoparticules. Nous voulons avec cette étude mettre en évidence les problèmes potentiels liés à l'analyse des plus petites particules dans l'air. Sur les graphiques suivants, sont reportés les points d'une journée de mesure. Ces points correspondent à l'analyse LIBS de nanoparticules monodispersées. On peut voir que le signal est quasi linéaire, ce qui est cohérent avec le fait que le signal LIBS soit fonction principalement de la quantité de matière ablatée.

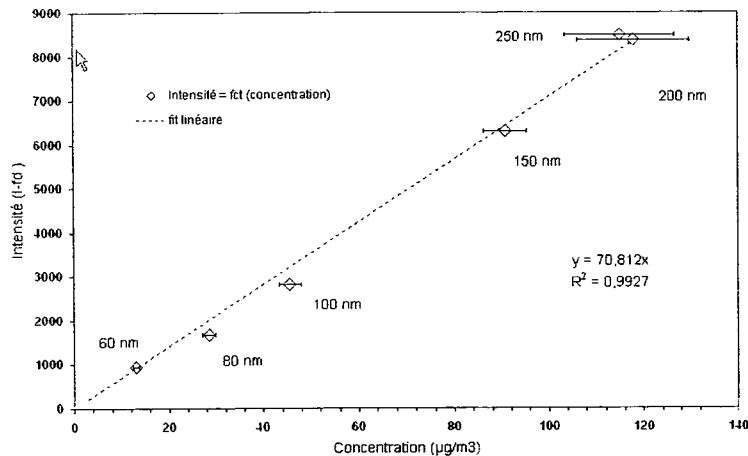


Figure 2 : Représentation de l'intensité LIBS en fonction de la concentration massique des particules dans l'air pour différentes tailles de particules.

Conclusion et perspectives.

Les premiers résultats concernant la caractérisation physico-chimique en temps réel de particules submicrométriques à l'aide de la technique LIBS couplée à un analyseur de mobilité électrique ont été présentés. Les premières expériences réalisées sur un flux de particules polydispersées ont montré qu'il était possible de détecter des particules en ligne avec une limite de détection de l'ordre de quelques $\mu\text{g}/\text{m}^3$. D'autres expériences ont été menées sur des particules monodispersées pour des tailles s'échelonnant de 40 nm à 250 nm. Notre dispositif a permis la détection d'un flux de particules de diamètre 40 nm. Une relation linéaire entre l'intensité LIBS et la concentration en masse a été mise en évidence aussi bien pour le mode monodispersé que pour le mode polydispersé. Cette méthode permet donc de réaliser une caractérisation physico-chimique de nanoparticules (de 40 nm à 100 nm) en temps réel.

Cependant, les procédés industriels de fabrication des nanoparticules impliquent le plus souvent des particules métalliques. C'est pourquoi des expériences sur la détection de ce type de particules sont en cours. Les études présentées dans le présent document doivent être poursuivies afin d'améliorer les limites de détection et de pouvoir obtenir une caractérisation chimique quantitative à partir des spectres d'émission des particules sondées. Finalement, cette méthode s'annonce prometteuse pour la détection de nanoparticules manufacturées sur les sites de production et ce d'autant qu'elle est facile à mettre en œuvre et efficace pour l'analyse élémentaire de nombreux matériaux.

Références :

- (1) Carranza J.E., Ficher B.T., Yoder G.D., Hahn D.W. (2001). On line analysis of ambient air aerosols using laser-induced breakdown spectroscopy. *Spectrochimica Acta Part B : Atomic spectroscopy*, 56, 851-864.
- (2) Carranza J.E., Hahn D.W. (2002). Assessment of the upper particle size limit for quantitative analysis of aerosols using laser induced breakdown spectroscopy. *Analytical Chemistry*, 74, 5450-5454.
- (3) Cheng, (1999). Real time measurement of trace metals on fine particles by laser-induced plasma techniques. *Fuel processing technology*, 65-66, 219-229.
- (4) Hahn D.W. and Lunden M.M. (2000). Detection and analysis of aerosol particles by laser induced breakdown spectroscopy. *Aerosol Science and Technology*, 33, 30-48.

- (5) Hahn D.W., Flower W.L., Henken K.R. (1997). Discrete particle detection and metal emissions monitoring using laser-induced breakdown spectroscopy. *Applied spectroscopy*, 51(12), 1836-1844.
- (6) Mukherjee D, Rai A., Zachariah M.R. (2005). Quantitative laser-induced breakdown spectroscopy for aerosols via internal calibration: Application to the oxidative coating of aluminum nanoparticles. *Journal of aerosol science*, 37(6), 677-695.
- (7) Radziemski L.J., Loree L.R, Cremers D.A., Hoffman M. (1983). Time-resolved Laser-Induced Breakdown Spectrometry of Aerosols. *Analytical chemistry*, 55, 1246-1252.
- (8) Rosser S., De la Mora J., (2005). Vienna-Type DMA of High Resolution and High Flow Rate. *Aerosol Science and Technology*, 39, 1191-1200.
- (9) « Les nanomatériaux : Effets sur la santé de l'homme et sur l'environnement » (2006). *AFSSET*

MODELISATION DES AEROSOLS ORGANIQUES SECONDAIRES : ETAT DE LA SCIENCE ET FUTURES DIRECTIONS

C. Seigneur et B. Pun

Atmospheric & Environmental Research, Inc.
San Ramon, Californie 94583 Etats-Unis

TITLE

Modeling of secondary organic aerosols: State of the science and future directions

ABSTRACT

Secondary organic aerosols (SOA) may constitute a significant fraction of atmospheric particulate matter. Their formation results from the oxidation of anthropogenic and biogenic compounds in the atmosphere and from the partitioning of the condensable products between the gas phase and the particulate phase. The large number of precursors and condensable products implies that the study of SOA is complex and their modeling difficult. Several approaches have been developed to approximate the formation of SOA in air quality models. Each approach has its advantages and shortcomings. We present a summary of those major approaches and we compare their characteristics. The addition of new processes such as oligomerization and the interactions among inorganic and organic compounds are also discussed.

RESUME

Les aérosols organiques secondaires (AOS) peuvent constituer une fraction significative des particules atmosphériques. Leur formation résulte de l'oxydation de composés anthropiques et biotiques dans l'atmosphère et de la distribution des produits condensables entre la phase gazeuse et la phase particulaire. Le grand nombre de précurseurs et de leurs produits condensables rend l'étude des AOS complexe et leur modélisation difficile. Plusieurs méthodologies ont été développées pour approximer la formation des AOS dans les modèles de qualité de l'air. Chaque méthodologie a ses avantages et ses inconvénients. Nous présentons un résumé de ces principales méthodologies et comparons leurs caractéristiques. L'incorporation de nouveaux éléments tels que l'oligomérisation en phase particulaire et les interactions entre composés minéraux et organiques dans les particules sont aussi discutés.

INTRODUCTION

La modélisation de la qualité de l'air est maintenant effectuée pour les particules fines ($PM_{2,5}$) en raison de réglementations existantes (par exemple, aux Etats-Unis et au Canada) ou à venir (par exemple, en Europe). Ces particules fines comprennent des particules primaires qui ont été émises dans l'atmosphère en tant que particules et des particules secondaires qui ont été formées dans l'atmosphère par l'oxydation de gaz précurseurs tels que les oxydes d'azote (NO_x), le dioxyde de soufre (SO_2) et des composés organiques volatils (COV) et la distribution des produits d'oxydation entre la phase gazeuse et la phase organique. La composante secondaire des particules fines peut représenter plus de la moitié de la masse et il est par conséquent essentiel de simuler cette fraction le plus correctement possible. Si la formation de l'acide sulfurique à partir du SO_2 et celle de l'acide nitrique à partir des NO_x (deux acides qui peuvent ensuite passer en phase particulaire) sont assez bien connues, il n'en est pas de même de la formation des composés organiques particuliers. Ces aérosols organiques secondaires (AOS) comprennent un grand nombre de composés qui sont formés à partir de nombreux COV précurseurs et peuvent ensuite passer en phase particulaire en fonction de leurs propriétés physico-chimiques, de la température, de l'humidité relative et de la composition chimique des particules. Ceci rend la modélisation des AOS difficile, mais il est cependant nécessaire de simuler leur formation dans les modèles de qualité de l'air puisqu'ils peuvent représenter une fraction significative de la masse des $PM_{2,5}$. Par conséquent, plusieurs modèles mathématiques de la formation des AOS ont été développés et d'autres sont en cours de développement. Comme notre connaissance scientifique des AOS qui est fondée sur les données expérimentales disponibles évolue actuellement assez rapidement, il est intéressant d'évaluer l'état de la science tel qu'il est actuellement représenté dans les modèles de qualité de l'air et d'évaluer les améliorations prochaines qui sont envisagées. Nous présentons d'abord un résumé des principales méthodologies qui sont utilisées dans les modèles de qualité de l'air. Nous décrivons ensuite quelques méthodologies en cours de développement. Finalement, nous proposons quelques idées pour les futurs efforts dans ce domaine.

METHODOLOGIES EXISTANTES POUR LA FORMATION DES AOS

Il existe actuellement deux méthodologies principales pour représenter la formation des AOS dans les modèles de qualité de l'air. La méthodologie la plus utilisée est celle qui est fondée sur le modèle d'absorption dans une phase organique (Pankow, 1994). L'hypothèse fondamentale est que les composés organiques condensables peuvent être absorbés dans une phase organique particulaire. Cette phase organique particulaire peut contenir des composés primaires (c'est à dire, émis dans l'atmosphère en tant que particules) et des composés secondaires (c'est à dire, condensés sur ces particules). La constante d'équilibre entre la phase gazeuse et la phase organique particulaire peut être calculée de façon théorique à partir de la pression de vapeur saturante du composé (Pankow, 1994) ou déduite de façon empirique à partir d'expériences effectuées en laboratoire (« smog chamber »). La deuxième approche est celle qui est généralement utilisée car de nombreuses données expérimentales existent pour la formation des AOS à partir de COV anthropiques (composés aromatiques principalement) et biotiques (isoprène, monoterpènes et terpénoides, et sesquiterpènes). Quand des données expérimentales sont utilisées, l'hypothèse est faite que l'ensemble des AOS peut être représenté par deux composés

suppléments. La composition chimique de ces composés n'est pas précisée et ils ne sont caractérisés que par leurs propriétés physiques (masse molaire et constante d'équilibre gaz/particule). Quasiment tous les modèles de qualité de l'air utilisent actuellement cette formulation.

Un inconvénient majeur de la méthodologie décrite ci-dessus est que les interactions des composés organiques avec l'eau et les composés minéraux (par exemple, sulfate et nitrate) n'est pas prise en compte. L'identification chimique de certains AOS montrent que certains d'entre eux sont susceptibles d'être solubles en milieu aqueux (Saxena et Hildemann, 1996) et l'analyse d'échantillons de PM_{2,5} montre qu'une fraction des composés organiques est soluble dans l'eau. Il paraît par conséquent judicieux de prendre en compte cet aspect de certains AOS. Pun et al. (2002) ont réalisé le premier modèle d'AOS qui traite les AOS hydrophobes (qui sont donc absorbés en phase purement organique) et les AOS hydrophiles (qui se dissolvent donc en phase aqueuse). Les AOS hydrophobes sont traités selon le modèle de Pankow (1994) et les AOS hydrophiles selon leur constante de Henry. Ces AOS hydrophiles peuvent ensuite interagir avec les composés minéraux au travers de leur coefficient d'activité, hygroscopicité (effet sur le contenu en eau liquide) et dissociation ionique (effet sur le pH de la particule). L'utilisation de cette méthodologie dans les modèles de qualité de l'air a jusqu'à présent été limitée par le fait que le modèle hydrophobe/hydrophile était lié à un mécanisme de phase gazeuse assez complexe (Griffin et al., 2005) et, par conséquent, les applications passées correspondent surtout à des études de type « recherche ». Une nouvelle formulation de cette méthodologie a récemment été développée qui permet d'utiliser un modèle d'AOS hydrophobe/hydrophile avec n'importe quel mécanisme de phase gazeuse (Pun et al., 2006). Cette méthodologie est en cours d'incorporation dans plusieurs modèles de qualité de l'air. Une comparaison de ces deux méthodologies principales (modèle purement hydrophobe et modèle hydrophobe/hydrophile) a montré qu'elles pouvaient mener à des résultats très différents (Pun et al., 2003).

METHODOLOGIES EN COURS DE DEVELOPPEMENT

La méthodologie fondée sur le modèle de Pankow a récemment été améliorée pour prendre en compte l'interaction des composés organiques avec l'eau. Cette formulation peut éventuellement mener à une séparation de phases avec une phase principalement organique et une phase principalement aqueuse (Chang et Pankow, 2006). La figure 1 montre un exemple des interactions entre certains AOS (α -pinène, toluène et humulène) et l'eau. Dans le cas de l' α -pinène, la polarité de certains de ses produits d'oxydation engendre une grande affinité pour l'eau et la constante d'équilibre augmente avec l'humidité relative. C'est aussi le cas pour certains produits du toluène. Par contre, les produits d'oxydation de l'humulène sont plutôt hydrophobes et la constante d'équilibre décroît avec l'humidité relative. Cette nouvelle formulation est actuellement en cours d'incorporation dans un modèle de qualité de l'air.

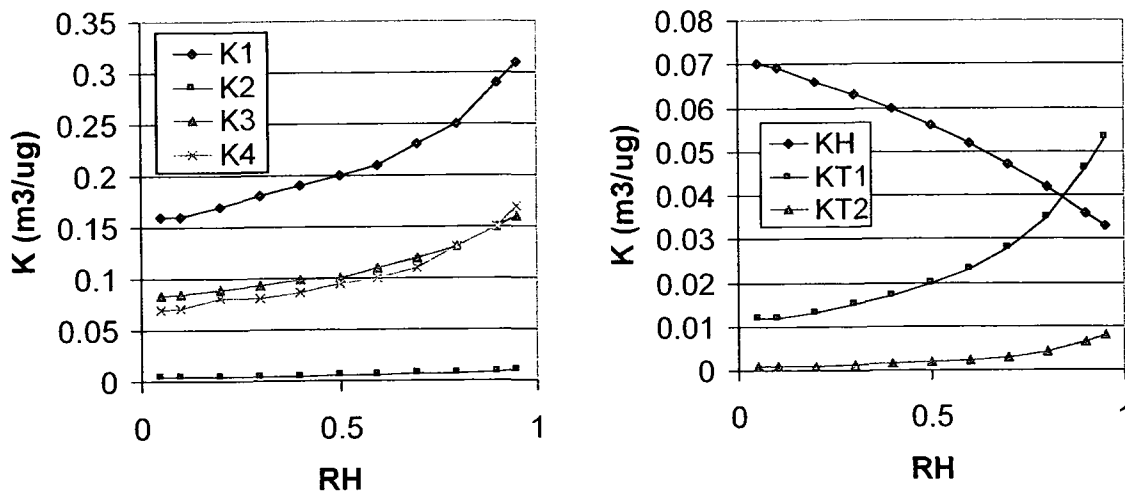


Figure 1. Constante d'équilibre particule/gaz calculée en fonction de l'humidité relative pour quatre produits d'oxydation de l' α -pinène (K1 à K4 à gauche), deux produits d'oxydation du toluène (KT1 et KT2 à droite) et un produit d'oxydation de l'humulène (KH à droite).

METHODOLOGIES FUTURES

Oligomérisation : Il existe maintenant plusieurs types d'expériences qui ont montré la possibilité de formation d'AOS à masse molaire élevée, ce qui suggère l'oligomérisation des AOS originaux. Il est par conséquent important de pouvoir représenter ce type de phénomène car il mène à un déplacement des AOS de la phase gazeuse vers la phase particulaire. Il semble que les AOS avec des groupes aldéhydes sont particulièrement susceptibles d'être oligomérisés et que le taux de réaction est fonction du pH de la particule (Jang et al., 2005). Cependant, les données expérimentales sont encore assez limitées et la représentation mathématique du phénomène est particulièrement sensible au choix du pH de référence (Pun et Seigneur, 2006).

Interactions des composés organiques et minéraux : Pour le moment, les interactions entre les composés organiques et les composés minéraux dans les modèles de qualité de l'air sont limités à des interactions indirectes au travers du contenu en eau liquide et du pH. En réalité, la présence de ces différents composés dans un milieu aqueux concentré mène aussi à des interactions entre les différents ions et composés, ce qui peut être représenté au moyen des coefficients d'activité (Erdakos et al., 2006). Ces interactions devront être prises en compte dans les futurs modèles de qualité de l'air.

Utilisation d'AOS suppléants : Il est probable qu'en raison du grand nombre de composés qui constituent les AOS, il ne sera pas possible de tous les représenter dans un modèle de qualité de l'air. Par conséquent, les méthodes qui consistent à utiliser des AOS suppléants, soit sur la base d'un mécanisme chimique (par exemple, Griffin et al., 2005), soit sur la base de données expérimentales (par exemple, Pun et Seigneur, 2006), sont les plus appropriées.

Convergence des différentes méthodologies : Une fois que ces différents phénomènes auront été introduits dans les différents modèles d'AOS, il est probable que nous verrons une certaine convergence dans l'évolution des différentes méthodologies. Par exemple, la méthodologie utilisée dans la plupart des modèles ne représente actuellement les AOS que comme des composés hydrophobes ; cette méthodologie est maintenant modifiée pour tenir compte des interactions composés organiques/eau. Elle diffère encore de la méthodologie hydrophobe/hydrophile qui tient compte des composés minéraux dans le milieu aqueux. Cependant, il est probable que ces deux méthodologies se rejoindront et que des modèles de la thermodynamique des particules qui traitent les composés minéraux et organiques simultanément seront utilisés dans les modèles de qualité de l'air dans quelques années.

REFERENCES

- Chang, L. et J.F. Pankow. Prediction of activity coefficients in liquid aerosol particles containing organic compounds, dissolved inorganic salts, and water – Part 2 : Consideration of phase separation effects by an X-UNIFAC model, *Atmos. Environ.*, **40**, 6422-4236 (2006).
- Erdakos, G.B., E.I. Chang, J.F. Pankow et J.H. Seinfeld. Prediction of activity coefficients in liquid aerosol particles containing organic compounds, dissolved inorganic salts, and water – Part 3 : Organic compounds, water, and ionic constituents by consideration of short-, mid- and long-range effects using X-UNIFAC.3, *Atmos. Environ.*, **40**, 6437-6452 (2006).
- Griffin, R.J., D. Dabdub et J.H. Seinfeld. Development and initial evaluation of a dynamic species-resolved model for gas-phase chemistry and size-resolved gas-particle partitioning associated with secondary organic aerosol formation, *J. Geophys. Res.*, D05304, doi:10.1029/2004JD005219 (2005).
- Jang, M., N.M. Czoschke et A.I. Northcross. Semiempirical model for organic aerosol growth by acid-catalyzed heterogeneous reactions of organic carbonyls, *Environ. Sci. Technol.*, **39**, 164-174 (2005).
- Pankow, J.F. An absorption model of gas/particle partitioning of organic compounds in the atmosphere, *Atmos. Environ.*, **28**, 185-188 (1994).
- Pun, B. K., R. J. Griffin, C. Seigneur et J. H. Seinfeld. Secondary organic aerosol: II. Thermodynamic model for gas/particle partitioning of molecular constituents, *J. Geophys. Res.*, **107**, 4333-4347 (2002).
- Pun, B., S.-Y. Wu, C. Seigneur, J.H. Seinfeld, R.J. Griffin et S.N. Pandis, Uncertainties in modeling secondary organic aerosols: three-dimensional modeling studies in Nashville/western Tennessee, *Environ. Sci. Technol.*, **37**, 3647-3661 (2003).
- Pun, B., C. Seigneur et K. Lohman. Modeling secondary organic aerosol via multiphase partitioning with molecular data, *Environ. Sci. Technol.*, **40**, 4722-4731 (2006).
- Pun, B. et C. Seigneur. Investigative modeling of new pathways for secondary organic aerosol formation, www.crcao.com (2006).
- Saxena, P. et L. Hildemann, Water-soluble organics in atmospheric particles: A critical review of the literature and application of thermodynamics to identify candidate compounds, *J. Atmos. Chem.*, **24**, 57-109 (1996).

CARACTERISATION PHYSICO-CHIMIQUE ET EFFETS BIOLOGIQUES DES PARTICULES FINES ET ULTRA-FINES DE L'AEROSOL URBAIN

L. Martinon* (1), O. Favez (2), K. Ramgolam (3), S. Chevallier (4), A. Person (5), M.-A. Billon-Galland (1), H. Cachier (2) et A. Baeza (3)

(1) Laboratoire d'Etude des Particules Inhalées (LEPI), Ville de Paris, 11 rue G. Eastman, 75013 Paris
laurent.martinon@paris.fr

(2) Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE), 91190 Gif sur Yvette

(3) Laboratoire de Cytophysiologie et Toxicologie Cellulaire (LCTC), Univ. Paris 7, 75005 Paris

(4) Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA), Univ. Paris 12, 94010 Créteil

(5) Laboratoire d'Hygiène de la Ville de Paris (LHVP), 11 rue George Eastman, 75013 Paris

TITLE

Physico-chemical characterization and biological effects of fine and ultrafine particles in the urban aerosol

ABSTRACT

The urban background aerosol is almost composed of fine (PM 2.5 and PM 1) and ultra fine (PM 0.1) particles coming from combustion processes. Epidemiological and experimental studies underline the role of the aerosol size, in particular the ultra fine one, in cardiorespiratory diseases exacerbations. The aim of this work was to investigate which size fraction of the urban background aerosol has the most important biological effect. Parallel samplings were conducted to collect the different size fractions (ultra fine, fine and coarse) of the aerosol using cascade impactors, each of them being dedicated to chemical or biological characterization.

The finer the aerosol fraction is, the higher organic carbon concentration is. PAH are mostly born by submicronic particles. *In vitro* studies have shown that the proinflammatory cytokine release by bronchial epithelial cells appears to be dose dependent and higher for ultra fine and fine particles.

