



HAL
open science

Caractérisation et filtration des aérosols nonastructurés : application aux fumées de projection thermique des métaux

Florence Grippari

► **To cite this version:**

Florence Grippari. Caractérisation et filtration des aérosols nonastructurés : application aux fumées de projection thermique des métaux. Alimentation et Nutrition. Université de Lorraine, 2012. Français. NNT : 2012LORR0158 . tel-01749361

HAL Id: tel-01749361

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749361>

Submitted on 29 Mar 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>



Centre National de Recherche Scientifique
(CNRS)

1 rue Grandville
BP 20451
54001 Nancy cedex



Laboratoire de réactions et génie des
procédés

Equipe SAFE - Sécurité, Aérosols, Filtration,
Explosions



Institut National de Recherche et de Sécurité
(INRS)

Département IP – Ingénierie des Procédés
Rue du Morvan – CS 60027
54519 Vandœuvre Les Nancy cedex



Université de Lorraine
34 cours Léopold - CS 25233
54 052 Nancy cedex



RP2E
2 avenue de la forêt de Haye
Site de Brabois
54501 Vandœuvre Les Nancy

Université de Lorraine

Ecole Doctorale Ressources, Procédés, Produits et Environnement (RP2E – ED n°410)

THESE

présentée en vue d'obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Lorraine

Spécialité

Génie des Procédés et des Produits

par

Florence GRIPPARI

Caractérisation et filtration des aérosols nanostructurés : application aux fumées de projection thermique des métaux

Soutenue publiquement le 14 novembre 2012 devant le Jury composé de :

Rapporteurs :	Evelyne GEHIN Yves GONTHIER	Professeur à l'Université Paris-Est Créteil Professeur à l'Université de Savoie
Examineurs :	Laurent BOUILLOUX Evelyne GONZE Jean-Christophe APPERT-COLLIN Denis BEMER Dominique THOMAS	Responsable du LECEV de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) Professeur à l'Université de Savoie Maître de Conférences à l'Université de Lorraine Responsable d'études à l'INRS, Vandœuvre Professeur à l'Université de Lorraine

Remerciements

Les travaux présentés dans ce manuscrit se sont déroulés sur deux sites. Le premier site est le Laboratoire de Réactions et Génie des Procédés (CNRS) dans le groupe SAFE dirigé par le professeur Dominique THOMAS. Le département Ingénierie des Procédés de l'Institut National de Recherche et de Sécurité a été le deuxième site de ma thèse. Avant de présenter mes résultats, je tiens à remercier ces deux unités dans leur ensemble pour m'avoir accueillie et permis de mener ce travail à terme malgré les difficultés rencontrées.

Je remercie en premier lieu mes encadrants de thèse : M. Dominique THOMAS, Professeur, en qualité de Directeur de thèse et pour m'avoir ouvert les portes de la recherche, M. Jean-Christophe APPERT-COLLIN, Maître de conférences, en qualité de co-directeur de thèse et M. Denis BEMER, Docteur-Ingénieur, en tant que Responsable d'études. Je voudrais également remercier M. POURQUET et M. SILVENTE pour les moyens qu'ils ont mis à disposition.

Je remercie M. Sébastien BAU et M. Xavier SIMON pour leur participation et leur soutien dans ma thèse. Je remercie également M. Olivier RASTOIX pour ses talents de microscopiste. Je n'oublie pas non plus M. Serge CORBEL pour son prêt de l'interféromètre, sans quoi beaucoup de mesures n'auraient pu aboutir.

J'adresse mes respectueux remerciements Mme Evelyne GONZE, Professeur à l'Université de Savoie pour me faire l'honneur de présider ce Jury de thèse, à M. Yves GONTHIER, Professeur à l'Université de Savoie et Mme Evelyne GEHIN, professeur à l'Université de Paris-Est Creteil, d'avoir accepté de faire partie de ce jury de thèse en tant que rapporteurs. Je suis très reconnaissante à M. Laurent BOUILLLOUX, Responsable du laboratoire Service de Confinement et d'Aérodispersion (SCA) à l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) d'avoir accepté de participer à ce Jury de thèse.