RESUME

L'aérosol urbain de fond est globalement dominé par des particules fines (PF : PM 2.5 et PM 1) et ultra-fines (PUF : PM 0.1) principalement issues des processus de combustion et en particulier du trafic automobile. Les études épidémiologiques et expérimentales soulignent de plus en plus le rôle de la taille et de la composition des particules, en particulier des PUF dans l'apparition de pathologies cardiorespiratoires.

Le but de cette étude en cours est d'étudier la relation entre les effets biologiques et la taille de l'aérosol urbain en testant la réactivité *in vitro* sur des cellules épithéliales bronchiques humaines (16HBE) de différentes fractions granulométriques bien caractérisées sur le plan physico-chimique. Deux campagnes de prélèvement de l'aérosol urbain de fond ont été menées à Paris (13ème) durant l'hiver 2004-2005 et l'été 2005, en vue de collecter les fractions PM 10, PM 2.5, PM 1 et PM 0.1 au moyen d'impacteurs Dekati basse-pression à 13 étages et d'impacteurs Dekati à 4 étages fonctionnant simultanément, chacun étant dédié à une analyse physico-chimique (carbone, ions, HAP, masse) ou biologique (toxicité, sécrétion d'une cytokine (GM-CSF) marqueur de la réponse proinflammatoire).

Les analyses chimiques révèlent une prédominance des espèces carbonées dans la fraction ultra-fine de l'aérosol parisien. 90 % des HAP sont portés par des particules submicroniques.

Les résultats *in vitro* montrent que les quantités de particules prélevées sur 24 à 100 heures sont suffisantes pour produire un effet biologique reproductible en terme de sécrétion de GM-CSF. De plus, cette sécrétion par les cellules est significativement induite par les PF et les PUF avec une réponse dose-dépendante.

Etude financée par l'ADEME (programme PRIMEQUAL2/PREDIT ; convention n° 0462C0056)

INTRODUCTION

L'aérosol urbain de fond est globalement dominé par des particules fines (PF : PM 2.5 et PM 1) et ultra-fines (PUF : PM 0.1) principalement issues des processus de combustion et en particulier du trafic automobile. Ces particules sont de nature à pénétrer profondément dans l'appareil respiratoire au vu de leur taille et sont susceptibles d'être très réactives vis-à-vis de l'organisme. Les études épidémiologiques et expérimentales soulignent de plus en plus le rôle de la taille et de la composition des particules, en particulier des PUF dans l'apparition de pathologies cardiorespiratoires. La très petite taille, la très faible masse, la surface proportionnellement considérable et la réactivité de surface des PUF seraient à l'origine de leur réactivité biologique et de leur capacité à se disperser dans l'organisme.

Cette étude s'articule autour de la question principale suivante :
Sur quelle fraction granulométrique de l'aérosol urbain de fond, l'impact biologique à court terme est-il le plus important ?

PLAN EXPERIMENTAL

Pour répondre à cette question, le plan expérimental choisi a consisté à prélever les particules urbaines en les sélectionnant par taille et à caractériser chacune de ces fractions granulométriques du double point de vue physico-chimique et biologique.

Sur le toit du bâtiment (17 m de hauteur) du LEPI, dans le 13^{ème} arrondissement de Paris, site représentatif de la pollution de fond parisienne, des impacteurs Dekati 13 étages, basse pression (30 nm à 13 micromètres) et 4 étages (PM10, PM2.5, PM1 et fraction submicronique) ont été installés (figure 1).

Deux campagnes de mesures ont été réalisées en 2005, l'une en hiver, l'autre en été. Les prélèvements, au nombre de 11, se sont déroulés sur des durées comprises entre 20 et 100 heures.

Les différents impacteurs fonctionnaient en parallèle, certains étant dédiés à la caractérisation physico-chimique des particules, d'autres à la réalisation de tests biologiques *in vitro*.

Quatre fractions granulométriques ont été définies en réunissant les étages d'impacteurs correspondants :

- la fraction ultrafine (PUF) regroupant les particules inférieures à 0,1 micromètres,
- la fraction fine (PM (1-0.1)) regroupant les particules comprises entre 1 et 0.1 micromètres,
- la fraction intermodale (PM (2.5-1)) regroupant les particules comprises entre 2,5 et 1 micromètres
- et la fraction grossière (PM (10-2.5)) celles entre 10 et 2,5 micromètres.

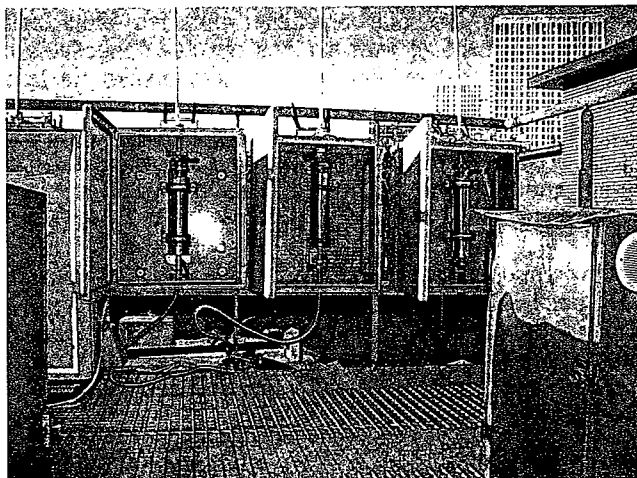


Figure 1 : Station de prélèvement

Sur ces différentes fractions, plusieurs analyses physico-chimiques ont permis de caractériser :

- la fraction carbonée (carbone total, organique et élémentaire) par méthode thermique (prélevée sur membranes en fibres de quartz)
- la fraction minérale soluble (Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , NO_3^- , SO_4^{2-} , PO_4^{3-} , Cl^-) par chromatographie ionique haute performance (prélevée sur membranes Zefluor)
- les hydrocarbures aromatiques polycycliques par chromatographie liquide haute performance (prélevés sur membranes en fibres de quartz)
- la masse par gravimétrie (prélèvements sur membranes Zefluor)
- la typologie des particules par observation directe en microscopie électronique à transmission

Pour les tests biologiques, l'épithélium bronchique étant une cible privilégiée des particules fines et ultrafines inhalées, le choix s'est porté sur des essais *in vitro* d'exposition de cellules humaines épithéliales bronchiques 16HBE aux particules. Pour cela, les particules étaient prélevées sur membranes en polycarbonates, puis directement récupérées par sonication des filtres dans le milieu de culture des cellules en regroupant les étages d'impacteur par fraction granulométrique.

Le biomarqueur d'exposition choisi a été le GM-CSF, une cytokine proinflammatoire connue pour être impliquée dans les processus inflammatoires et allergiques. L'induction de sa sécrétion par les cellules exposées aux particules a été mesurée dans les surnageants de culture par des dosages ELISA.

En complément, plusieurs appareils de mesures automatiques ont fonctionné durant les deux campagnes :

- un TEOM (FDMS), permettant d'assurer un suivi en continu de la masse de l'aérosol dans la tranche granulométrique PM 2.5
- un système couplé, batterie de diffusion - compteur de noyau de condensation (TSI), permettant l'estimation de la concentration en nombre des particules de 6 nm à 0.2 micromètres
- un compteur de particules Grimm fournissant la concentration numérique des particules de 0.3 à plus de 20 micromètres
- un aéthalomètre mesurant en continu l'absorption de la lumière par les particules et permettant une estimation des teneurs dans l'air en carbone élémentaire ou black carbon (BC).

RESULTATS ET DISCUSSION

Une méthode originale de récupération des particules et d'exposition des cellules a été validée. Des effets biologiques (sécrétion de GM-CSF) reproductibles sont mesurés pour des temps de prélèvement relativement courts (24 heures). Plusieurs concentrations ont été testées : un effet est induit dès $1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$; de plus, la sécrétion de GM-CSF est dépendante de la dose.

Les cellules ont été exposées de deux manières : à isovolume de prélevement, la dose de chaque fraction granulométrique étant alors le reflet de sa concentration dans l'air, et à isomasse.

Pour les premiers prélèvements traités, ceux d'hiver, il apparaît lors des expositions à isovolume un effet prépondérant de la fraction fine PM (1-0.1) sur les autres fractions, en rapport avec sa prépondérance dans l'aérosol (figure 2). A isomasse, les particules supérieures à 1 micromètre ne semblent pas avoir d'effet significatif et seules les PUF et les PM (1-0.1) présentent un effet, avec une sécrétion de GM-CSF souvent plus marquée pour les PUF (figures 2 et 3).

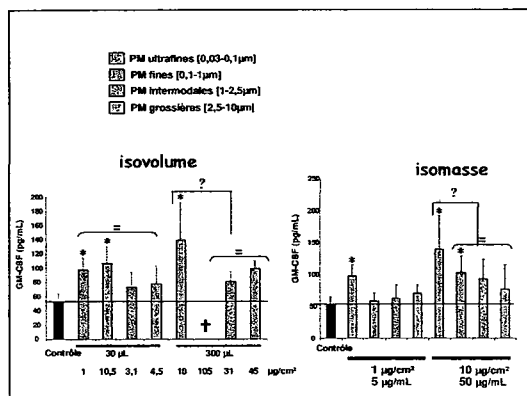
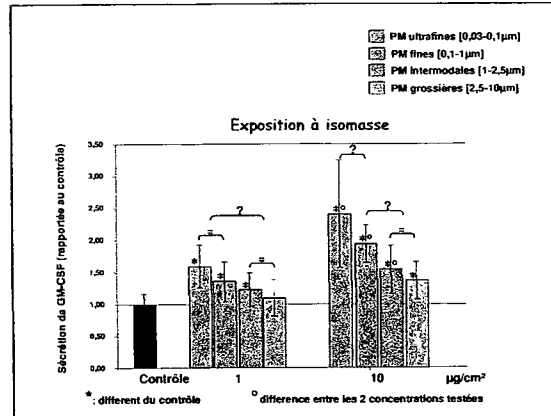


Figure 2 : Dosage de GM-CSF : un exemple en hiver



**Figure 3 : Dosage de GM-CSF :
Moyenne de 4 prélèvements d'hiver**

Ces résultats sont à rapprocher des résultats de caractérisation physico-chimique de l'aérosol. Globalement, les distributions granulométriques en masse montrent une structure bimodale classique, avec un mode grossier autour de 2,5 et un mode d'accumulation vers 0,4 micromètres. Les analyses chimiques des différentes fractions montrent une prédominance de SO_4^{2-} , NO_3^- associés à NH_4^+ dans la fraction fine PM(1-0.1), de même que pour le carbone organique et le carbone élémentaire. 90 % des HAP se concentrent sur les particules submicroniques. En proportion relative, plus l'aérosol est fin, plus la part de matière organique particulaire augmente. Ce qui est confirmé par l'observation ponctuelle des particules en microscopie électronique, qui révèle une simplification de l'aérosol à mesure que la taille diminue, avec une typologie variée dans la fraction PM (10-2.5) tandis que les PUF ne sont constituées quasiment que de chapelets de très petites particules carbonées (figure 4).

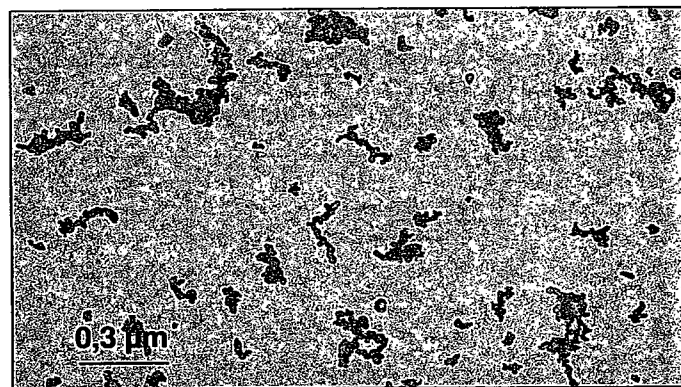


Figure 4 : Particules ultrafines sur l'étage 1 de l'impacteur

CONCLUSION

La stratégie expérimentale de prélèvement de l'aérosol urbain de fond en quatre classes de taille et de sa caractérisation conjointe chimique et biologique a permis de mettre en évidence :

- (1) Sur des cellules bronchiques épithéliales, un effet proinflammatoire plus important pour les fractions fine et ultrafine de l'aérosol que pour les fractions intermodale et grossière.
- (2) Dans la fraction grossière de l'aérosol, la typologie des particules est variée. Les particules dans le mode ultrafin ne sont plus quasiment constituées que de chapelets de particules carbonées. Chimiquement parlant, plus l'aérosol est fin, plus la part de carbone organique augmente.

Les résultats de la campagne d'été sont attendus afin de voir si des variations saisonnières de la composition de l'aérosol et de ses effets biologiques apparaissent, notamment sous l'influence de la photochimie.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Boland S., Bonvallet V., Fournier T., Baeza-Squiban A., Aubier M., Marano F. (2000) Mechanisms of GM-CSF increase by diesel exhaust particles in human airway epithelial cells. *Am. J. Physiol.*, 278, L25-32
- Baulig A., Poirault J.J., Ausset P., Schins R., Shi T., Baralle D., Dorlhene P., Meyer M., Lefevre R., Baeza-Squiban A., Marano F. (2004) Physicochemical characteristics and biological activities of seasonal atmospheric particulate matter sampling in two locations of Paris. *Environ. Sci. Technol.*, 38, 5985-5992.
- Li N. Hao M., Phalen R.F., Hinds W.C., Nel A.E. (2003) Particulate air pollutants and asthma. A paradigm for the role of oxidative stress in PM-induced adverse health effects. *Clin Immunol.* 109, 250-65.
- Xiong C. and Friedlander S.K.(2001) Morphological properties of atmospheric aerosol aggregates. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 98, 11851-11856.

CARACTERISATION DE L'EXPOSITION AUX AEROSOLS DE LEGIONELLES : ASPECTS METROLOGIQUES

L. Mathieu⁽¹⁾, T.L. Ha⁽²⁾, M. Deloge-Abarkan⁽³⁾, E. Robine⁽²⁾

(1) Ecole Pratique des Hautes Etudes, Département Environnement et Santé Publique, Faculté de Médecine, 9 av. de la forêt de Haye, BP 184, 54505 Vandoeuvre-lès-Nancy, France.
laurence.mathieu@medecine.uhp-nancy.fr

(2) Centre Scientifique et Technique du Bâtiment, Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs, 84 avenue Jean Jaurès, 77447 Marne La Vallée cedex 2, France.

(3) Université Henri Poincaré, Département Environnement et Santé Publique, INSERM ERI n°11, Faculté de Médecine, 9 av. de la forêt de Haye, BP 184, 54505 Vandoeuvre-lès-Nancy, France.

TITLE

Characterization of airborne *Legionella* exposure

ABSTRACT

Aerosols from *Legionella* contaminated water constitute the exclusive exposure way for humans. Paradoxically, the prevention strategy against *Legionella* risk is managed through the survey of water contamination. No relationship linked the *Legionella* water concentration and their airborne abundance. Therefore, new approaches in the field of the metrological aspects of *Legionella* bioaerosols are required to improve the characterization of the exposure level of populations to contaminated aerosols. Our study aims at the detection of airborne *Legionella* while showering and was performed in 34 health care centres in the North-East of France. Results showed the usefulness of the impingement associated with the *in situ* hybridization (FISH) method to detect airborne *Legionella*. We then applied these tools to aerosols generated from showers (n = 164). Airborne *Legionella* was detected by liquid impaction coupled with FISH in 29% of the samples, compared to 3% when detection was performed by impaction on solid medium and culturability. This bacterium was also detected in hot water of shower with an excess risk of 6.8 times higher to detect *Legionella* in the aerosol when the concentration in hot water is higher than 10^5 *Legionella*-FISH/L.

RESUME

Aujourd'hui, la gestion du risque lié aux légionelles repose essentiellement sur le maintien de ses concentrations dans l'eau sous un seuil réglementaire fixé à 10^3 UFC/L, alors que paradoxalement, la voie d'exposition est l'aérosol d'eau contaminée par la bactérie. Notre étude a porté sur la détection des *Legionella* aéroportées lors de la prise de douche dans des établissements de santé du nord-est de la France. La mise en œuvre d'outils métrologiques pour la collecte et l'analyse des aérosols de légionelles était une étape préliminaire indispensable pour accéder à l'évaluation du niveau d'exposition des populations à des aérosols contaminés. Dans nos conditions expérimentales, la combinaison méthodologique optimale de collecte-analyse de *Legionella* aéroportée a été obtenue avec l'utilisation de l'impaction sur milieu liquide et d'une détection par la technique d'hybridation *in situ* (FISH). Nous avons ensuite appliqué ces outils aux aérosols générés de 164 points de douche de 34 maisons de retraite volontaires. *Legionella* aéroportée a été détectée avec le couplage [impaction en milieu liquide – FISH] pour 29% des échantillons contre au mieux 3% pour le couplage [impaction sur milieu solide - méthode culturale]. Pour tous les prélèvements d'aérosols positifs en *Legionella*, cette bactérie a été aussi détectée dans les eaux chaudes du même point de douche avec un risque 6,8 fois plus élevé de détecter *Legionella* dans l'aérosol quand la concentration dans l'eau chaude est supérieure à 10^5 *Legionella*-FISH/L.

Contexte

Un quart de siècle après leur découverte, les légionelles sont toujours d'actualité, et constituent un véritable problème de santé publique. La contamination humaine se fait exclusivement par l'inhalation d'un aérosol d'eau contaminée par *Legionella*. Les légionelles sont en effet réputées pour coloniser des installations en contact avec de l'eau. Et la multiplication des environnements hydriques artificiels potentiellement producteurs d'aérosols peut entraîner la naissance d'épidémies de légionellose, et ce malgré une réglementation de plus en plus drastique concernant la gestion de la qualité microbiologique de l'eau.

Ainsi, la prévention du risque lié aux légionelles consiste aujourd'hui en la surveillance de cette contamination biologique dans les milieux hydriques et repose essentiellement sur le contrôle de la prolifération microbienne et le maintien des concentrations en légionelles sous un seuil réglementaire fixé à 10^3 unités formant colonies par litre d'eau pour les réseaux sanitaires.

Par ailleurs, il n'existe à ce jour aucune relation établie entre la concentration des légionelles présentes dans l'eau et la quantité aérosolisée. Ce transfert est aléatoire suivant les équipements visés. Dans ces conditions, une concentration bactérienne élevée dans l'eau ne présume en rien d'une dispersion aérienne. A l'inverse, des numérations faibles peuvent être sous-estimées par l'existence avérée des légionelles dans les biofilms ou internalisées dans les amibes. En conséquence, il est difficile de s'assurer de la seule pertinence des mesures effectuées dans l'eau en terme d'évaluation du risque sanitaire.

1. Objectifs

Notre objectif était de réaliser une étude environnementale sur la détection des *Legionella* aéroportées lors de la prise de douche dans des établissements de santé du nord-est de la France, afin de disposer d'outils de caractérisation de l'exposition de populations à cet agent pathogène. Nous avons ciblé les maisons de retraite de Lorraine, accueillant une population de personnes fragiles et possédant des réseaux d'eau chaude complexe, reconnus comme pouvant être problématiques vis-à-vis du risque *Legionella*.

Cet objectif imposait la mise en œuvre d'outils métrologiques, en termes de prélèvement d'aérosols et de techniques de détection, efficaces et adéquats pour l'analyse des légionelles.

Ainsi, une première étape, effectuée en laboratoire avec des aérosols standardisés de légionelles, visait à tester les méthodologies à employer ultérieurement sur le terrain, en examinant (i) trois principes de collecte de bioaérosol (impaction sur agar, impaction en milieu liquide et filtration) pour évaluer leur influence sur la cultivabilité des légionelles aérosolisées, et (ii) la méthode d'hybridation *in situ* (FISH) pour détecter *Legionella* aéroportées.

Dans une seconde partie de l'étude, les essais de terrain au niveau des aérosols de douche en maisons de retraite ont été réalisés. Ces essais avaient pour but d'apprécier (i) l'abondance des *Legionella* aéroportées lors de prise de douche, et (ii) la pertinence des principes et des méthodes analytiques choisis pour la collecte des aérosols et la détection des légionelles aéroportées.

2. Matériel et méthodes

2.1. Essais de laboratoire

Préparation de l'inoculum de légionelles. Une souche de *Legionella pneumophila* séro groupe 1 (ATTC 33 152) a été employée lors des essais d'aérosolisation en laboratoire. Pour chaque essai, une suspension bactérienne est réalisée à partir d'un aliquot stocké à -20°C et mis en culture sur la gélose spécifique des légionelles (BCYE α) pendant trois jours à 37°C ($\pm 1^{\circ}\text{C}$). La suspension est lavée trois fois par centrifugation à $8 \cdot 10^2$ g pendant 20 minutes ; le culot est remis en suspension dans de l'eau désionisée stérile. La densité bactérienne a été déterminée par une mesure de la turbidité à l'aide d'un spectromètre calibré avec des standards de formazine.

Banc d'aérosolisation. L'installation expérimentale (Ha *et al.*, 2004) est placée dans une zone de confinement biologique (classe III). L'aérosol de *L. pneumophila* a été produit à partir de la suspension bactérienne à l'aide d'un générateur développé par Ha *et al.* (2005). L'aérosol a été alors stocké dans une chambre (volume, 3dm^3) où sa concentration et sa taille ont été vérifiées avec un compteur optique de particules (Grimm GmbH). Pendant les essais, la température a été maintenue à 20°C ($\pm 1^{\circ}\text{C}$) et l'humidité relative était comprise entre 30 et 35%. Le bioaérosol produit a été prélevé en utilisant trois principes de collection : impaction sur agar (Andersen; diamètre de coupure : $0,65 \mu\text{m}$; débit : $28,3 \text{ l/min}$; volume de prélèvement : 8,5 litres d'air ; milieu de collection : BCYE α), impaction en milieu liquide (SKC Biosampler ; diamètre de coupure : $0,3 \mu\text{m}$; débit : $12,5 \text{ l/min}$; volume de

prélèvement : 125 litres d'air ; milieu de collection : eau distillée stérile) et filtration (collectron MD8, diamètre de coupure : 0,5 µm ; débit : 10 l/min ; volume de prélèvement : 10 litres d'air ; milieu de collection : membrane de nitrocellulose de 0,8 µm de diamètre de pore).

Trois essais indépendants ont été conduits pour chaque technique d'échantillonnage. Pour l'impaction sur agar BCYE α , les échantillons ont été directement placés à 37°C ($\pm 1^\circ\text{C}$). Pour les prélèvements par impaction en milieu liquide, 0,1 ml d'échantillon après dilution décimale ont étéensemencés sur BCYE α et incubation de la même manière. Pour le prélèvement par filtration, la membrane a été transférée aseptiquement sur une boîte de Pétri contenant le milieu BCYE α . Le taux de recouvrement bactérien a été estimé comme le ratio entre la concentration de *L. pneumophila* des aérosols (mesurée par le compteur de particules), et la concentration de légionelles cultivables aéroportées. En outre, pour effectuer la détection de *Legionella* aéroportée, la méthode d'hybridation *in situ* (FISH) a été appliquée sur les échantillons d'air prélevés par impingement. Le protocole utilisé est décrit ci-après.

2.2. Essais de terrain

Sites de prélèvements des maisons de retraite. Les prélèvements ont été effectués au niveau des douches utilisées par les résidents des maisons de retraite de Lorraine : il s'agit d'un prélèvement d'eau chaude et d'un prélèvement d'aérosol réalisés le même jour et de façon successive. La détection des légionelles a été effectuée par la méthode de référence, la culture sur gélose et par hybridation *in situ* (FISH). Ces prélèvements ont été réalisés dans 34 établissements de santé d'Octobre 2003 à Novembre 2005 et les conditions sont présentées ci-après.

Conditions de prélèvement de l'aérosol de douches. La totalité des prélèvements d'aérosols a été réalisée au point de douche dans des salles de bains des maisons de retraite. Les prélèvements se sont systématiquement déroulés fenêtres et portes fermées et systèmes de ventilation de la pièce arrêtés dans la mesure du possible.

Des prélèvements d'eau et d'air sont effectués à chaque point de douche. Un litre de d'eau chaude a été systématiquement échantillonné après environ 7 minutes de douche (durée moyenne d'une douche (USEPA, 1997). Le prélèvement de bioaérosol a commencé seulement après que le robinet de l'eau chaude ait été fermé, afin d'empêcher le prélèvement de gouttelettes d'eau. Les bioaérosols ont été prélevés en utilisant les mêmes principes de collection que dans les expériences de laboratoire (Tableau 1), excepté que le volume d'air prélevé était supérieur à ceux utilisés au laboratoire utilisant une souche pure de *L. pneumophila* à forte concentration ($\approx 10^6$ UFC/l). Les températures de l'air, et d'eau et l'humidité relative ont été enregistrées durant les prélèvements. Les appareils de biocollecte ont été mis en route en même temps. Chacun était distant d'environ 30 cm et placés à 80 cm du sol, le plus près possible de la cabine de douche. Les têtes de prélèvements de ces collecteurs étaient orientées vers le pommeau de douche.

Tableau 1. Caractéristiques des échantillonnages de bioaérosol lors des essais de terrain.

Principe de collecte	Echantillonneurs et milieu de recueil	Débit d'air (l/min)	Volume échantillonné (litres d'air)
Impaction sur agar	MAS 100 (Merck); BCYE α agar	100	500
Impingement	SKC Biosampler (Arelco); Eau distillée stérile	12,5	195
Filtration	Cassette Millipore; 0,2 µm de diamètre de pore - membrane polycarbonate	10	600

2.3. Détermination de la fraction de légionelles cultivables

La détermination de la fraction de *Legionella* cultivable a été adaptée de la méthode standard française AFNOR (2003), utilisant l'agar nutritif sélectif BCYE α . Les colonies de légionelles ont été détectées après une incubation de 7 jours à 37+1°C. Les résultats ont été exprimés en UFC (Unité Formant Colonie) par litre de l'eau ou en UFC par m³ d'air. La limite de détection était 10² UFC/l d'eau et 1.2 x 10⁴ UFC/ m³ air.

2.4. La méthodes d'hybridation in situ (FISH)

L'application de la technique FISH pour la détection des *Legionella* aéroportées a été décrite par Manz et al. (1995). La sonde oligonucléotidique LEG705 (5' CTGGTGTTCCTCCGATC-3') spécifique de l'ARN 16S de *Legionellaceae*, marqué avec la carbocyanine à son extrémité 5', a été employée pour détecter *Legionella* spp. (Manz et al., 1995 ; Aman et al., 1995). Brièvement, chaque échantillon a été filtré sur membrane blanche en polycarbonate de 0,2 µm de diamètre de pore (Millipore) et a été fixé

avec 3,7 % de formaldéhyde (vol/vol) pendant 30 minutes. La membrane a été lavée deux fois avec un tampon phosphates (pH 7,4), séchée à l'air et déshydratée avec 2 ml de concentrations croissantes d'éthanol (50, 80, et 95%, 3 minutes chacune). Puis 50 µl de solution d'hybridation contenant 50 ng de sonde marquée, ont été déposés sur la membrane. L'hybridation a été effectuée pendant 2 h à 46+1°C dans une chambre humide. Le filtre a été ensuite lavé deux fois avec une solution de lavage préchauffée à 46°C, séché et monté entre lame et lamelle. Les légionelles hybridées ont été visualisées par microscopie en épifluorescence avec un objectif à l'immersion X100 et sous lumière verte (λ excitation : 510 nm - λ émission 550 nm). Trente champs microscopiques ont été comptés, et les résultats ont été exprimés en *Legionella* par m³ d'air ou *Legionella* par litre d'eau.

3. Résultats

3.1. Essais en banc d'aérosolisation

Impact du principe de collecte sur la cultivabilité des *Legionella* aéroportées. Les résultats présentés figure 1 montrent que l'impaction en milieu liquide permet de détecter une légionelle cultivable parmi 10 particules aérosolisées. Par contre, pour l'impaction sur gélose et la filtration, respectivement 40 et 7 10³ légionelles aérosolisées sont nécessaires pour détecter une *L. pneumophila* cultivable. Le stress lié à la collecte se révèle donc moins important avec la méthode d'impaction en milieu liquide, suggérant qu'elle serait plus appropriée pour la détection de légionelles des aérosols.

L'application de la méthode FISH pour la détection de *Legionella* des aérosols. La détection des légionelles par la méthode FISH et la méthode culturale a été comparée sur les aérosols de *L. pneumophila* échantillonnés par impaction liquide. La concentration de légionelles détectée est respectivement à 9 10⁴ UFC/m³ d'air et de 7 10⁵ *Legionella*-FISH/m³ d'air (Figure 2).

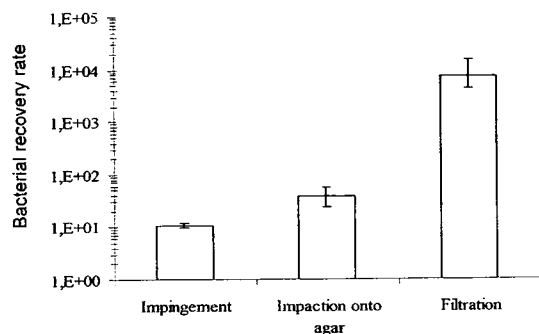


Figure 1. Ratio entre les concentrations de *L. pneumophila* dans l'aérosol et la fraction cultivable de légionelles, en fonction des trois principes de collecte testés (essais de laboratoire – les barres correspondent aux valeurs minimales et maximales – n=3).

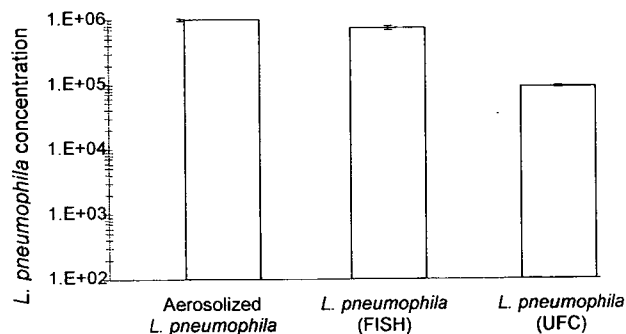


Figure 2. Concentrations de *L. pneumophila* aérosolisées (exprimées en particules/m³) et après collecte par impingement et détection par FISH et culture (essais de laboratoire – les barres correspondent à l'écart type - n= 3).

3.2. Etude des aérosols de douche

Sur 164 prélèvements d'aérosols, seuls 5 points de prélèvement présentent des colonies de légionelles cultivables détectées avec le MAS100®, alors qu'au même moment l'impinger SKC associé à l'analyse par hybridation *in situ* permet la détection de légionelles pour 47 (29%) prélèvements. Par ailleurs, aucune légionelle cultivable n'a été détectée avec l'impinger sur la totalité des prélèvements (Tableau 2). La contamination de l'aérosol par *Legionella* détectée par la technique FISH varie de la limite détection (3,0.10² *Legionella* hybridées/L air) à 1,7.10⁵ *Legionella* hybridées/L air. La majorité (75%) des échantillons d'aérosols de douche contaminés présente une concentration en légionelles supérieure ou égale à 10³ *Legionella* hybridées/L air. Toutefois, la population de légionelles ne constitue qu'une faible proportion (0,003%) de la population bactérienne totale de l'aérosol.

Tableau 2. Caractéristiques microbiologiques de l'aérosol produit lors des douches dans les maisons de retraite.

	Impaction en milieu liquide		Impaction sur gélose	
	<i>Legionella</i> cultivables (UFC/L d'air)	<i>Legionella</i> hybridées (Cellules/L d'air)	Bactéries totales (Cellules/L d'air)	<i>Legionella</i> cultivables (UFC/L d'air)
Echantillons positifs (%)	0/151 (0,0%)	47/164 (28,6%)	30/30 (100%)	5/164 (3,0%)
Moyenne géométrique ^a	—	$3,44 \times 10^3$	$1,61 \times 10^5$	$3,0 \times 10^{-3}$
Médiane ^a	—	$2,96 \times 10^3$	$8,46 \times 10^4$	$2,0 \times 10^{-3}$
Concentration maximum ^a	—	$1,69 \times 10^5$	$5,68 \times 10^6$	$4,0 \times 10^{-2}$
Concentration minimum ^a	—	$4,61 \times 10^2$	$3,01 \times 10^3$	$1,0 \times 10^{-3}$

^a calcul réalisé sur les échantillons positifs

Relation entre les niveaux de légionelles dans l'eau chaude et dans l'aérosol de douche. Les teneurs en légionelles dans les aérosols de douche sont liées aux teneurs de légionelles des eaux chaudes (Tableau 3). Plusieurs points clés méritent d'être soulignés à ce propos :

- Lorsque des légionelles ont été détectées dans l'aérosol (28,6%), *Legionella* a toujours été détectée parallèlement dans l'eau. Mais il ne s'agit pas d'une relation linéaire simple.
- Lorsque aucune *Legionella* n'a été détectée dans l'eau chaude des douches, aucune *Legionella* n'a été détectée dans leurs aérosols.
- Par contre, pour 52,4% des échantillons, aucune *Legionella* n'a été détectée dans l'aérosol, alors qu'elles l'étaient dans l'eau chaude.

Tableau 3. Présence combinée de *Legionella* détectée par hybridation *in situ* dans les eaux chaudes et les aérosols de douche.

	Matrice AIR positive ² (%)	Matrice AIR négative (%)
Matrice EAU positive ¹ (%)	28,6% (47/164)	52,4% (86/164)
Matrice EAU négative (%)	0% (0/164)	13,4% (22/164)

¹ $\geq 9.10^3$ *Legionella* hybridées.L⁻¹ eau ; ² $\geq 3.10^2$ *Legionella* hybridées.L⁻¹ air.

Une analyse plus fine à l'aide d'un modèle de régression logistique permet de conforter ces premières tendances : le risque de détecter des légionelles aérosolisées est croissant avec l'augmentation des concentrations de *Legionella* de l'eau chaude de douche : plus *Legionella* est détectée dans l'eau, plus le risque de détecter *Legionella* dans l'air est grand. En effet, il y a un risque 6,8 fois plus élevé (I.C. 95% = 2,6 - 47,1) de détecter *Legionella* dans l'aérosol quand la concentration dans l'eau chaude est supérieure à 10^5 *Legionella*-FISH/L.

4. Conclusions

Les résultats de cette étude ont permis de montrer que seule l'impaction en milieu liquide couplée à une analyse par hybridation *in situ* (FISH) s'est révélée adaptée à la mesure des légionelles aéroportées. Par ailleurs, nous avons également établi une relation explicite entre les niveaux de légionelles dans l'eau chaude et le risque de leur présence dans les aérosols de douche : il y a un risque 6,8 fois plus élevé de détecter *Legionella* dans l'aérosol quand la concentration dans l'eau chaude est supérieure à 10^5 *Legionella*-FISH/L. Enfin, nos essais ont permis de révéler à nouveau que la méthode culturale était, dans nos conditions d'essais, inadaptée car sous-évaluant le nombre de légionelles. Ces résultats suggèrent qu'il serait nécessaire de reconsidérer l'actuelle approche préventive, limitée dans son champ d'application au compartiment hydrique des légionelles. Ainsi, le développement des mesurages aériens de légionelles permettrait de donner une vision plus réaliste de l'exposition, méconnue à ce jour et sous-explorée, faute de métrologies adéquates.

5. Références bibliographiques

- A.F.N.O.R. (2003) Recherche et dénombrement des *Legionella* et *Legionella pneumophila*, Norme AFNOR T90-431, Septembre 2003.
- Amann R.I., Ludwig W. & Schleifer K.H. (1995) Phylogenetic identification and in situ detection of individual microbial cells without cultivation, *Microbiol. Rev.*, 59(1), 143-149.
- Ha T.L., Deloge M., Mathieu L., Robine E. (2004) Design of an experimental chamber to study aerosols of *legionella*. 19 th Annual Meeting of the European Working Group for *Legionella* Infections, Chamonix Mont Blanc, France 15-18 May.
- Ha T.L. Deloge M., Mathieu L., Robine E. (2005) Metrology of *Legionella* aerosols: from a laboratory approach to a field evaluation of sampling and detection methods. 6th International Conference on *Legionella*, Chicago, US, 16-20 october
- Manz W., Amann R., Szewzyk R., Szewzyk U., Strenström T.A., Hutzler P. & Schleifer K.H. (1995) In situ identification of *Legionellaceae* using 16S rRNA-targeted oligonucleotide probes and confocal laser scanning microscopy, *Microbiology*, 141, 29-39.
- United States Environmental Protection Agency (U.S. EPA), Exposure Factors Handbook, U.S. EPA, Washington, DC, 1997.

ETUDE DE L'EXPOSITION AUX AEROSOLS VIRAUX DANS LES ENVIRONNEMENTS INTERIEURS

Guillaume HERSEN * (1, 2), Enric ROBINE (1), Marina MOLETTA (1), Chantal DEVARE (1, 2),
Evelyne GEHIN (2), François FREYMUTH (3) et Astrid VABRET (3)

(1) Laboratoire de Microbiologie des Environnements Intérieurs, Centre Scientifique et Technique du
Bâtiment Champs sur Marne

(2) Centre d'Etude et de Recherche en Thermique, Environnement et Système, Université Paris XII,
Créteil

(3) Laboratoire de Virologie Humaine et Moléculaire, CHU Clémenceau Caen

TITLE: Study of the exposition to viral aerosol in indoor environments

ABSTRACT: People who are ill easily emit particles in the air when they talk, sneeze or cough. Such particles are likely to contaminate another close person. The presence of ultra fine particles in these emissions has not been shown yet because of a lack of a proper measurement device. The aim of the present work is to characterize the emission of respiratory secretions of people infected by respiratory viruses. We designed a device based on a special hood connected to an electrical low pressure impactor. Results show a direct link between the sickness state of the tested subject and the total concentration of emitted particles. This concentration is usually undetectable for healthy subject and can increase to 40000 p/cc for an infected subject. Moreover, the particle size remains stable and shows a peak at 0.15 micrometers.

RESUME: Un individu malade, lorsqu'il parle, tousse ou éternue émet un aérosol susceptible de contaminer une personne saine. La présence de particules virales ultrafines dans ces émissions n'a, à ce jour, pas pu être mise en évidence, faute de matériel adapté. L'objectif du présent travail vise ainsi la caractérisation des émissions rhinopharyngées d'individus souffrants d'infections à virus respiratoires. Pour ce faire un montage constitué d'une cagoule ventilée modifiée et connectée à un impacteur basse pression à détection électrique (ELPI) a été mis au point. Les résultats obtenus montrent que l'état de santé du sujet a un impact direct sur la concentration totale de l'aérosol émis. Ainsi, un individu malade émet un aérosol pouvant aller jusqu'à 40000 p/cc alors que celui émis par un individu sain n'a pas pu être détecté. Par ailleurs, la granulométrie obtenue reste stable et présente un mode à 0,15 micromètres.

INTRODUCTION

Les infections à virus respiratoires représentent une proportion importante de l'étiologie directe ou indirecte des pneumonies infantiles comme la bronchiolite. La transmission de ces infections est principalement interhumaine et peut s'effectuer par contact direct ou par le biais d'aérosols produits à l'occasion d'épisodes de toux ou d'éternuements et pouvant contenir des particules infectieuses. Parmi les facteurs jouant un rôle dans l'aérocontamination virale, la taille des particules est un critère essentiel pour estimer l'exposition des individus.

Les particules ultrafines présentent notamment un taux de déposition important dans l'arbre respiratoire. Par ailleurs, dans ce domaine de taille le phénomène de sédimentation est limité ($6,7 \cdot 10^{-6}$ cm/s pour une particule de $0,1 \mu\text{m}$; Renoux A. et Boulaud D. 1998), elles peuvent potentiellement séjourner longtemps dans les environnements intérieurs et présenter un risque d'exposition accrue pour les individus.

La caractérisation des émissions rhinopharyngées est très peu documentée. Nous avons résumé dans le Tableau I les principaux travaux publiés à ce jour.

Année	Auteurs	Taille observée	Méthodologie employée
1946	Duguid	95 % des particules inférieures à 100 µm	Le sujet tousse devant une plaque de collecte. La taille des gouttelettes impactées est mesurée par observation au microscope
1966	Gerone <i>et al.</i>	Majorité des particules inférieure à 1 µm	Le sujet (préalablement infecté par Coxsackievirus A-21) tousse dans un volume de 127 litres. Les particules émises sont mesurées à l'aide d'un Andersen multi-étages et d'un compteur optique de particules.
1997	Papineni and Rosenthal	Majorité des particules inférieure à 0,6 µm	Le sujet tousse dans un tube relié à un compteur optique de particules (limite de détection à 0,3 µm).

Tableau I : Récapitulatif des études traitant de la caractérisation physique des émissions rhinopharyngées

Si ces travaux permettent d'estimer la granulométrie des aérosols rhinopharyngés pour les particules fines à super-microniques, ils ne permettent pas, en revanche, de caractériser ces émissions concernant le domaine des ultrafines. De plus, les différentes méthodologies employées dans ces travaux ainsi que la méconnaissance de l'état de santé des sujets examinés, rendent leur interprétation délicate.

Dans ce contexte, l'objectif de cette étude a porté sur la caractérisation des aérosols et bioaérosols, y compris les ultrafins, émis à l'occasion d'une toux provoquée chez des patients atteints d'une virose respiratoire. Les éléments méthodologiques et les premiers résultats de cette étude sont présentés dans cet article.

METHODOLOGIE

Sujets examinés

Cette recherche a initialement porté sur un échantillon de six volontaires, trois femmes et trois hommes de 23 à 50 ans dont l'état de santé va de l'absence de symptôme à la présence de symptômes intenses : quinte de toux, écoulement nasal, fièvre. Les expériences ont été effectuées en 2005 et 2006 à la même période (octobre - novembre).

Montage d'étude

Le dispositif réalisé (Figure 1) est basé sur l'utilisation d'un casque ventilé de type cagoule (Protector Tornado T9) couplé à une chaîne de mesure des aérosols. La cagoule soufflé de l'air ambiant filtré à un débit de 140 litres par minute.

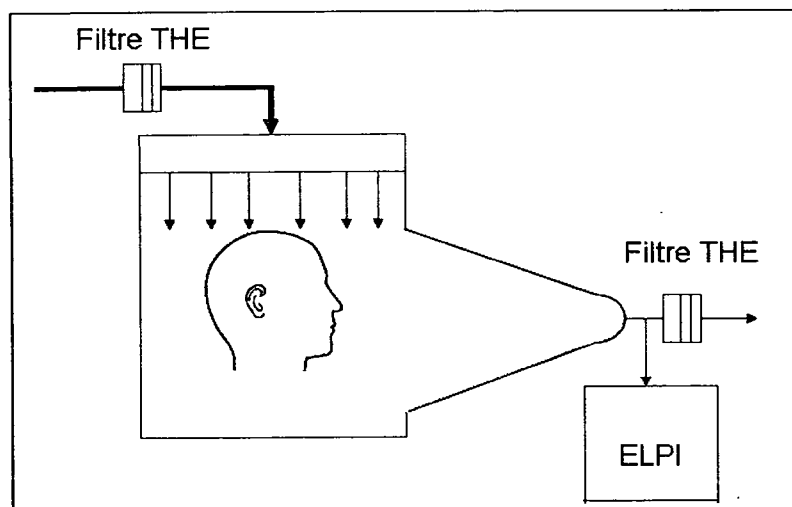


Figure 1 : schéma de principe du montage réalisé

Un impacteur basse pression à détection électrique ELPI (Dekati) comportant 13 étages de collecte est utilisé pour mesurer les concentrations et la taille des aérosols émis. Dans cet appareil, les particules sont chargées puis collectées en fonction de leur diamètre aérodynamique. A chaque étage de l'impacteur, un électromètre détecte les charges des particules déposées. Le domaine de taille observé concerne les particules comprises entre 7 nm et 10 µm ; le débit de prélèvement est de 10 litres par minute. Des filtres en polycarbonate de 25 mm de diamètre (Millipore) sont positionnés sur chaque étage de l'impacteur en vue de l'analyse biologique ultérieure.