Je remercie également Mme Sandrine CHAZELET pour sa grande disponibilité, ses conseils judicieux et son large soutien durant une partie de mon travail effectué à l'INRS qui ont été particulièrement précieux au début de ma thèse.

Je souhaite remercier le personnel de l'INRS pour m'avoir accueillie. Ainsi, je remercie M. François BRANDT, M. Philippe FERRARI, M. Patrick MARTIN, Mme Aline MARCELIN et Mme Armelle OREL.

Je remercie M. Yves MORELE pour son aide et ses connaissances précieuses sur l'ensemble de mes manipulations à l'INRS.

Je n'oublie pas non plus Mme Stéphane MARSTEAU et Mme Marie LECLER. Je remercie sincèrement M. Roland REGNIER pour son implication dans la construction du banc « Métallisation » et lui souhaite une bonne retraite Je souhaite aux doctorants Vincent CESARD et Romain GUICHARD une bonne continuation dans leurs travaux.

Je voudrais dire merci à mes amis essentiellement doctorants du LRGP pour leurs encouragements au quotidien et aux bon moments passés ensemble. Je remercie du fond du cœur en tout premier lieu Mélina CHRISTODOULOU pour sa bonne humeur, sa combativité, sa compréhension et nos longues conversations ainsi que son fiancé Cyril. Je remercie mes collègues de travail Quentin RIBEYRE et Maria CADAVID-RODRIGUEZ pour leur sympathie.

Je remercie les personnes qui m'ont aidées au cours de ma vie et m'ont permis de devenir l'être que je suis aujourd'hui. Je suis particulièrement reconnaissante à M. André DEGRAEVE, M. Yves GONTHIER, M. Alain BERNIS et Mme Johanne DELAROVERE.

Je me tourne à présent vers ma famille plus proche et les remercie pour leur accompagnement dans ma thèse. Je remercie ma tante Fioretta ainsi que mes frères Guillaume et Xavier.

Je remercie plus particulièrement ma mère pour son écoute, sa gentillesse et son soutien en toute occasion. Mes pensées vont enfin à mes grands-parents Camille et Albina qui n'ont pas eu l'opportunité de voir la fin de ce travail. Leur détermination et leur force m'accompagnent. Je leur dédie ce mémoire.

A mes grands-parents Camille et Albina

Sommaire

REMERCIEMENTS	3
SOMMAIRE	I
LISTE DES FIGURES	III
LISTE DES TABLEAUX	VII
NOTATIONS	IX
INTRODUCTION GENERALE ET PROBLEMATIQUE	1
CHAPITRE 1 GENERALITES SUR LA METALLISATION	5
1.1. GENERALITES SUR LES PROCEDES DE PROJECTION THERMIQUE	5
1.2. LEGISLATION DES FUMEEES DE METALLISATION	9
1.3. REGLEMENTATION	9
1.4. TOXICOLOGIE DES FUMEEES DE METALLISATION	10
1.5. PREVENTION	12
1.6. CONCLUSION	14
CHAPITRE 2 PRESENTATION DU BANC « METALLISATION »	15
2.1. PRESENTATION ET FONCTIONNEMENT DU DEPOUSSIEREUR	15
2.2. DESCRIPTION DU BANC	17
2.3. DESCRIPTION DES ELEMENTS PRINCIPAUX	20
2.3.1. <i>Enceinte de métallisation</i>	20
2.3.2. <i>Ensemble cyclone-dépoussiéreur industriel</i>	23
2.3.3. <i>Dépoussiéreur pilote</i>	24
2.4. CONCLUSION	28
CHAPITRE 3 CARACTERISATION DES FUMEEES	29
3.1. TAILLE D'UNE PARTICULE	29
3.1.1. <i>Diamètres équivalents</i>	29
3.1.2. <i>Relation entre les diamètres équivalents</i>	32
3.1.3. <i>Caractéristiques d'un agglomérat</i>	36
3.1.4. <i>Dimension fractale</i>	36
3.1.5. <i>Principaux montages de détermination des propriétés des particules</i>	38
3.1.6. <i>Masse volumique de l'agglomérat.</i>	39
3.2. METHODES DE PRELEVEMENT	42
3.2.1. <i>Description de la ligne de prélèvement 2</i>	42
3.2.2. <i>DLPI</i>	43
3.2.3. <i>ELPI</i>	43
3.2.4. <i>SMPS</i>	47
3.3. RESULTATS	51
3.3.1. <i>Comparaison granulométrie pilote et terrain</i>	51