Les phénomènes de rebond des particules sur les plaques de collecte, inhérent à ce type de technique, ont été réduits par l'ajout de 50 µl de glycérol (VWR Prolabo ; pureté : 99,65%) sur les filtres. La comparaison des profils granulométriques moyens obtenus avec et sans glycérol est présenté Figure 2. Cette expérience a été réalisée avec un aérosol de bactériophage proche du rhinovirus, virus responsable du rhume.

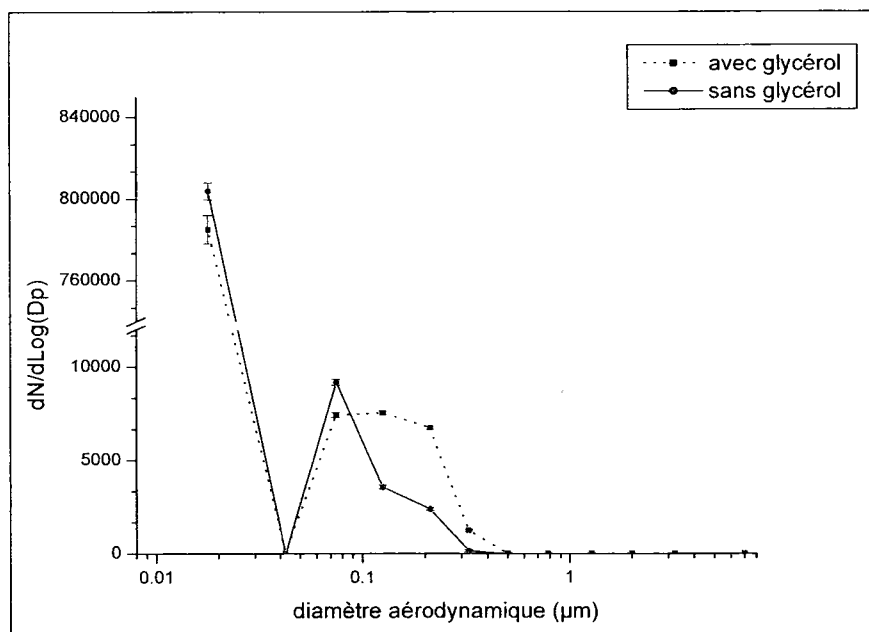


Figure 2 : profils granulométriques moyens obtenus avec et sans glycérol (n=30 ; erreur = 2σ).

La présence de glycérol a un impact visible sur le profil granulométrique, essentiellement pour les particules comprises entre 100 nm et 300 nm. La concentration de ces particules augmente en présence de glycérol alors que les particules inférieures à 100 nm sont en plus faibles concentrations.

Par ailleurs nous avons vérifié que le glycérol ne constituait pas un inhibiteur pour le dosage moléculaire exécuté sur les fractions collectées.

Analyse biologique des fractions collectées

Les analyses biologiques sont réalisées au Laboratoire de Virologie Humaine et Moléculaire du CHU Clémenceau à Caen.

Les virus recherchés sont les rhinovirus, les entérovirus, les virus parainfluenza 1, 2, 3 et 4, les virus influenza A et B ainsi que les Virus Respiratoires Syncytial (VRS) et Métapneumovirus humain (HMPV). La recherche de ces virus est réalisée par PCR à partir des filtres, à l'aide de systèmes développés par le laboratoire de virologie humaine et moléculaire.

PREMIERS RESULTATS

Caractérisation du montage

Afin d'estimer les pertes particulières dans le système, nous avons comparé les mesures obtenues lors de la production d'un aérosol directement dans l'ELPI et lorsque celui-ci est produit à l'intérieur même de la cagoule. La suspension aérosolisée est une dilution au dixième d'une solution pour pulvérisation endo-buccale prescrite en cas de réduction ou d'absence de sécrétions salivaires (Artisial, Laboratoire Chemineau). L'aérosol est produit à l'aide d'un nébuliseur Collison (BGI) à un débit de 6 l/min. L'aérosol est séché et homogénéisé dans une sphère en verre de deux litres (Belleville) avec de l'air sec filtré (10 l/min).

Les profils granulométriques obtenus pour les différentes configurations ont la même allure et présentent un mode à 150 nm ainsi qu'une majorité de particules ultrafines (Figure 3). Une perte allant de 40 % à 70% est observée pour les particules comprises entre 100 nm et 400 nm ainsi que pour celles de 800 nm. Les particules supérieures à 3 µm sont quant à elles complètement perdues. En revanche, les particules de 40 nm, 0,5 µm et 1,5 µm semblent préservées.

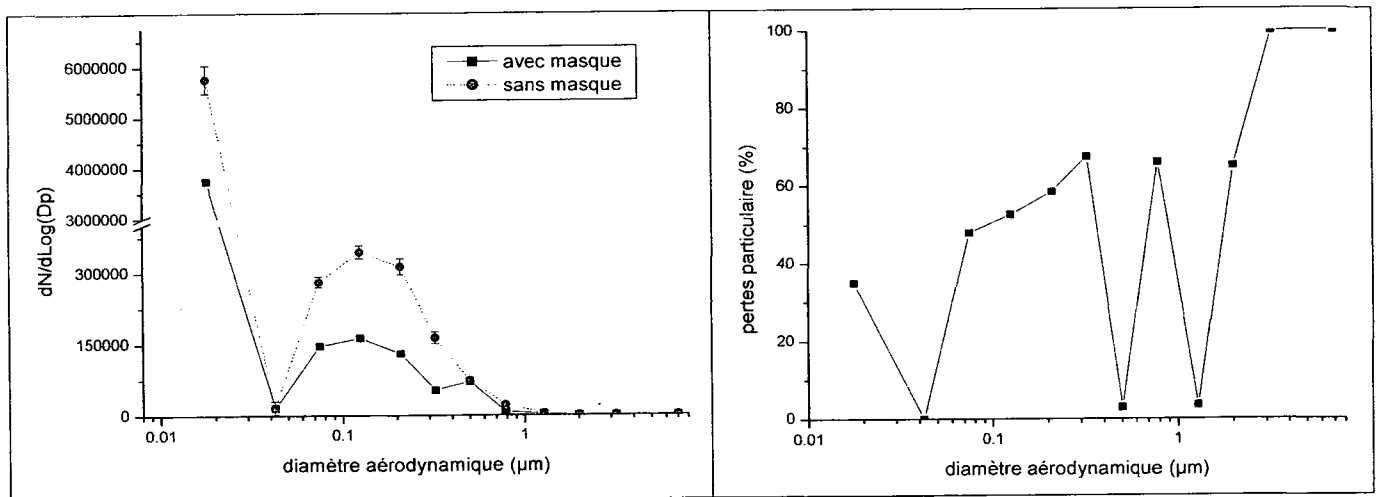


Figure 3 : A gauche : profils granulométriques obtenus avec et sans le masque (n= 30 ; erreur = 2σ) ; A droite : pourcentage de perte dans le montage en fonction du diamètre des particules.

Il apparaît donc que, bien que le système ne permette pas de collecter l'ensemble des particules produites, les granulométries obtenues présentent des allures semblables avec un mode à 150 nm.

En revanche, la difficulté à produire un aérosol ressemblant plus à une toux, notamment en terme de vitesse, ne nous a pas permis de nous approcher plus de la réalité concernant les pertes particulaires.

Caractérisation des émissions

A ce jour, les analyses biologiques sont en cours de réalisation. Les pathologies des volontaires ne sont donc pas encore connues. Cependant, il est possible de classer les sujets selon l'intensité des symptômes ressentis. Il apparaît 3 types d'individus : les individus sains qui ne présentent aucun symptôme (3 individus), les individus en phase de rétablissement (2 individus) qui présentent des symptômes peu intenses (faible toux, absence de céphalée) et les sujets malades qui présentent des symptômes intenses avec notamment des quintes de toux non contrôlées et des fortes céphalées (un seul individu).

Individus sains :

Les émissions rhinopharyngées des individus non malades sont difficiles à caractériser car les concentrations particulaires atteintes ne sont pas suffisantes pour discerner les épisodes de toux du bruit de fond. Une analyse de variance entre les concentrations particulaires obtenues dans l'air filtré et lors des toux ne montre pas de différence significative entre les deux. Il n'a donc pas été possible d'établir un profil granulométrique des émissions rhinopharyngées de ces individus.

Les résultats obtenus dans la littérature pour des individus sains (Papineni R.S. and Rosenthal F.S. 1997) ont permis d'établir une granulométrie des émissions rhinopharyngées, mais uniquement pour des particules de taille supérieure à 0,6 µm.

Individus en phase de rétablissement :

Chez ces deux sujets, les concentrations totales observées varient peu d'un individu à un autre et vont de 1800 particules/cc à 2500 particules/cc lors de la toux. Une analyse de variance entre les périodes de bruit de fonds et les séquences de toux chez le sujet produisant la concentration la plus faible a montré une différence significative à 99%. Il est donc possible de caractériser les émissions de ces individus.

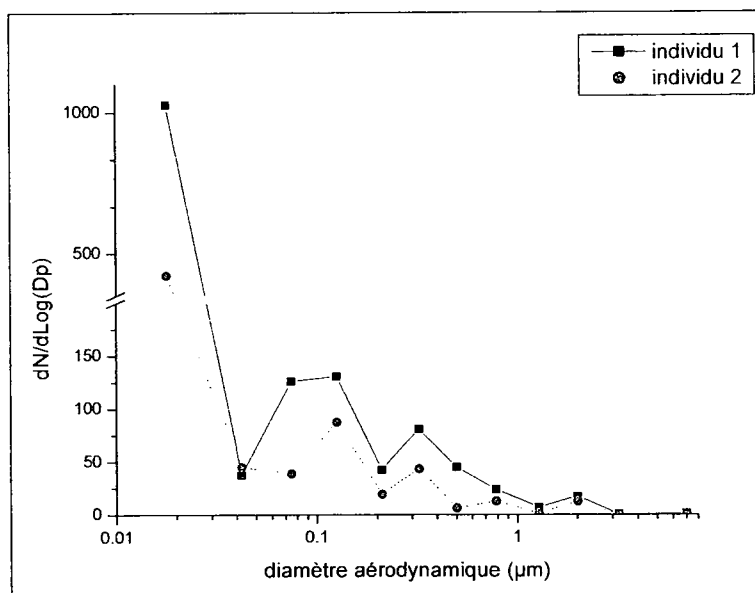


Figure 4 : Profils granulométriques d'un épisode de toux pour chacun des deux individus en phase de rétablissement

Ces profils granulométriques ont été obtenus pour deux épisodes de toux pour chacune de ces deux personnes. Ils présentent une allure semblable avec un mode à 100 nm et une proportion importante de particules inférieures à 40 nm. En revanche les particules super-microniques sont peu représentées. Par ailleurs, le nombre très limité de sujets rend difficile l'interprétation de ces résultats.

Individu malade

Parmi les volontaires, un seul présente des quintes de toux non provoquées. Ses émissions rhinopharyngées atteignent des concentrations beaucoup plus importantes que pour les autres sujets. Comme le montre la figure suivante (Figure 5), les émissions sont très facilement distinguables du bruit de fond.

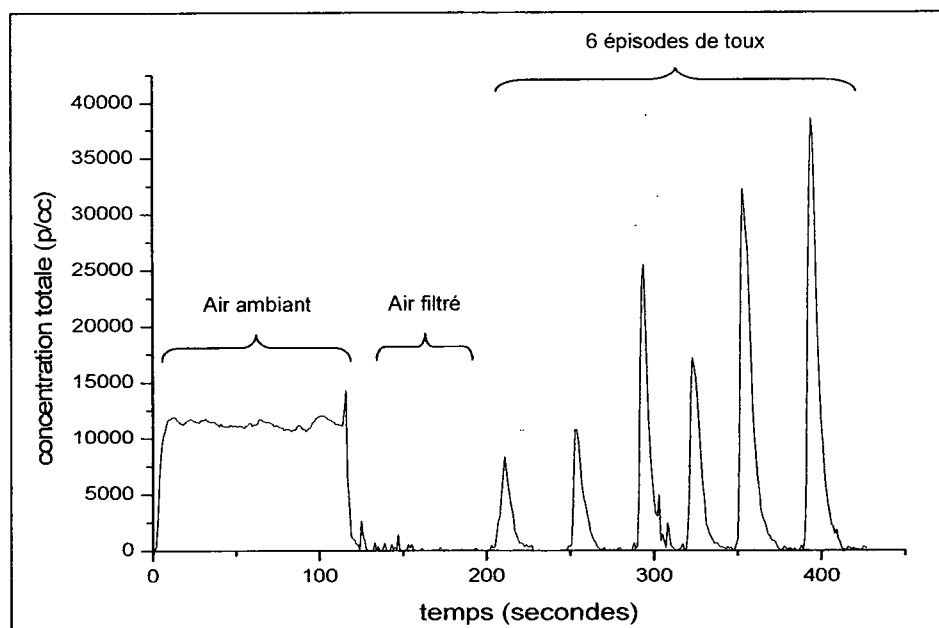


Figure 5 : concentrations totales émises au cours du temps par un individu présentant des symptômes intenses

La concentration totale en particules tend à augmenter à chaque épisode de toux. Elle passe en moyenne de 8 000 particules/cc pour la première quinte de toux à près de 40 000 particules/cc au sixième épisode de toux ce qui représente presque quatre fois la quantité mesurée pour l'air ambiant.

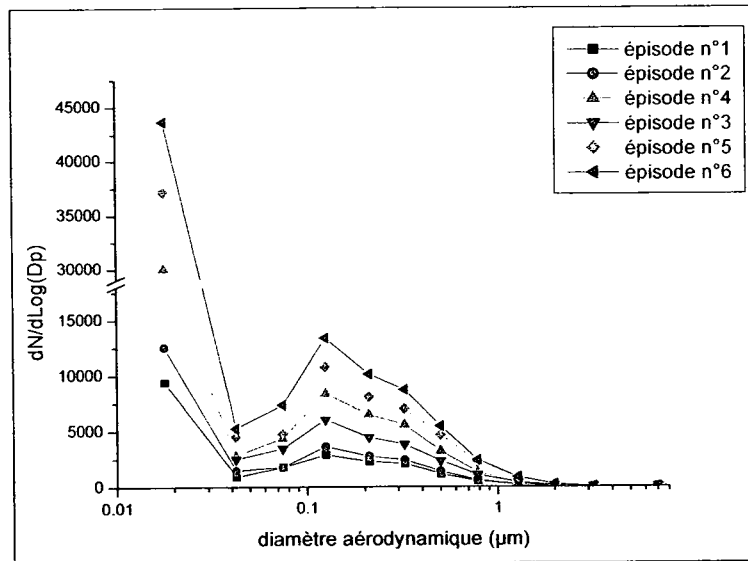


Figure 6 : profils granulométriques obtenus avec un individu malade sur 6 épisodes de toux

La granulométrie obtenue reste stable lors des différents épisodes de toux et présente un mode à 150 nm ainsi qu'une majorité de particules inférieures à 40 nm. En revanche, les particules supérieures à un micromètre sont relativement peu représentées avec moins de 1 % des aérosols mesurés.

Les faibles concentrations observées pour les particules super-micrométriques peuvent être dues à des pertes par impaction dans le montage dues aux vitesses très importantes que peut atteindre la toux.

Par ailleurs, la difficulté à trouver des volontaires explique la taille réduite de l'échantillon exposé dans ce travail. Pour pallier à ce problème, l'étude se poursuivra pendant tout l'hiver 2006.

CONCLUSION

A ce jour, aucune étude n'avait permis, faute de matériel adapté, d'étudier les émissions rhinopharyngées dans des gammes de tailles inférieures à 0,6 µm. Ces particules, de par leur vitesse de sédimentation très faible et leur taux de déposition dans les poumons important représentent un risque potentiel pendant les périodes épidémiques. Dans cette étude, l'utilisation de l'ELPI associé à un montage adapté a permis de mettre en évidence la présence de particules ultrafines dans ces émissions.

Les résultats obtenus semblent montrer que l'état de santé d'un individu a un impact direct sur la concentration et la granulométrie de ses émissions rhinopharyngées, les individus malades émettant des aérosols dont la concentration est très nettement supérieure à celle des émissions des individus sains avec une grande proportion de particules ultrafines. Dans le cas d'une infection virale, on peut d'ailleurs supposer que des virus infectieux soient présents dans ces aérosols.

Par la suite, les analyses biologiques devraient permettre d'identifier la nature de l'agent biologique et de déterminer dans quelles gammes de tailles les virus sont réellement présents.

Cette première approche nous a ainsi permis d'envisager qu'il y a des différences entre les individus sains et les sujets malades. Des tests complémentaires menés sur plus de volontaires sont donc pertinents et permettront également de consolider la méthode. Ces éléments seront déterminants pour améliorer notre connaissance sur l'exposition aux virus respiratoires.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Duguid, J.P. (1946). The size and duration of air carriage of respiratory droplets and droplet nuclei. *J. Hyg.* 44: 471-479.
- Gerone, P.J., Couch, R.B., Keefer, V.G., Douglas, R.G., Derrenbacher, E.B., Knight, V. (1966). Assessment of experimental and natural viral aerosols. *Bacteriological Reviews*: 576-584.
- Papineni, R.S. and Rosenthal, F.S. (1997). The size distribution of droplets in the exhaled breath of healthy human subjects. *journal of aerosol medicine* 10(2): 105-116.
- Renoux A. and Boulaud D. (1998). Les aérosols; physique et métrologie, lavoisier tec et doc.

CARACTERISATION ET EVOLUTION DE PARTICULES DANS UNE CHAINE LASER DE PUISSANCE

S. Palmier*, S. Garcia*, L. Lamaignère*, M. Loiseau*, T. Donval*, J.L. Rullier*, I. Tovenas*, E. Sellier**, L. Servant***

*CEA / CESTA, Département des Lasers de Puissance, Le Barp, France

**CREMEM, Université de Bordeaux 1, France

***LPCM, Université de Bordeaux 1, France

TITLE

Characterization and Evolution of particle contaminants in a Powerful Laser Chain

ABSTRACT

In the context of the Laser Mégajoule project, an experimental program was established to evaluate the effect of aerosols on optical components under laser irradiation. For this purpose, we used the Ligne d'Intégration Laser (LIL) which is the LMJ prototype. In this paper, we concentrate on the Frequency Conversion and Focusing System (SCF). The first step consists in aerosol characterization. A contamination constituted essentially by mineral particles of diameter $< 5\mu\text{m}$ was detected after each laser shot with an energy greater than 1 kJ. This contamination may reach a very high particle concentration if several days have passed without laser shots. However, following the shot, it decreases to zero in a few hours. The second step is the characterization of aerosols deposited on SCF surfaces. The surface concentration reaches 3 particles/cm²/day for particles whose size is larger than $3\mu\text{m}$. Most of these particles are mineral and more precisely, silica. The last step consists in measuring the impact of the laser on contaminated optical surfaces in the SCF. The laser features are a 355-nm wavelength, 2.5 ns pulse duration and a 10 J/cm² fluence. After several irradiations no damage was observed. We show a cleaning effect that is efficient for particles of size larger than $10\mu\text{m}$.

RESUME

Dans le cadre du projet Laser Mégajoule (LMJ), une étude a été réalisée pour évaluer l'effet des aérosols déposés sur des composants optiques soumis au flux laser. Un programme expérimental utilisant le prototype du LMJ, la Ligne d'Intégration Laser (LIL) a été établi. Dans cet article nous nous concentrons sur un ensemble optomécanique de la LIL : le Système de Conversion de Fréquence et de Focalisation (SCF). La première étape est la caractérisation des aérosols présents dans l'air ambiant du SCF. Une pollution constituée de particules de diamètre compris entre $0,3\mu\text{m}$ et $5\mu\text{m}$ (essentiellement d'origine minérale) a été mise en évidence lors de tirs laser d'énergie supérieure à 1 kJ à 351 nm. Cette pollution peut atteindre une concentration volumique très importante juste après une irradiation si plusieurs jours se sont écoulés sans tir laser. Mais dans tous les cas, elle devient rapidement nulle deux heures après le tir. La deuxième étape consiste à caractériser les aérosols qui se déposent par sédimentation sur les surfaces du SCF. La concentration surfacique peut atteindre jusqu'à 3 particules/cm²/jour de dimension supérieure à $3\mu\text{m}$. Cette pollution est également constituée à 90 % d'aérosols d'origine minérale. La dernière étape consiste à évaluer l'impact du laser sur des surfaces en silice, de même type que les composants optiques du LMJ, polluées dans le SCF. L'irradiation à 355 nm avec une durée d'impulsion de 2,5 ns et une fluence de 10 J/cm² n'a montré aucun endommagement laser. Au contraire, le comptage des particules avant et après irradiation révèle un effet de nettoyage laser très efficace pour les particules de dimension supérieure à $10\mu\text{m}$. Ce travail ouvre la voie à l'utilisation d'un moyen d'irradiations pour le nettoyage des optiques dans une chaîne laser de puissance.

1. Introduction

Le Laser Mégajoule¹ (LMJ) est un des trois piliers du programme Simulation de la Direction des Applications Militaires du Commissariat à l'Energie Atomique (CEA/DAM). Il est actuellement en construction sur le site du Centre d'Etudes Scientifiques et Techniques d'Aquitaine. Une des grandes préoccupations du CEA est le coût d'exploitation de cette énorme machine, qui est principalement lié à la durée de vie des composants optiques sous flux laser intense. Cette durée de vie est dépendante de la qualité des composants optiques² et peut être de la pollution particulaire subie par les surfaces optiques^{3, 4}. Pour étudier cette pollution, nous profitons du prototype du LMJ, la Ligne d'Intégration Laser (LIL)⁵ dont le fonctionnement est représentatif de celui du LMJ. De plus, il a été montré que des aérosols peuvent être émis dans la LIL notamment par le personnel intervenant et le vieillissement des matériaux environnants^{6, 7}. La zone d'intérêt de cette étude est plus précisément le Système de Conversion de fréquence et de Focalisation (SCF). Cet élément optomécanique peut être

particulièrement sensible à la pollution car il est situé en fin de chaîne où l'énergie laser peut être très élevée. Notre étude se décompose en trois phases. La première consiste à caractériser les aérosols en suspension dans l'environnement du SCF. La deuxième concerne la caractérisation des aérosols déposés sur les surfaces du SCF. Puisque la présence de ces aérosols sur les composants optiques pourrait jouer un rôle dans le processus d'endommagement laser, la dernière phase consiste à tester sous flux laser à 355 nm des échantillons de silice représentatifs des composants optiques du LMJ et pollués dans le SCF. La procédure expérimentale est décrite dans la deuxième partie de cet article, puis les résultats de caractérisation et ceux obtenus après irradiation laser sont présentés et discutés dans la troisième.

2. Procédure expérimentale

La procédure expérimentale se décompose en trois étapes : la préparation des substrats, le prélèvement d'aérosols et l'exploitation des différents substrats pollués. Chaque étape est développée dans cette partie.

2.1. Etat initial des substrats

Nous utilisons trois types de substrats : des membranes en polycarbonate, des pastilles adhésives carbonées et des substrats de silice traitée antireflet. La préparation de chacun a pour but de déterminer son état de surface initial avant de l'exposer à la pollution émise dans l'environnement du SCF.

- Un compteur optique de particules de type GRIMM série 1100 muni de dix canaux de 0,3 à 20 μm et de débit 1,2 L/min est utilisé pour comptabiliser les aérosols, présents dans l'environnement, au cours du temps. Ce compteur contient une membrane en polycarbonate de 47 mm de diamètre. Ce filtre collecte toutes les particules aspirées. La caractérisation par Microscope Electronique Balayage couplé à un Spectromètre à Dispersion d'Energie (MEB/EDS) des particules présentes sur la membrane permet de connaître la composition chimique des aérosols collectés. Une membrane non exposée à l'environnement (issue du même lot) est caractérisée comme témoin de l'état initial.
- Les pastilles adhésives carbonées de 12 mm de diamètre sont placées dans ce même environnement pour récolter les aérosols déposés par sédimentation. Ces supports servent également à caractériser les particules ainsi collectées au moyen du MEB/EDS. Une pastille carbonée témoin (issue du même lot) est utilisée pour évaluer l'état initial.
- Les substrats de silice traitée antireflet sont des disques de 25 mm de diamètre superpolis et traités antireflet par la méthode sol gel⁶. Leur surface est représentative de celle des composants optiques de la LIL. Positionnés dans le SCF, ils collectent les aérosols déposés par sédimentation pour ensuite évaluer l'influence du rayonnement laser sur une surface optique polluée. Ces substrats sont préalablement nettoyés par aspersion d'éthanol et séchés par jet d'azote ultra pur. Ils sont ensuite observés au microscope optique. Celui-ci est un Leica DMLM équipé d'une platine automatisée contrôlée par un logiciel appelé Filtrex de chez Microvision. Il permet de scanner et d'acquérir automatiquement une série d'images recouvrant toute la surface du substrat. En visualisant toutes les images enregistrées, le nombre et le diamètre des particules sont déterminés. Les particules représentant le bruit de fond sont ainsi caractérisées.

2.2. Prélèvement de particules

Le SCF est un élément majeur de la LIL : il convertit la fréquence du faisceau laser de 1053 nm à 351 nm et le focalise sur la cible. Cet ensemble optomécanique est constitué d'une structure métallique dans laquelle s'insèrent des réseaux dits 1ω qui diffractent le faisceau laser infrarouge, des cristaux convertisseurs de fréquence et des réseaux 3ω qui focalisent le faisceau alors converti dans l'ultraviolet. Il est localisé dans un environnement schématisé sur la figure 2.

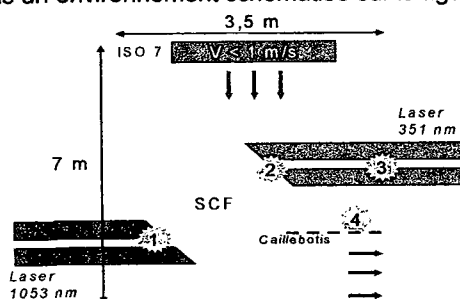


Figure 1 : Schéma de l'environnement du SCF.

L'environnement du SCF est une salle propre classée ISO 7⁹ équipée d'une ventilation d'air. Son niveau de propreté correspond à une concentration maximale de 0,35 particules/cm³ de dimension supérieure ou égale à 0,5 µm. La température ambiante est de 21°C pour un taux d'hygrométrie de 50 %. La figure 1 montre les différentes zones, notées de 1 à 4, où ont été placés les différents collecteurs. La zone 1 est localisée devant les réseaux 1ω. La zone 2 se situe derrière les réseaux 3ω sur la structure métallique localisés sous les composants. la zone 3 est juste devant le hublot qui sert de limite de vide entre l'environnement du SCF et celui de la chambre d'expérience où se situe la cible. Sur chacune de ces trois zones, une pastille carbonée et un substrat de silice traité antireflet sont positionnés horizontalement. la zone 4 est en contre bas légèrement excentrée par rapport au SCF. Un compteur de particules et une pastille carbonée sont placés dans cette zone sur des caillebotis. Les substrats positionnés dans les zones 1, 2 et 3 ont été retirés du SCF au bout de 48 jours alors que le compteur et le substrat de la zone 4 au bout de 21 jours.

2.3. Caractérisation des aérosols

Pendant les trois semaines de fonctionnement du compteur de particules dans la zone 4, plus de 500 mesures ont été réalisées ; soit une mesure toutes les heures. A chaque mesure, les particules de dimension supérieure à 0,3 µm sont détectées et enregistrées par taille. La membrane en polycarbonate qui sert de filtre au compteur est remplacée tous les 7 jours. Afin de déterminer la composition chimique élémentaire des aérosols, chaque membrane est métallisée à l'or pour l'analyse au MEB/EDS. Les particules sont réparties en trois catégories (organique, minérale ou métallique) à partir du spectre X et du cliché MEB. Les particules d'origine organique sont essentiellement composées de carbone, les particules d'origine métallique de métaux et celles d'origine minérale contiennent des éléments majeurs autre que le carbone. Ces caractérisations des aérosols fournissent la concentration volumique et la distribution granulométrique toutes les heures ainsi que la composition chimique élémentaire de chaque particule collectée.

2.4. Caractérisation des aérosols après sédimentation

Après avoir été retirées du SCF, toutes les pastilles carbonées sont analysées au MEB/EDS. Elles sont également métallisées à l'or. Pour chacune des particules observées, le diamètre et la composition chimique élémentaire sont déterminés. D'après le nombre de particules et leur diamètre, nous en déduisons une concentration surfacique de particules par classe de taille : 3-5 µm, 5-10 µm, 10-20 µm, et supérieure à 20 µm. Parallèlement, à partir du cliché MEB et du spectre X, les particules sont classées comme précédemment en trois catégories : organique, métallique, et minérale.

2.5. Irradiation des substrats de silice pollués

Après avoir été retirées du SCF, chaque substrat de silice traité antireflet est observé au microscope optique. Il est ensuite placé verticalement sur un banc de métrologie afin d'être irradié à 355 nm à une fluence de 10 J/cm². Le banc de tenue au flux utilisé est équipé d'un laser YAG :Nd de durée d'impulsion de 2,5 ns à 355 nm. Son taux de répétition est de 10 Hz. Le faisceau laser est focalisé par une lentille de 5 m de focale pour obtenir un faisceau gaussien de 0,6 mm de diamètre à 1/e. Les substrats sont irradiés en mode « Raster scan ». Cette procédure consiste à irradier de façon quasi uniforme une surface optique par recouvrement de faisceau afin de simuler un faisceau de diamètre plus important tel que celui de la LIL.

Après irradiation, les substrats sont placés sur le microscope optique, de manière identique aux précédentes observations. Une nouvelle acquisition d'images est réalisée. Chaque image est comparée une par une avec celle prise avant irradiation afin de déterminer la présence d'endommagement laser et de comptabiliser, en fonction de leur taille, les particules qui ont survécu à l'irradiation.

3. Résultats

3.1. Caractérisation des aérosols

Sur toute la semaine du 7 au 14 décembre 2005, une seule mesure s'approche du seuil fixé par la norme ISO 14644-1 laquelle autorise une concentration maximale de 0,35 part/cm³ de dimension supérieure à 0,5 µm. Dans les trois heures qui suivent la mesure de cette pollution élevée, la valeur mesurée atteint le niveau du bruit de fond. Par conséquent, la mesure n'étant pas réalisée à l'instant précis du tir laser, nous pouvons supposer que la concentration de particules émises dans le volume est encore plus élevée.

Pour cette même semaine, les concentrations des particules supérieures à 0,3 µm enregistrées toutes les heures par le compteur optique sont représentées sur la figure 2. Pendant cette période, 6

tirs laser, notés de 0 à 6, ont été réalisés et sont indiqués par des flèches ainsi que l'énergie obtenue à 351 nm pour chacun.

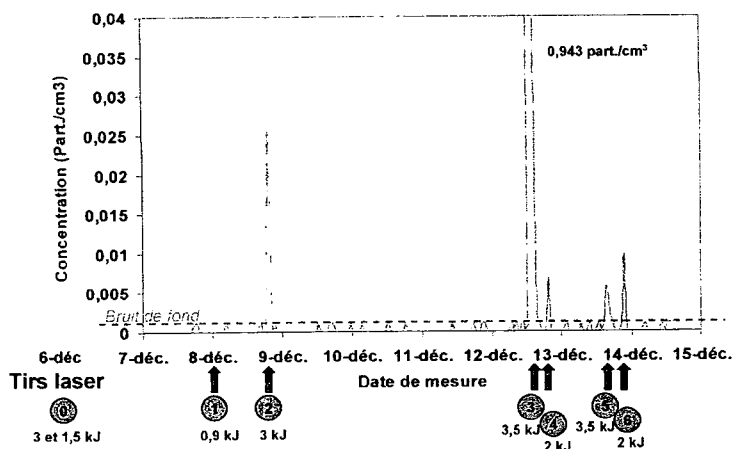


Figure 2 : Concentration de particules dans le SCF mesurée par compteur optique.

Seules quelques mesures montrent une concentration de particules plus élevée que le bruit de fond. Tous les pics d'émission de particules correspondent à un tir laser. Le tir 1 à 0,9 kJ semble trop faible pour provoquer une émission de particules alors que des tirs de 2 kJ induisent une concentration de particules significative. Mais l'énergie du tir ne semble pas être proportionnelle à la concentration. En effet après les deux tirs 3 et 5 de même énergie (3,5 kJ), une concentration très différente est mesurée (0,943 et 0,006 part./cm³). Par contre, la figure montre que l'absence de tir pendant plusieurs jours (9-11 déc.) induit l'émission d'une très forte concentration de particules lors du tir suivant. De plus, un tir consécutif (moins d'une journée) tels que les tirs 4 ou 6 génère une concentration faible (0,006 part./cm³ en moyenne) qui atteint le niveau du bruit de fond en moins d'une heure. L'origine de ces pics de pollution serait donc les aérosols déposés sur les composants optiques entre deux tirs et remis en suspension par le faisceau laser.

Suite au tir 3, un très grand nombre de particules sont émises. Pendant les trois heures nécessaires pour la sédimentation de ces aérosols, nous avons enregistré la répartition en taille de ces particules. Les trois mesures fournies par le compteur à 45, 105 et 165 min après le tir sont représentées sur la figure 3. Il s'agit d'une distribution cumulée en fonction de la taille des particules. Est également indiquée en pointillés l'extrapolation au moment du tir de ces distributions.

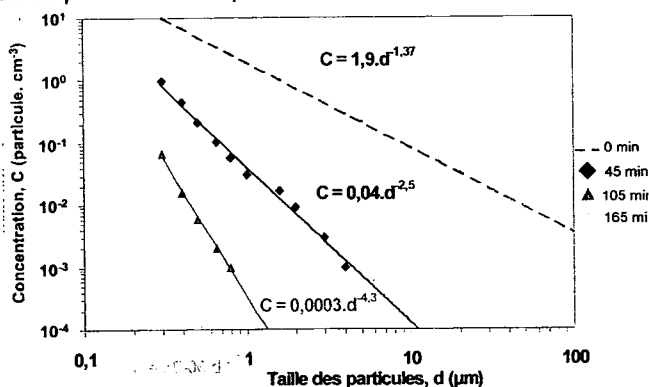


Figure 3 : Répartition en taille des particules émises lors du tir laser 3.

Ces résultats montrent que la répartition en taille des particules suit une loi en puissance. Malgré la distribution cumulative, la forte pente obtenue au moment du tir met en évidence que la concentration de particules émises est d'autant plus grande que la taille des particules est petite. La pente augmente très vite avec le temps, montrant ainsi que les grosses particules (supérieures à 1 µm) sédimentent plus vite. Il est important de noter que même les concentrations de fines particules (inférieures à 1 µm) diminuent dans le temps.

La nombre de particules émises par le tir 3 étant très élevé par rapport à l'ensemble des particules collectées pendant toute la semaine, nous considérons que la répartition par nature obtenue à partir

de la membrane est représentative de cette seule émission. Les résultats de caractérisation des particules supérieures à $1\ \mu\text{m}$ au MEB/EDS montrent que 90 % des particules sont d'origine minérale, 9 % organique et 1 % métallique. Parmi les 90 % de particules d'origine minérale, 87 % sont composées de chlorure de sodium et de sulfate de calcium. Ce sont des particules de diamètre inférieur à $3\ \mu\text{m}$ qui proviennent probablement de la condensation de contamination ionique issue des embruns marins¹⁰.

Nous avons mis en évidence une fine pollution émise lors du tir laser composée essentiellement de particules d'origine minérale qui est détectée dans le volume moins de trois heures après le tirs et qui peut se redéposer sur les surfaces optiques.

3.2. Caractérisation des aérosols après sédimentation

Pour la caractérisation les aérosols déposés, nous utilisons les pastilles adhésives carbonées positionnées au niveau des 4 zones. Chacune est analysée au MEB/EDS. Seules les particules de dimension supérieure ou égale à $3\ \mu\text{m}$ sont prises en compte dans cette étude. La figure 4a représente la distribution cumulée de la concentration surfacique de particules en fonction de leur taille pour chacune des zones de prélèvement. La figure 4b montre la répartition des particules par nature et zone de prélèvement.

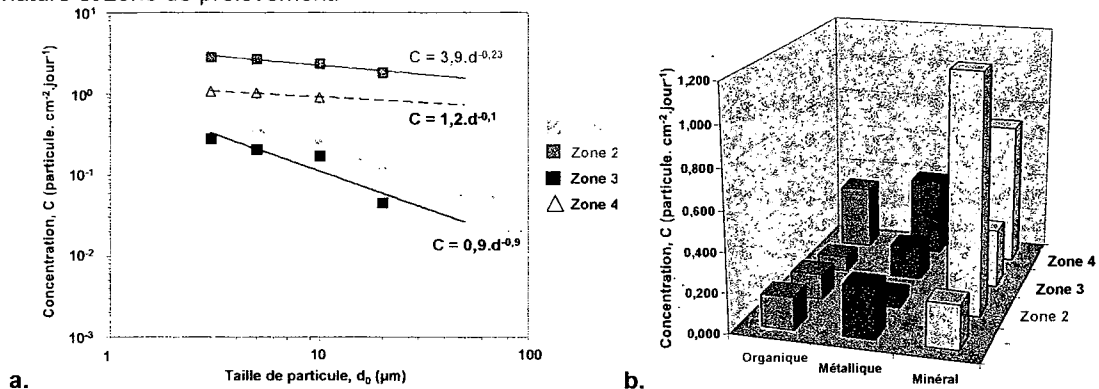


Figure 4 : Répartition en taille (a.) et en nature (b.) des particules collectées sur les supports carbonés.

La figure 4a montre que la répartition en taille suit une loi en puissance, quelle que soit la zone où les substrats ont été pollués. Une concentration surfacique de particules plus élevée est obtenue dans la zone 2. Nous savons que les réseaux 3ω de la LIL ont été endommagés suite à une pollution par la désorption de joints du cadre du composant. Une grande partie des aérosols déposés en surface est donc issue de la croissance de ces endommagements sous irradiation à $351\ \text{nm}$. Les zones 3 et 4 situées après le réseau 3ω peuvent également récolter des particules issues de ces endommagements. La zone 4 étant excentrée, les concentrations mesurées sont inférieures d'un facteur 3. Par contre, la zone 3 est beaucoup moins polluée. Cette faible concentration s'explique par la présence d'un moyen de diagnostic placé entre le réseau 3ω et le hublot, dont la structure mécanique écran partiellement la migration des aérosols émis par le réseau vers la zone 3. La zone 1 qui est placée dans une autre partie du SCF (avant réseau 3ω) collecte une concentration d'aérosols assez faible dont la répartition en fonction de la composition chimique devrait être différente. Pour vérifier cette hypothèse, une comparaison entre les 4 zones est effectuée sur la figure 4b.

Les résultats de la figure 4b montrent une proportion importante de particules d'origine minérale. La plupart de ces particules minérales sont composées de silicium et d'oxygène, ce qui confirme l'émission d'aérosols issus de la dégradation des réseaux 3ω . Les particules d'origine organique ou métallique sont en nombre équivalent. On les rencontre principalement dans les zones 1 et 4 situés proche des voies d'accès. Les particules d'origine métallique sont probablement issues des structures métalliques et des câblages. Les particules d'origine organiques, peuvent provenir de joints, de matière brûlée par le laser ou de pollution anthropique.

3.3. Irradiation des substrats de silice pollués

Les substrats de silice traitée antireflet sont observés après pollution dans le SCF et après irradiation. La comparaison des images des particules avant et après irradiation à une fluence de $10\ \text{J}/\text{cm}^2$ montre principalement l'élimination de particules en laissant la surface intacte. Dans

seulement 5 % des cas, des petites particules résiduelles ou une modification du revêtement antireflet sont observées. Cette dernière modification qui se distingue par une auréole est stable et n'évolue pas sous plusieurs irradiations. Elle ne constitue donc pas un endommagement laser¹¹. La répartition des particules en fonction de leur taille avant et après irradiation est représentée sur la figure 5.

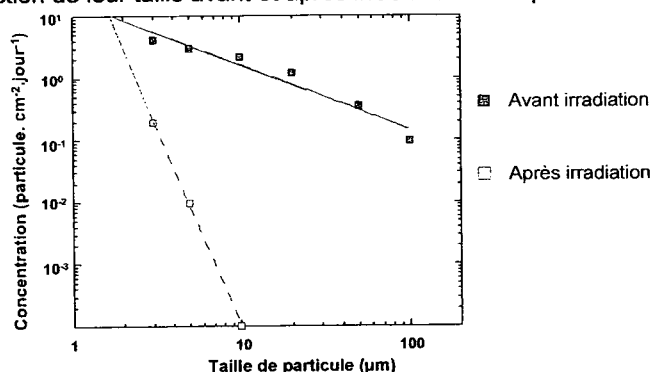


Figure 5 : Concentration surfacique avant et après irradiation en fonction de la taille des particules.

La distribution des particules en fonction de leur taille même après irradiation suit une loi en puissance. Pour toutes les particules de dimension supérieure ou égale à 3 µm, un facteur 20 sépare les concentrations avant et après irradiation. Ces résultats mettent en évidence le « nettoyage laser » d'un grand nombre de particules et montre l'élimination totale des particules supérieures à 10 µm. En extrapolant les résultats pour des dimensions inférieures à 3 µm, nous déduisons que la dimension seuil de ce nettoyage est d'environ 1,5 µm. Pour des dimensions inférieures, le nombre de particules après irradiation peut être plus important que celui avant irradiation (effet de fragmentation ou limitation de nos mesures pour les petites particules). Ces petites particules résultantes pourraient se redéposer en surface des optiques.

4. Conclusion

Dans le cadre des nombreux travaux réalisés pour le développement de composants optiques capables de résister aux énergies d'un laser de type LIL, nous avons étudié un élément optomécanique sensible à la pollution : le SCF. Nous avons montré que les tirs laser d'énergie supérieure à 1 kJ, à 351 nm provoquent l'émission de fines particules dans le volume. La concentration volumique de particules est d'autant plus importante que les tirs sont espacés dans le temps. En parallèle, la concentration surfacique des aérosols déposés par sédimentation sur le SCF peut s'élever jusqu'à 3 particules/cm²/jour de diamètre supérieur à 3 µm. Ces deux expériences ont montré que la plupart des particules recueillies dans l'environnement du SCF est d'origine minérale (embruns marins, silice, ...). Lors de l'irradiation laser (355 nm, 2,5 ns et 10 J/cm²) d'un substrat de silice représentatif d'un composant optique de la LIL, préalablement pollué dans le SCF, nous avons observé l'élimination de la totalité des particules de diamètre supérieur à 10 µm. De plus, aucun endommagement du substrat n'a été observé. Ce travail suggère que le nettoyage des optiques au moyen de tirs laser est réalisable dans une chaîne laser de puissance.

¹ M. André, C. Cavaller, F. Jéquier, Vide : Sci. Tech. Appl. 57, 13 (2003).

² N. Bloembergen, Appl. Optics, 12, 661 (1973).

³ I.A. Fersman, L.D.Khazov, Soviet Journal of Optical Technology, 37, 627 (1971).

⁴ J. Honig, M.A. Norton, W.G. Hollingsworth, E.E. Donohue, M.A. Johnson, Proc. of the SPIE 5647, 229 (2004).

⁵ Revue Chocs, La Ligne d'Intégration Laser, 29 (2004).

⁶ F. Gensdarmes, G. Basso, I. Tovena, S. Palmier, Salles propres 36, 80 (2005).

⁷ S. Palmier, S. Garcia, L. Lamaignère, P. Manac'h, J.L. Rullier, I. Tovena, Rapport CEA-R-6103 (2006).

⁸ H.G. Floch and P.F. Belleville, Proceedings of the SPIE 2714, 521 (1995).

⁹ Norme ISO 14644-1

¹⁰ G. Guéhenneux, I. Tovena, M. Veillerot, International symposium on contamination control (ICCCS), 2004.

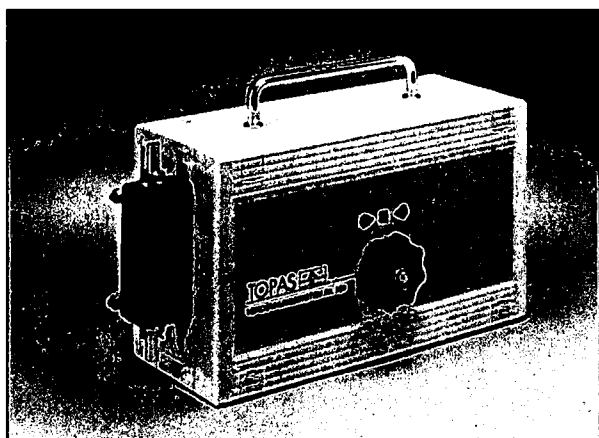
¹¹ H. Bercegol, B. Bouchut, L. Lamaignère, B. Le Garrec, G. Razé, Proc. of the SPIE 5273, 312 (2004).

ANNONCE DES EXPOSANTS

**ACIL
COPLEY SCIENTIFIC
ECOMESURE
INTERTEK / I.C.S.
T.S.I.**

Un grand nombre d'applications en mesure et technologie des aérosols nécessitent une dilution de l'aérosol à caractériser.

Ainsi, l'évaluation d'un filtre ou d'un matériau filtrant n'est souvent possible que grâce à des techniques adéquates de dilution de façon à mesurer la granulométrie en amont et en aval avec le même instruments.



Système de dilution DIL

Les systèmes de dilution Topas sont conçus pour vous permettre d'être mobile. La dilution est effectuée sans ajout d'air comprimé auxiliaire. Le ratio de dilution est observé en permanence au moyen d'une mesure de flux montée de série et indiqué sur le panneau avant.

Les modèles DIL, d'un côté, sont utilisés avec un flux total défini et une dilution fixe, les modèles DDS, de l'autre, permettent d'ajuster le ratio dans une large gamme offerte à l'utilisateur.

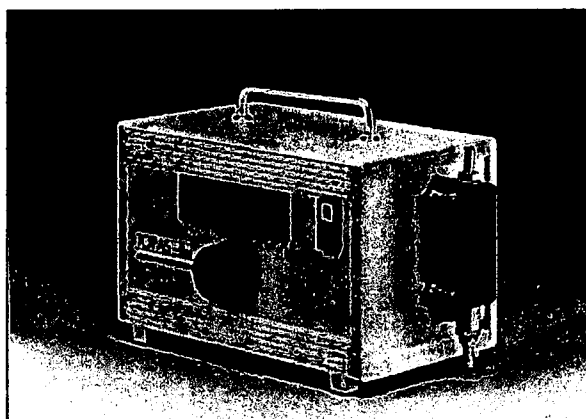
Chaque modèle de dilution est conçu pour une usage mobile et flexible. Ils n'utilisent que du 12 V. continu.

Applications

- Validation de bancs et hottes à flux laminaire et salles blanches
- Evaluation d'efficacité de filtres
- Mesure d'aérosols très concentrés
- Recherche fondamentale en aérosols

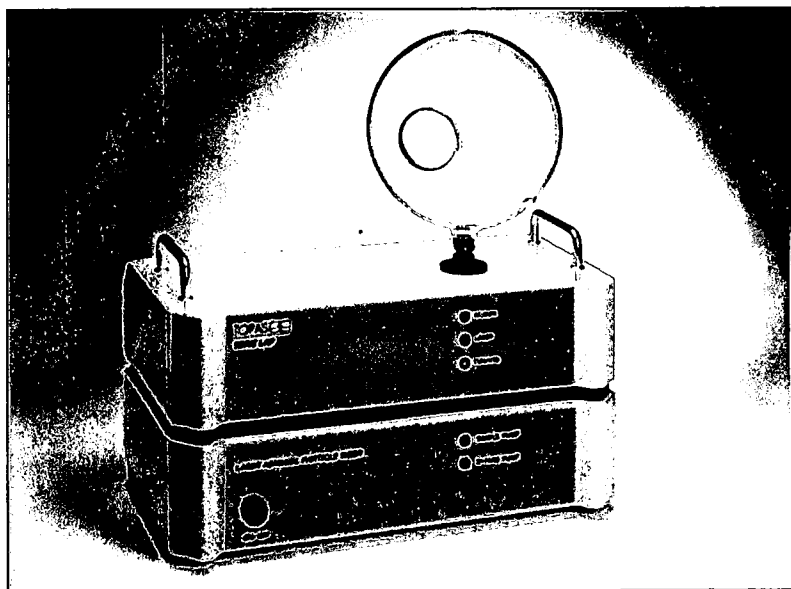
Avantages particuliers

- Dilution reproductible et constante de l'aérosol même alors que les conditions changent
- Contrôle continu et affichage du ratio de dilution du moment
- Conçu pour être portable (pas besoin de source externe d'air comprimé ou de sortie de gaz)
- Robuste et fiable, c'est un investissement solide avec un entretien minimal
- Fonctionnement précis en surpression et dépression
- Possibilité de modifier les caractéristiques (flux, ratio) à la commande



Système de dilution dynamique DDS 560

La suite... <http://www.granuloshop.com/to/index.htm>



Granulomètre Aérosol Laser LAP 320 avec Sphère échantillon

Principaux Avantages

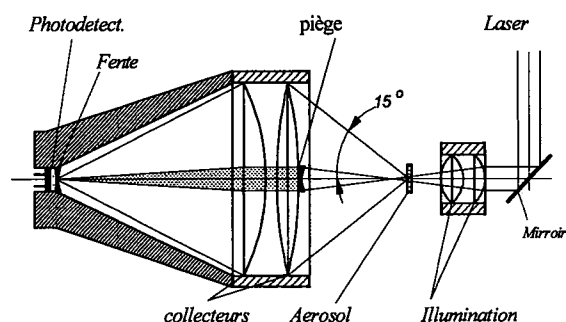
- Granulométrie rapide sans contact des distributions
- Large gamme de concentration
- Influence minimale de la nature du produit par utilisation de la diffraction laser directe
- Haute sensibilité par utilisation de laser He-Ne
- Volume de mesure optimisé
- Pas d'hypothèse a priori sur la distribution granulométrique
- Facile à utiliser avec son logiciel convivial sous Windows
- Conception robuste, petit et léger
- Portable (batteries)

Principe de Mesure

Méthode de mesure unique des dimensions des particules (caractéristiques particulières) indépendante de toute hypothèse sur la courbe de distribution granulométrique. Cette méthode combine haute sensibilité, justesse et rapidité de la mesure. Il est en effet intéressant d'utiliser la corrélation entre caractéristiques physiques et optiques dont la mesure est fiable et pratique. Les instruments de la série LAP sont basés sur une mesure de particules une à une. Ils donnent une granulométrie précise et une mesure de concentration dans les aérosols très concentrés avec une excellente résolution granulométrique.

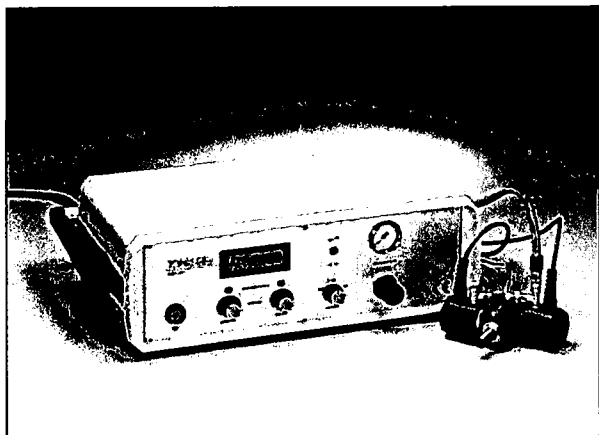
Applications

- Mesure de la granulométrie (sprays, poussières, poudres)
- Mesure de référence pour la calibration et le test des Aérosols
- caractérisation et tests des filtres
- estimation de l'efficacité séparatrice
- Caractérisation des aérosols pharmaceutiques
- R&D en Aérosols



Near Forward Light Scattering Arrangement Used in the LAP

La suite... <http://www.granuloshop.com/to/index.htm>



Neutraliseur et chargeur Electrostatique pour Aérosols EAN

L'interaction des particules, en particulier solides, peut causer des charges électrostatiques indésirables. On sait générer des aérosols d'une remarquable stabilité et homogénéité (voir SAG, ATM et SLG) pour le test de filtres, cyclones, impacteurs, etc. On peut encore améliorer la qualité des tests en utilisant ce neutraliseur.

Il peut aussi être utilisé pour charger des aérosols de poussières ou liquides afin d'orienter la déposition. Et l'équilibre de charge peut être contrôlé en mélangeant ions positifs et ions négatif de façon très précise.

Applications

- Neutralisation efficace et contrôlée des aérosols
- Charge précise des particules
- Evaluation reproductible des filtres et séparateurs
- Assurance Qualité
- Recherche fondamentale en Aérosols.

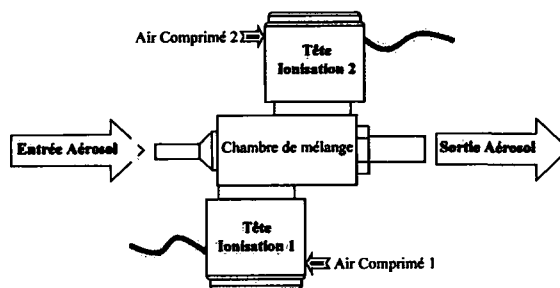
Avantages Particuliers

- Génération contrôlable des ions
- Réglage indépendant des 2 sources d'ions positifs et négatifs
- Pas de source radioactive
- Intégration aisée dans tout autre système de test de filtre ou de génération d'aérosols.

Principe

L'EAN 581 repose sur le principe de décharge Corona avec une chambre de mélangeage et 2 têtes d'ionisation indépendantes. Les ions positifs et négatifs sont générés dans deux flux mélangés consécutivement au flux d'aérosol dans la chambre de mélangeage. Une source d'air comprimé, propre est raccordée à chaque tête d'ionisation et le bloc de commande, branché au secteur gère l'alimentation électrique.

La conception exclusive de la chambre vous assure un mélangeage absolument parfait et donc une excellente efficacité de charge ou de décharge. L'échange d'ions sur la surface des particules change la charge résiduelle de la particule avant sa sortie.



Chambre de mélangeage avec tetes d'ionisation

La tension et le courant d'ionisation sont affichés en kV et μ A pour un réglage précis.

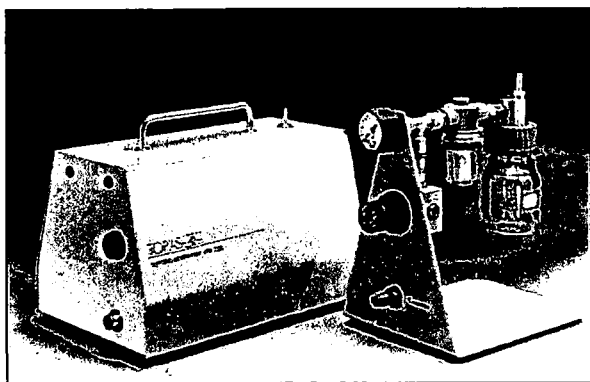
La suite... <http://www.granuloshop.com/to/index.htm>

Pourquoi des générateurs d'Aérosols ?

Beaucoup d'applications nécessitent des aérosols de test, reproductibles, stables, à concentration ajustable d'une granulométrie bien définie. Des applications typiques sont décrites ci-dessous.

Test de filtres

L'assurance des personnes et de la qualité des produits requiert des tests d'efficacité réguliers des filtres hautes performances, la certification de boîtes à flux laminaire et des salles blanches. A cette fin, il faut disposer d'un aérosol de test car un aérosol ambiant a une tendance à varier rapidement. Dans la recommandation VDI- 3491 il est suggéré d'utiliser des générateurs d'aérosol afin de produire un aérosol de façon définie. Comme les générateurs d'aérosol produisent des aérosols très concentrés de granulométrie proche de la MPPS (most penetrating particle size) les sites critiques peuvent être identifiés plus rapidement. L'usage de matériaux huileux (DEHS, DOP, Emery 3004...) conduit à un aérosol stable avec une durée de vie connue (évaporation long terme).



Générateurs d'aérosol ATM 225 et ATM 220

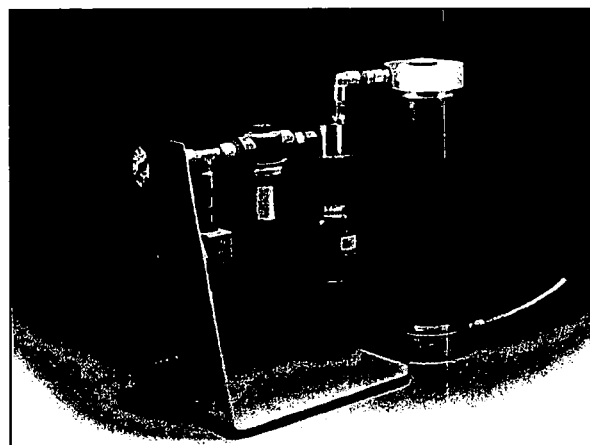
La recherche en Aérosol

On utilise les générateurs d'aérosol par atomisation dans divers champs de R&D:

- Inhalation
- Toxicologie
- Environnement

Calibration d'instruments

La génération d'aérosol de test (PSL) pour la calibration d'instruments (granulomètre, compteur optique, photomètre,...) doit aussi être mentionnée comme une des applications.



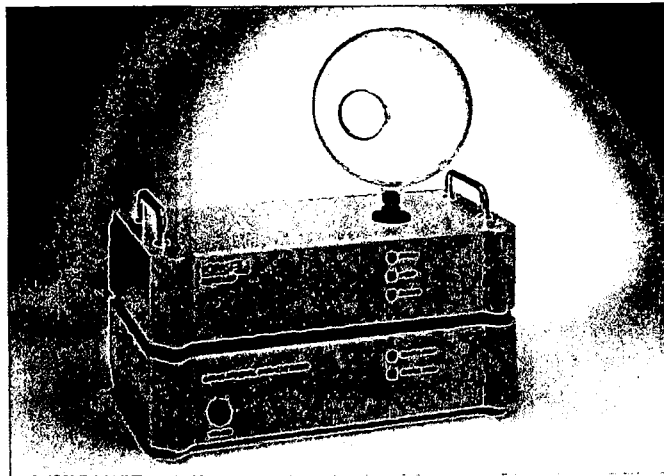
Le générateur d'aérosol ATM 220 avec séchage par diffusion est idéal pour la calibration d'instruments.

Visualisation de flux

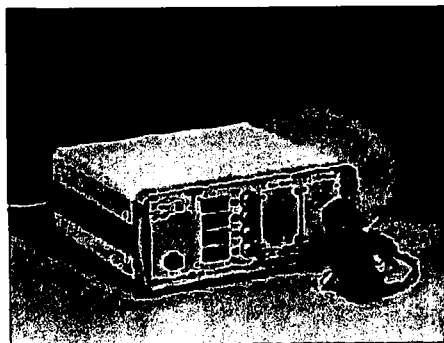
Un autre champ d'application est la visualisation de flux. Ici, l'utilisateur veut contaminer la zone de mesure avec des particules de composition et de taille connues afin de mesurer après coup leur vitesse et leur profil par des méthodes optiques.

La suite... <http://www.granuloshop.com/to/index.htm>

diffraction laser directe • Haute sensibilité par utilisation de laser diode • Volume de mesure optimisé • Pas d'hypothèse à priori sur la distribution granulométrique • Facile à utiliser avec son logiciel convivial sous Windows • Conception robuste, petit et léger • Portable



Neutraliseur de charges EAN Avantages particuliers: Neutralisation sans source radioactive • réglage séparé pour les ions positifs et négatifs • facile à intégrer dans une banc test ou tout appareil de test

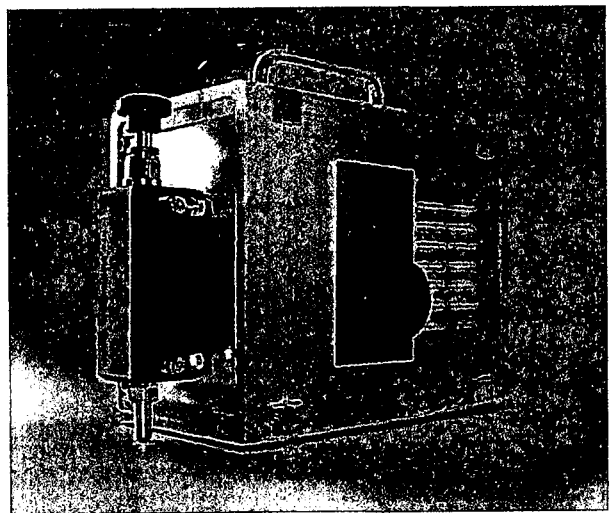


Diluteurs Dilution reproductible et constante de l'aérosol même alors que les conditions changent • Contrôle continu et affichage du ratio de dilution du moment • Conçu pour être portable (pas besoin de source externe d'air comprimé ou de sortie de gaz) • Robuste et fiable, c'est un investissement solide avec un entretien minimal • Fonctionnement précis en surpression et dépression • Possibilité de modifier les caractéristiques (flux, ratio) à la commande.

Disperseur de poussière SAG 440 ASHRAE

Le disperseur de poussières SAG 440 ASHRAE a été conçu pour satisfaire aux spécifications de l'ASHRAE 52.2 et DIN EN779 pour tester les performances des systèmes généraux de ventilation et nettoyage de l'air.

Echantillonneur sous pression: Il est conçu pour échantillonner les aérosols sous pression et introduire l'échantillon dans un compteur (sans pression). Idéal pour salles blanche ou bancs de test sous pression. Pression d'entrée max. 8 bars; pression min. 1 bar; volume de sortie 2,83 l/m au minimum ... 28,3 l/m au maximum (à définir à la commande)



Tour de France... Nos instruments font le tour de nombreux laboratoires qui souhaitent les découvrir. Pour recevoir un instrument en essai il vous suffit de nous envoyer un mail ou de téléphoner. Vous le recevrez bientôt !

Bancs test complets Nous réalisons aussi de nombreux bancs de test spécifiques pour la recherche et l'industrie. Consultez-nous !

Et aussi... nos granulomètres, compteurs de particules, switch, sondes de prélèvement, etc.

Merci de votre présence à ASFERA !

***** Dernière minute : Vous renouvelez vos instruments ?**

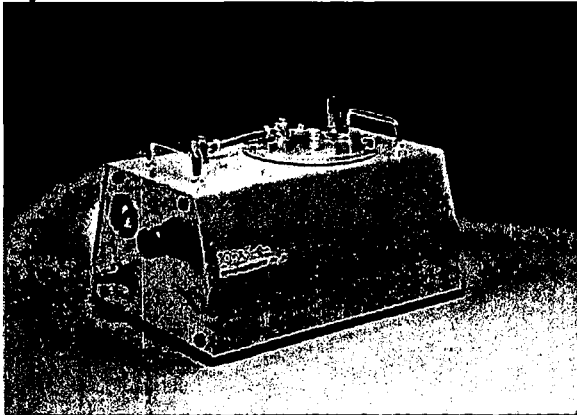
Nous reprenons votre vieux matériel; cela peut être avantageux : consultez nous ! ***

Abonnez-vous à la lettre d'information du Granuloshop, le meilleur en technologie des poudres.

Tel 01 30 53 48 48 ou par mail à info@acil-instruments.com site www.granuloshop.com

GRANULOSHOP: LETTRE D'INFORMATIONS EDITION SPECIALE ASFERA

Génération d'aérosol : Toute une gamme dédiée : de nombreuses solutions : ATM 220, 225 (électrique) 230 (le plus populaire), ATM 210 (sous pression 10 bars) et ATM 240/241 (gros débit) Compacts et robustes, ils permettent l'atomisation de divers liquides huileux comme DEHS, DOP, Emery 3004 et les solutions salines.



L'ATM 230 fonctionne sur un principe similaire à celui de l'ATM 220, et permet une production de particules 10 fois supérieure. La principale application de ce générateur est le challenge de l'intégrité de grandes surfaces de filtre. Le granulométrie est très proche de celle des générateurs plus petits. Les particules supérieures à 1 µm sont éliminées par la plaque d'impact montée sur la buse. Le débit le plus élevé s'obtient avec l'ATM 240. Il est particulièrement adapté à la production de particules de traçage ou d'amorce dans les longs tunnels à air. On peut régler le débit de ces deux générateurs en ajustant la pression de fonctionnement de la buse. Leurs grands réservoirs permettent un fonctionnement de longue durée. Ils sont robustes, fiables, aussi faciles à utiliser qu'à nettoyer... Exemple : Générateur ATM 230

Air comprimé	Max. 800kPa (8bar)
Débit	1 ... 2,5 m³/h
Débit massique	Max. 25 g/h
Contre pression	Max. 300 mbar
Aérosols	DEHS, DOP, Emery 3004, paraffines, sphères Latex (max. 2µm), suspensions, solutions salines

Granulomètre compteur LAP 320

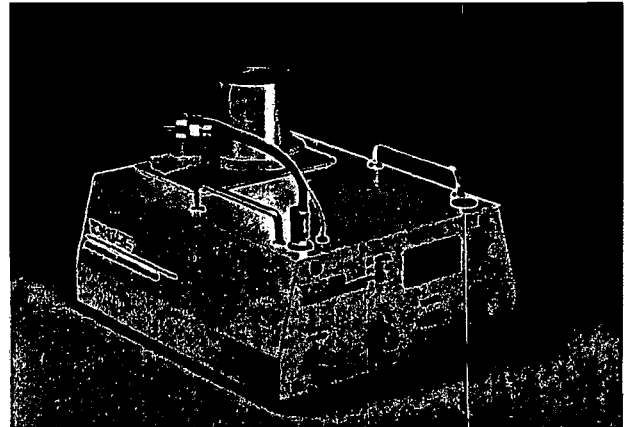
- Granulométrie rapide sans contact des distributions
- Large gamme de concentration
- Influence minimale de la nature du produit par utilisation de la

Granuloshop : Topas :

www.granuloshop.com/to/

Latex, poudres, consommables Pour tous vos usages : calibrées, certifiées ou non, colorées ou non, toutes tailles, suspensions ou formes sèches entrez dans le granuloshop, mettez dans votre panier et recevez vos offres directement, par mail sous format PDF

Génération d'aérosols solides (disperseurs de poudre) Le disperseur de poudre SAG est un générateur de poussière très précis et très stable sur une longue durée. D'une façon similaire aux technologies de l'information, on a fiabilisé le transport en divisant la poussière en tout petits paquets. La masse apportée à la buse de dispersion peut être réglée en modifiant la vitesse de la courroie dentée, segmentée de façon uniforme. De plus la solution technique retenue pour la réserve de poussière garantit un dosage continu et stable



L'utilisation de bande doseuse est une technique éprouvée. La courroie est segmentée en volume définis ce qui permet une alimentation stable même pour de très petites quantités. La concentration en nombre de particules peut donc facilement être réglée en modifiant la vitesse de la courroie.

Une double buse d'injection (selon la norme ISO 5011) à la fin de la courroie prend la poudre et la met sous forme d'aérosol. Un excavateur (scraper) spécialement conçu assure le remplissage constant de la courroie dentée et réduit l'influence du niveau de remplissage de la trémie.

COPLEY SCIENTIFIC LIMITED



France, Suisse, Allemagne

COPLEY SCIENTIFIC SA

Erlenstrasse 27
CH-4106 Therwil / Suisse

Tél. 0041 61 7252535
Fax. 0041 61 7213187
sales@copleyscientific.ch

Angleterre, Irlande, Internationale

COPLEY SCIENTIFIC LIMITED

Colwick Quays Business Park
Private Road No. 2, Colwick
UK-Nottingham NG4 2YJ

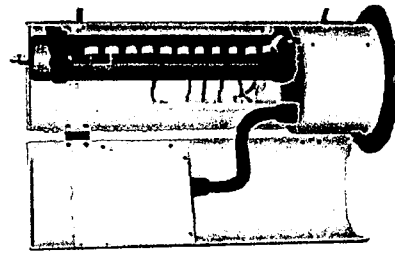
Tél. 0044 115 961 6229
Fax. 0044 115 961 7637
sales@copleyscientific.co.uk

www.copleyscientific.com

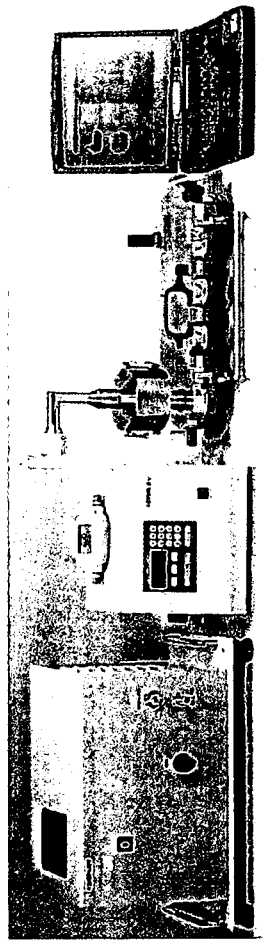


Les Produits COPLEY

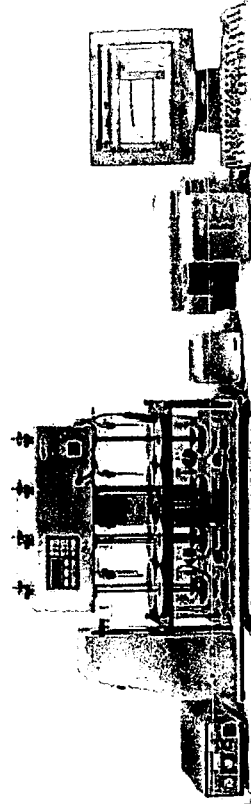
Analyse des
particules
fines et
extrafines



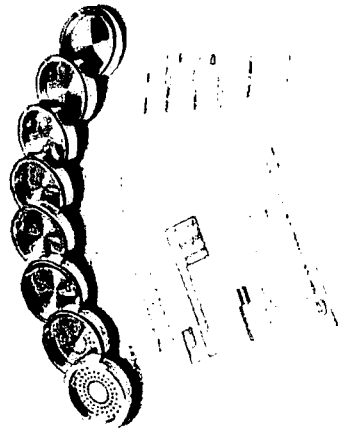
Appareils pour tester des médicaments inhalés



Appareils pour tester des médicaments
solids



Service de
calibrage /
vérification des
impacteurs



Qui est Copley Scientific ?



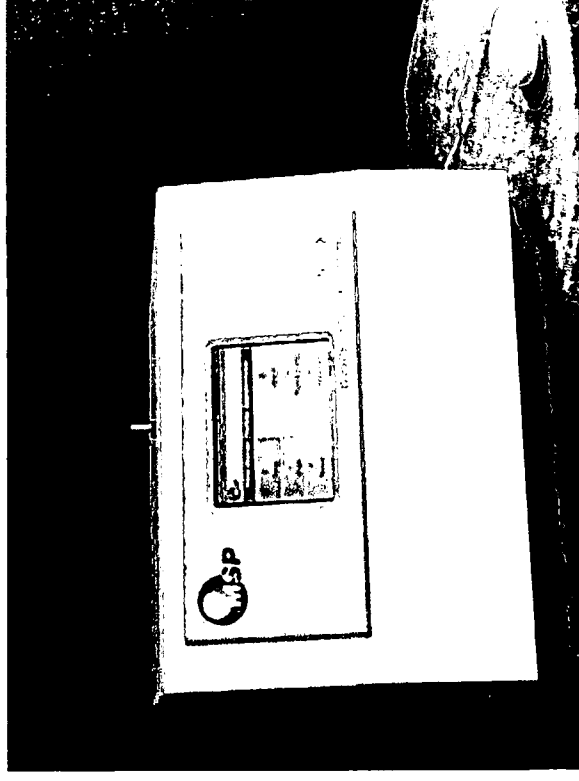
- Société fondée en 1946; fournisseur d'équipement pour tester des médicaments
- "Leader" fabricant et fournisseur d'équipement pour tester des médicaments inhalés, nébuliseurs et atomiseurs nasals; depuis 1980
- Distributeur exclusif des produits "Air Sampling" de la société MSP Corp., USA pour l'Europe
- Siège social à Nottingham (Angleterre); filiale à Bâle (Suisse) pour F, CH, D, I, distributeurs dans les plus importants pays du monde



WPS Wide-Range Particle Spectrometer



- WPS 1000 XP pour l'analyse des aérosols et particules fines / extra fines
- grande gamme d'analyse
 - 10 nm jusqu'à 10 microns
- Différents modules intégrés dans un instrument
 - LPS Laser Particle Spectrometer
 - DMD Differential Mobility Spectrometer
 - CPC Condensation Particle Counter
- compact et facile à transporter
 - 43 x 52 x 32 cm, env. 25 kg
- interface intégré au spectromètre, facile à utiliser par "plasma touch-screen"



Impacteurs en Cascade

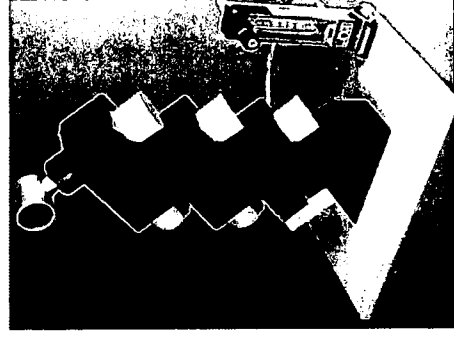
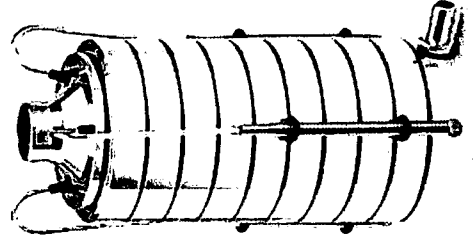
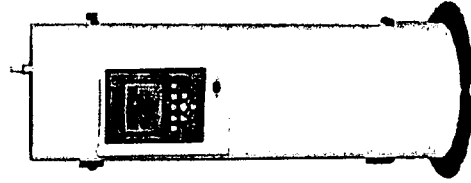
- Andersen Non-viable Impactors
8 étages, 0.7 – 10 microns, 30 l/min (standard), 60 + 90 l/min (option)
- Andersen Impactors (Bioaerosols)
3 modèles avec 6, 2 ou 1 étage, flux standard 28,3 l/min

- MOUDI (Micro-Orifice Uniform Deposit Impactor)

10 étages
0.056 – 10 microns
flux 30 l/min

13 étages
0.010 – 10 microns
flux 10 l/min

avec ou sans
rotation des plateaux



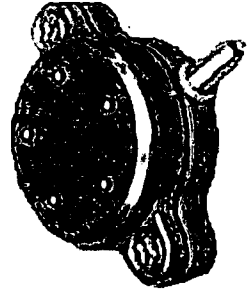
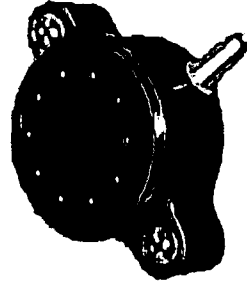
- Marple-Miller
Cascade Impactor
6 étages,
0.625 – 10 microns
facile à monter /
démonter
flux de 30 l/min,
4.9 l/min et
12 l/min (option)

COPLEY

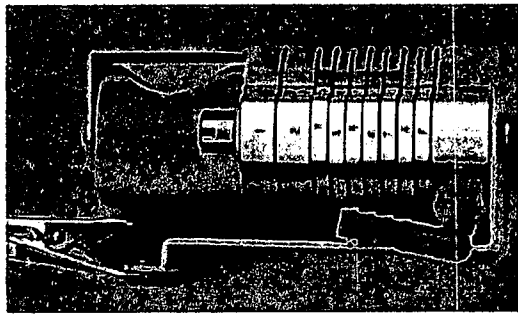
Personal Impactors + Air Samplers



- PEM Personal Environmental Monitors
Versions PM2.5 ou PM10 à 2.4 l/min ou 10 l/min
60 x 65 x 22 mm, 48 g



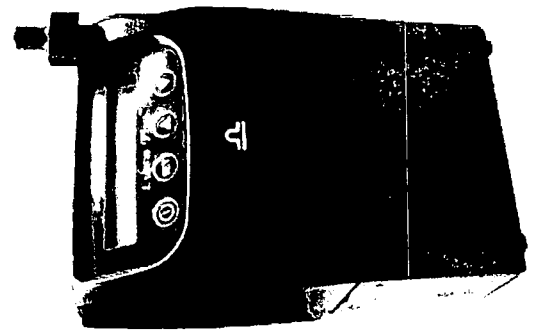
- Marple Personal Monitor
Model 298



impacteur en cascade miniaturisé

8 étages
0.52 – 21,3 microns
flux 2 l/min

- Personal Sampling Pump, portable pompe pour l'utilisation avec des PEM ou Marple Personal Impactor

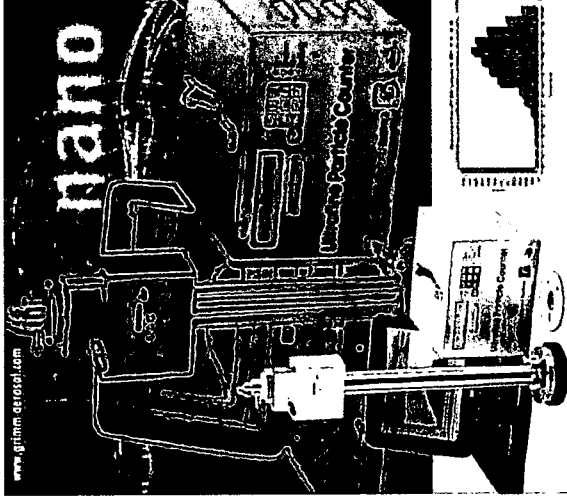


ECOMESURE

CONCENTRATION ET GRANULOMETRIE D'UN AEROSOL FIN ET ULTRA FIN

SMPS + C

GRIMM AEROSOL Technik GmbH & Co. KG



• **CF-C** capteurs réel pour la mesure de particules entre 0,003 et 3 µm

• Système portable, fonctionnement sur batterie

• Mesure de concentration jusqu'à 10^7 part/cm³

• DMA pour une granulométrie entre 0,005 et 1,1 µm sur 256 canaux

• Pilotage à distance via un modem

ECOMESURE

B.P. 13 - 3, rue du Grand Cèdre 91640 JANVRY
Tél. : (+33) 01 64 90 55 55 - Fax : (+33) 01 64 90 55 66
E-mail : contact@ecomasure.com - www.ecomasure.com

nt d'un CPC

: noyaux de condensation (CPC) consiste en des analyseurs capables de réel des particules de 3 à 3000 nanomètres de diamètre. er des concentrations jusqu'à 10^7 part/l et même 10^{10} part/l. Tous nos es et répondent rapidement à un changement de concentration.

isposables :

ations salles propres

ations environnementales

es à haute concentration

nt passe à 2 débits d'échantillonnages différents : 0,3 ou 1,5 l/min. Une fois nt passe à travers un étage d'impaction optionnel, puis l'échantillon entre °C où il est exposé à une vapeur de butanol. Le flux de particules et de le condenseur à 10°C, où la vapeur de butanol condense sur toutes les phénomène augmente la taille initiale des particules. Ces gouttelettes de ent ensuite un faisceau laser et chaque gouttelette diffuse de la lumière. diffusée sont comptées en continu et exprimées en particules/cm³ ; chaque ; informations sont ensuite enregistrées et transmises via un port série RS des données externes.

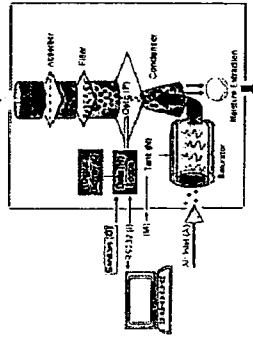


Figure 1

condensation (CPC) et classificateurs(DMA) ont les caractéristiques

; par un absorbeur. Ainsi, les particules et les vapeurs d'alcool sont figure 1).

il est intégré dans le CPC évitant les problèmes de manipulations. Le indicateur de niveau de remplissage et un capteur interne prévient une

, compacts et peuvent fonctionner sur batterie (voir figure 2).

oin d'être reliés en permanence à un PC. Les données sont stockées sur ransfert des données peut être fait ultérieurement sur le PC via le port RS pour l'utilisation du système complet SMPS+C.

rainage de l'humidité condensée permet une utilisation prolongée même at extérieur humide. Ce système empêche l'eau contenue dans le de venir polluer la vapeur de butanol et donc de fausser la mesure finale.

es permettent de connecter jusqu'à trois capteurs externes au CPC (sonde xétrie ou vitesse du vent). Ces données sont lues et enregistrées par le

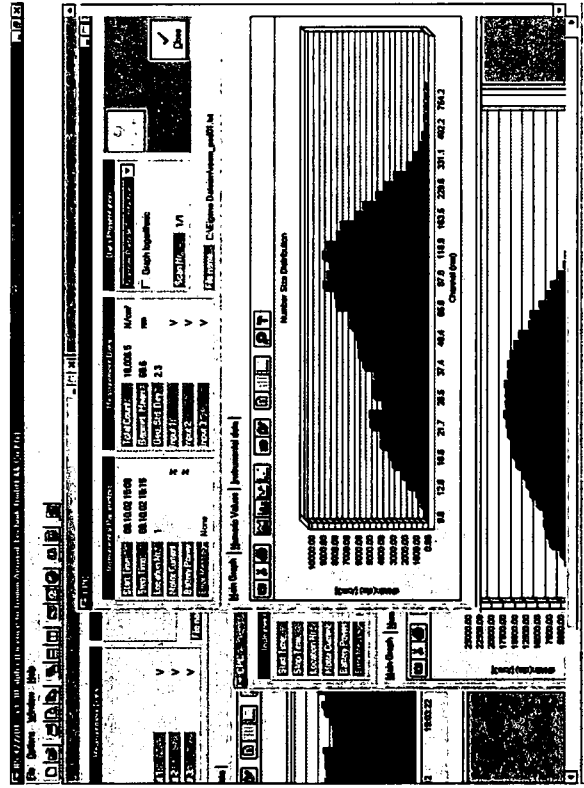
Une synchronisation pour une utilisation en tandem est intégrée. De plus, il est possible de combiner notre SMPS+C avec le compteur optique GRIMM afin de mesurer les aérosols jusqu'à 20 µm.

Le programme diffère : - l'utilisation du compteur
- l'utilisation du SMPS+C

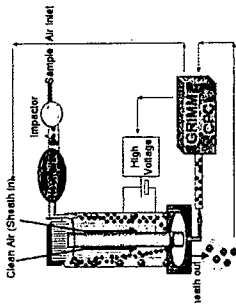
Le logiciel alimente en premier le DMA avec de l'air propre (sheath air) pour le nettoyer puis réalise un test de fuite automatiquement. Le système est alors prêt à fonctionner en mode manuel ou automatique.

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



le temps une gamme de tension électrique. A chaque valeur de tension électrique de particules et donc un certain diamètre. On peut donc une taille de particules unique correspondant à une tension donnée de plus qu'à mesurer la concentration de particules d'une même taille avec



DMA

DMA universel

gamme DMA : 5-350 et 10-1100

jusqu'à 255

durée : 90 sec.

solides et liquide non volatiles

10^7 particules / cm^3

0,3 l/min

3 l/min

directement du CPC

buse standard intégrée

5 différentes tailles de buses sont disponibles

Source Am-241 ou Kr-85 dans châssis en acier inoxydable

Tout en acier inoxydable

8 cm

4 et 7 kg

signal 16 bit provenant du CPC

intégré dans la buse

opération par le fournisseur. Cependant, une licence est obligatoire pour active.

acquisition des données 32 bit fonctionne sous Windows (Windows 95 ou rtible.

le DMA est couverte en 90 sec. dans le mode rapide et même en moins de

- Une fonction « auto-start » qui permet une présélection 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).

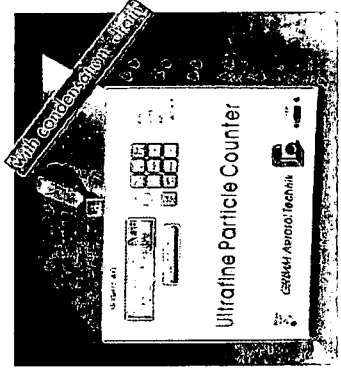


Figure 2

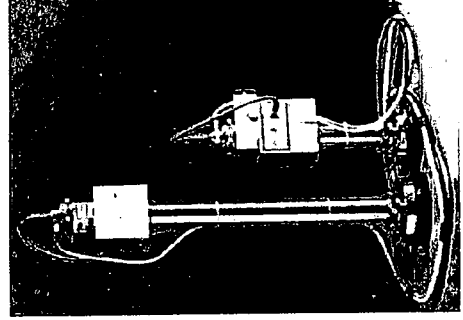
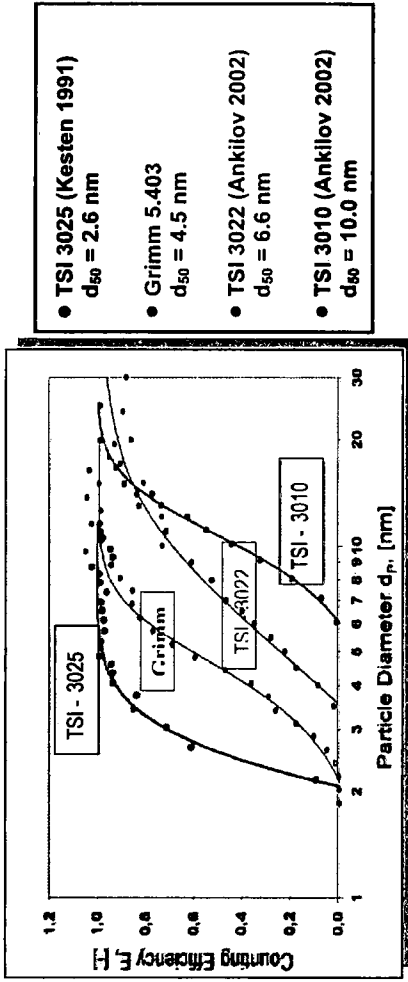


Figure 3

	5401	5402	5403
	4,5	4,5	4,5
	3000	3000	3000
	10 ²	10 ⁴	10 ⁷
s/cm ³	0,001	0,001	0,001
m ³	10 ²	10 ⁴	10 ⁴
	0 particules pour toutes les unités		
	Tous modèles < 2% à 10 ⁴ particules/cm ³		
	1 sec.	1 sec.	1 sec.
	< 5 sec.	< 5 sec.	< 5 sec.
	Ecran LCD lumineux		
	Intégré		
	Logiciel PC		
	Non	Oui	Oui
	Non	Pompe incluse	
	Valeur à sélectionner par taille avec le logiciel		
	Toutes les unités peuvent fonctionner à 0,3 ou 1,5 l/min		
	Ce débit est fixé et maintenu à 3 l/min		
	Capteurs de pression différentielle intégrés		
	Oui	Oui	Oui
	Non	Oui	Oui
	Réservoir de 1/2 l intégré		
	Raccord rapide sur toutes les unités		
	Fenêtre de visualisation du niveau de butanol		
	Avec un capteur intégré		
	10°C à 30°C		
	0 à 95% HR		
	Micro-pompe intégrée		
	Non	Non	Oui
	Non	Non	Interne
	Système Pelletier intégré		
	1 Mo, carte optionnelle, 64 Mo disponibles		
	RS-232		
	Option 56 K modem ou accès par carte téléphone GSM		
	PCMCIA possible		
	3 entrées analogiques 0-10 Volts		
	220 V / 50 Hz		
	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

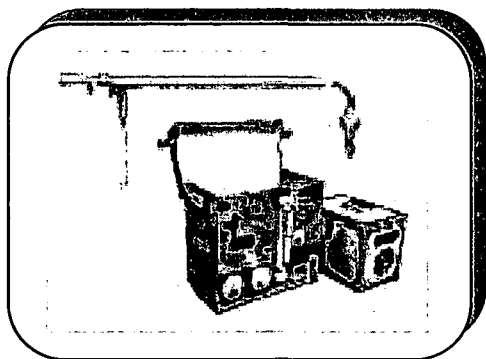
Principe du classificateur électrostatique (DMA)

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.

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.

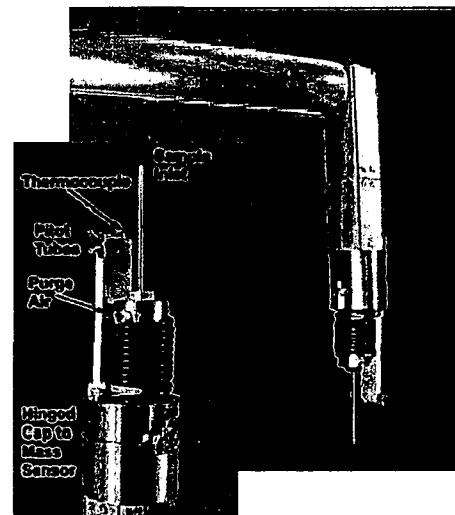
Le matériel est conforme aux normes Européennes en vigueur.

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.

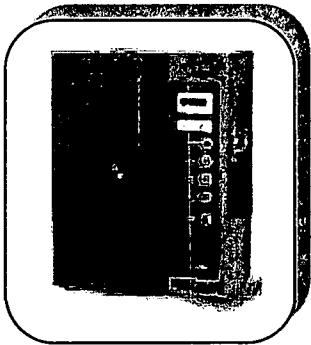
Idéal pour les mesures réglementaires et pour la recalibration d'analyseurs de poussières en continu le modèle 7000 termine en quelques heures une prestation de plusieurs jours avec un préleveur isocinétique traditionnel.



ECOMESURE

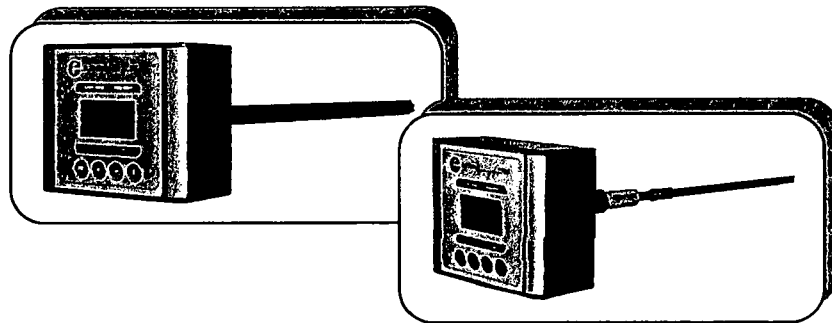
B.P. 13 - 3, rue du Grand Cèdre - F 91640 JANVRY
Tél. : (+33) 01 64 90 55 55 - Fax : (+33) 01 64 90 55 66
E-mail : contact@ecomasure.com - www.ecomasure.com

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 μm à 10 μm .

Mesure de poussières et de vitesse en continu



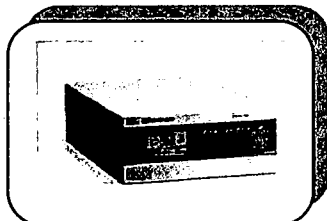
Mesure en continu de la concentration massique des poussières par principe triboélectrique.

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

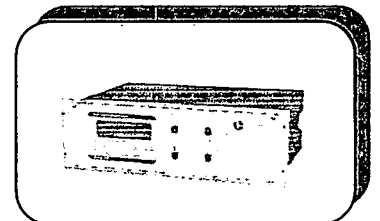
Analyseurs de gaz par dilution MONITOR EUROPE



Mesure par méthodes spécifiques : SO_2 par fluorescence UV, NO_x par chimiluminescence, CO , CO_2 par infra rouge, analyseur NO-NO_x haute concentration.

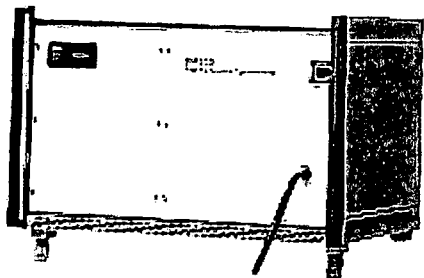
Analyseur de gaz Dr FÖDISCH

Analyseur infra rouge multigaz jusqu'à quatre gaz simultanément CO , CO_2 , NO , SO_2 , O_2 (cellule électrochimique) MGA 23.



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 :

Gamme de mesures	5 à 500 nm.
Principe de mesure	Classification Electrostatique avec détection par un électromètre.
Débit	7 L/min.
Temps de réponse	500 ms.
Fréquence d'acquisition	Maximum à 10Hz.
Chargement des particules	Chargeur unipolaire non radioactif.
Sortie analogique	4, de 0 à 10 V.
Entré analogique	4, de -10 à 10 V.
Résolution en taille	16 canaux par décade.
Diluteur intégré	20 :1 à 1000 :1.
Alimentation Electrique	12-14 VDC ou 220V AC
Dimension	48 x 57 x 31
Poids	39 Kg

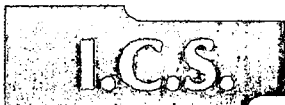
INTERTEK / I.C.S.

91, rue du Général de Gaulle 27109 LE VAUDREUIL

Tél : 02 32 09 36 26 Fax : 02 32 09 36 28

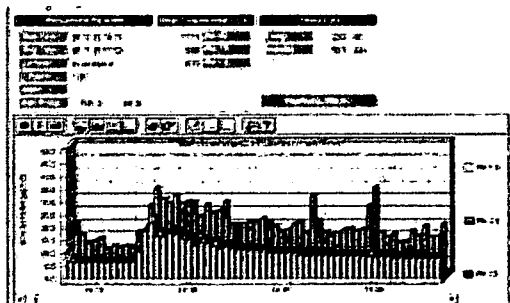
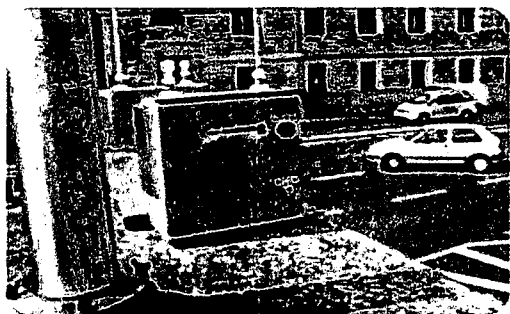
E-mail : ics@intertek.com Site Web : www.intertek-ics.com





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.

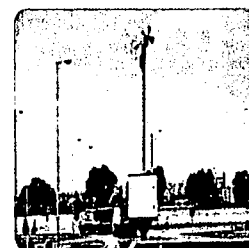
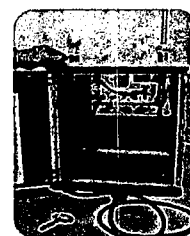
Le GRIMM ENVIRON-Check (#107) est un système mobile destiné au Monitoring Environnemental des Particules, capable de mesurer simultanément les fractions **PM-10**, **PM-2.5** et **PM-1**, et les conditions climatiques de l'air ambiant. Le système est compact (40 x 40 x 20 cm), autonome et est intégré 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 faux 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 ³
Gamme EPA :	PM10, PM2.5, PM1
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



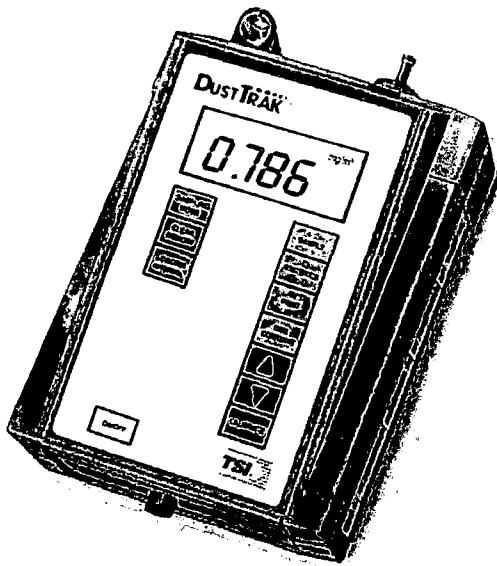
INTERTEK / I.C.S.

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 Site Web : 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/m³.**
- **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 ³ (calibre selon l'iso 12103-1).
RESOLUTION	1 % de la lecture ou 0,001 mg/m ³ .
STABILITE DU ZERO	0,001 mg/m ³ 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 ³ 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.

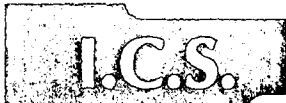
INTERTEK / I.C.S.

91, rue du Général de Gaulle 27109 LE VAUDREUIL

Tél. : 02 32 09 36 26 Fax : 02 32 09 36 28

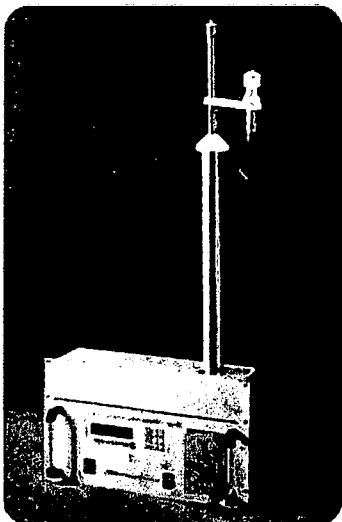
E-mail : ics@intertek.com Site Web : www.intertek-ics.com





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 simultanément : 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.

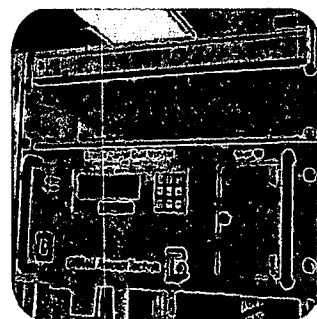
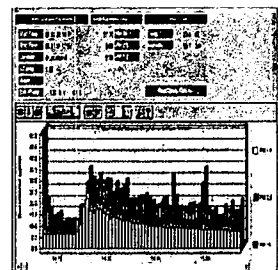
Ce nouveau compteur de poussières intègre un système spécifique de séchage de la sonde d'échantillonnage qui permet d'éviter de chauffer la tête de prélèvement. Ainsi, il n'y a pas de perte des composés semi-volatils présents dans l'atmosphère.

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 :	PM10, PM2.5, PM1
Gamme de taille:	0.25 ...30 μm
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

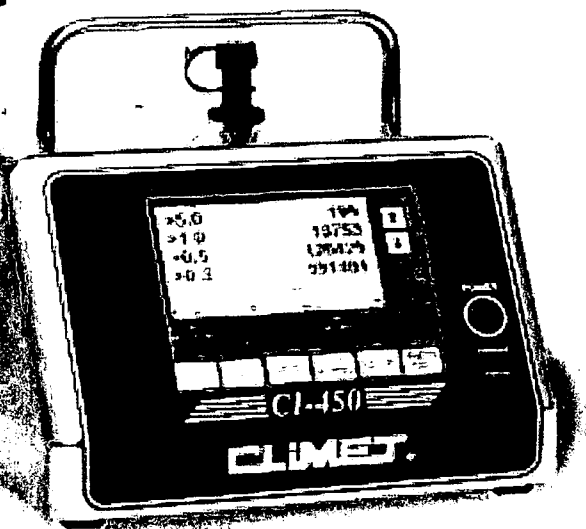
E-mail : ics@intertek.com Site Web : www.intertek-ics.com



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 :

Gamme de mesures	0,3 ; 0,5 ; 1 et 5 microns.
Principe de mesure	Diffraction lumineuse. Diode laser, 780 nm.
Débit	28,3 L/min (150T) - 50 L/min (450T)- 75 L/min (750T) (contrôlé par débitmètre volumique). Pompe : turbine brevetée.
Ecran	Nouvelle technologie TFT : écran couleur tactile à grande lisibilité et clavier alpha numérique intégré.
Volume de prélèvement	Ajustable par l'utilisateur.
Programmes	30 programmes mémorisés.
Id lieu de prélèvement	100 Id par programme, de 16 caractères alpha-numériques chacun.
Temps de purge	Ajustable par l'utilisateur (délai initial + temps de pause).
Unité de mesure	Sélectionnable : particules/litre ou particules/pied cube ou particules/m ³ .
Batterie	Interne, autonomie 6 heures (150T) - 5 heures (450T) - 3 heures (750T)
Calculs	Edition de rapports selon la FS-209-E, l'ISO 14644-1 et les BPF.
Alarmes	Ajustable sur les 4 canaux de tailles et débit de la pompe. Bip pour test d'efficacité des filtres.
21 CFR 11	ID appareil, ID utilisateur, mot de passe pour chaque utilisateur, 4 niveaux de sécurité avec une authentification utilisateur.
Sortie	RS-232. Contact sec.
Poids, matériau,	5,990 kg, boîtier Inox.
Dimensions	22 x 21,6 x 24,1 cm
Options :	Diluteur. Trépied. Diffuseur de gaz.
Matériel livré avec :	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 Site Web : www.intertek-ics.com



TSI France

Présentation générale

TSI Incorporated développe et fabrique à travers le monde entier des instruments permettant la mesure des écoulements, des particules et autres paramètres dans le domaine de l'environnement.



Leader dans le domaine de l'instrumentation, TSI répond aux besoins de l'industrie, de la recherche et des universités.

Les produits TSI sont présents dans le monde entier, des sommets des montagnes jusqu'aux fonds marins en passant par les déserts. Ils permettent d'identifier et de résoudre des problèmes de mesure. Utilisés, pour certains, à bord de la navette spatiale, l'un d'entre eux a même été amené sur Mars pour mesurer la vitesse et la direction des vents sur cette planète! Les produits TSI jouent un rôle majeur dans la conception, la modification des procédés de production ainsi que dans l'amélioration et la validation des procédures de contrôle.

Parce que TSI est capable de contrôler et d'améliorer la qualité de l'air au sein d'une école, ses produits font l'objet d'une forte demande mondiale issue de nombreux secteurs de l'industrie. Ses clients ont l'assurance que chaque produit TSI est le fruit de 40 années d'expertise et de qualité. C'est en 1961, qu'un groupe d'étudiants de l'université du Minnesota a développé un procédé permettant la mesure précise des écoulements en combustion turbulente. C'est dans ce contexte que TSI vit le jour et devint la référence mondiale dans le domaine de l'instrumentation.

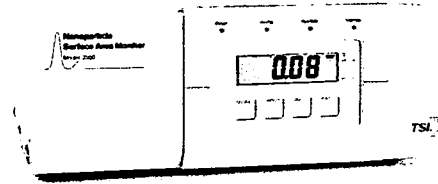
Un service après-vente international

TSI compte plus de 400 employés entre l'Amérique du Nord, l'Europe et l'Asie. Nos bureaux commerciaux et nos services après-vente à St Paul (Minnesota), Aachen (Allemagne), High Wycombe (Royaume Uni), Arlandastad (Suède), Marseille (France) et Beijing (Chine) offrent un support client à l'écoute de vos besoins, joignable par téléphone ou par email.

Toute l'équipe de TSI s'engage à répondre aux diverses demandes de ses clients allant de la formation à la démonstration de ses produits ainsi qu'à leur utilisation vis-à-vis des comités de normalisation. Nos ingénieurs possèdent plus de 50 brevets dans le domaine des particules et de la mesure. A cela, s'ajoutent plus de 25 licences d'utilisation de technologies développées par des chercheurs à travers le monde entier.

Nos produits

Les instruments TSI sont reconnus dans le monde entier. Notre ligne de produit inclut plus de 200 appareils possédant une gamme complète d'accessoires. Ils peuvent être répertoriés suivant plusieurs familles de produits :



Surveillance Atmosphérique

Instruments permettant de caractériser le climat, la visibilité et la qualité de l'air.

Test automatique des filtres

Les machines de test automatique des filtres fixent la réglementation dans cette industrie afin de déterminer l'efficacité des médias filtrants ou des assemblages de filtres.

Equipement biomédical de test

Les appareils de contrôle de respirateurs sont destinés à qualifier les écoulements d'air, d'oxygène et d'oxyde nitrique aussi bien au sein des laboratoires que pour les soins à domicile.

Caractérisation chimique

Analyseur de la composition chimique et/ou du poids moléculaire d'un matériau dans des applications de recherche allant de l'analyse des gaz d'échappement aux études pharmaceutiques et à la détection des matières biologiques.

Analyse de gaz de combustion

Une ligne complète d'analyseurs de gaz de combustion, du contrôleur mono gaz à l'analyseur d'émissions le plus complet, utilisée pour la maintenance des systèmes de combustion, le contrôle de conformité, le suivi et la recherche en matière de moteurs et de combustion ainsi que l'échantillonnage d'émissions industrielles.

Contrôle des environnements à risques

Instruments qui permettent de contrôler l'environnement d'une pièce et d'assurer le confort et la sécurité des personnes travaillant dans les laboratoires, en chambres stériles et autres milieux sensibles.

Contrôle d'Exposition

Des instruments qui mesurent aussi bien les concentrations massiques en particules ou poussières dans l'air et les gaz dans les environnements industriels.

Instrument de mesure d'écoulement – Groupe de systèmes permettant de mesurer dans une large gamme d'application (écoulement laminaire, turbulent, combustion et autres types d'applications) les vitesses d'écoulement.

Qualité d'Air Intérieur

Des instruments conçus pour mesurer avec précision et fiabilité les paramètres pour le suivi et la maintenance des dispositifs mis en place pour le confort thermique tout en assurant que les intérieurs sont sains. Ces mesures incluent la température, l'humidité, les calculs d'apport d'air extérieur, le dioxyde de carbone, le monoxyde de carbone et les particules en suspension.

Débitmètres massiques

Appareils conçus pour mesurer le débit de différents types de gaz au sein de laboratoires ou de milieux industriels.

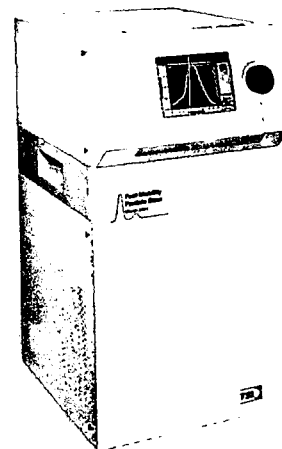


Protection NBC

Instruments de mesures des aérosols destinés à protéger le personnel civil et militaire contre les menaces Nucléaires, Biologiques et Chimiques.

Instruments pour la recherche sur les particules

Des instruments conçus pour mesurer la distribution granulométrique de particules, ainsi que générer et disperser des aérosols. Les applications sont aussi variées que les tests des filtres à air, les mesures d'aérosols atmosphériques, la détection d'aérosols biologiques, la caractérisation des particules et l'étude des émissions issues de la combustion.



Analyseur de particules par technique phase doppler –

Des systèmes qui mesurent la vitesse ainsi que la taille de particules générées par des sprays, dans les domaines des inhalateurs médicaux, des injecteurs et autres.

Tests d'adéquation de masques

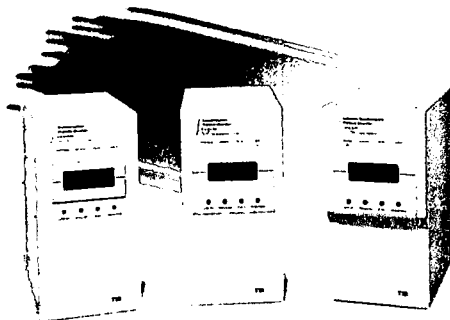
Des instruments et un logiciel conçus pour réaliser des tests quantitatifs d'efficacité de masques industriels, médicaux et militaires.

Instruments de Test de ventilation

Des instruments qui mesurent les paramètres pour le contrôle et la maintenance des environnements intérieurs, incluant la pression statique, manométrique, différentielle, la vitesse de l'air, le volume, la température et l'humidité.

TSI, un groupe résolument tourné vers le futur

Des mesures les plus simples aux plus compliquées, TSI reste le précurseur des nouvelles idées, un leader qui s'adapte aux enjeux imposés par les nouvelles technologies. Consulter notre site Internet www.tsi.com pour trouver la solution adaptée à vos besoins.



TSI France Inc.
Europarc Bât. D
26, rue John Maynard keynes
Technopôle de Château-Gombert
13013 Marseille
France

E-mail: tsifrance@tsi.com
Téléphone: +33 (0)4 91 952 190
Télécopie: +33 (0)4 91 952 191