3.3.2.	<i>Distribution granulométrique</i>	52
3.3.3.	<i>Morphologie</i>	54
3.3.4.	<i>Détermination de la dimension fractale et de la masse volumique effective</i>	60
3.4.	CONCLUSION	81
CHAPITRE 4	CARACTERISATION DU DEPOT	84
4.1.	BIBLIOGRAPHIE	84
4.1.1.	<i>Perte de charge</i>	85
4.1.2.	<i>Données disponibles sur le colmatage</i>	87
4.1.3.	<i>Modèles de perte de charge du dépôt</i>	92
4.2.	ETUDE DU COLMATAGE DE FILTRE PLAN	97
4.2.1.	<i>Matériel et méthodes</i>	97
4.2.2.	<i>Influence de la vitesse</i>	99
4.2.3.	<i>Mesure de la porosité</i>	101
4.3.	ESTIMATION DE LA POROSITE GLOBALE THEORIQUE	106
4.4.	CHOIX DU MODELE DE PERTE DE CHARGE	119
4.4.1.	<i>Approche particules primaires</i>	119
4.4.2.	<i>Approche agglomérat</i>	123
4.5.	CONCLUSION	127
CHAPITRE 5	CYCLES COLMATAGE/DECOLMATAGE DES MEDIAS PLSSES ET PLANS	130
5.1.	BIBLIOGRAPHIE	131
5.1.1.	<i>Décolmatage</i>	131
5.1.2.	<i>Description des cycles de colmatage/décolmatage</i>	139
5.2.	MEDIA PLSSE	142
5.2.1.	<i>Description de la ligne de prélèvement 5</i>	142
5.2.2.	<i>Efficacité initiale</i>	144
5.2.3.	<i>Cycles de colmatage/décolmatage</i>	144
5.3.	MEDIA PLAN	152
5.3.1.	<i>Matériel et méthode</i>	152
5.3.2.	<i>Résultats</i>	157
5.4.	ALTERNATIVES	163
5.5.	CONCLUSION	165
CONCLUSION ET PERSPECTIVES		168
REFERENCES		172
LEXIQUE		190
ANNEXE		194
ANNEXE 1	CARACTERISTIQUES TECHNIQUES DU DEPOUSSEUR INDUSTRIEL	196
ANNEXE 2	DESCRIPTION TECHNIQUE DES CARTOUCHES	198
ANNEXE 3	DESCRIPTION DES MECANISMES DE L'ELPI	200
ANNEXE 4	MODELE D'ENDO POUR UN AEROSOL POLYDISPERSE	210
ANNEXE 5	FONCTIONNEMENT DU MICROSCOPE ELECTRONIQUE A TRANSMISSION	214
ANNEXE 6	DESCRIPTION DES GENERATEURS LASKIN ET PALAS GFG-1000	218
ANNEXE 7	MECANISMES DE COLLECTES GENERAUX	222

Liste des figures

Figure 1.1 : La projection thermique dans les traitements de surface. Extrait des techniques de l'ingénieur (Proner, 1999)	5
Figure 1.2 : Distribution en nombre des fumées de métallisation dans une entreprise. Mesures ELPI	10
Figure 1.3 : Probabilité de dépôt au sein de l'arbre pulmonaire (Witschger & Fabriès, 2005)	12
Figure 1.4 : Hiérarchie de maîtrise de risques appliquée aux nanoparticules (Ostiguy et al., 2006)	12
Figure 2.1 : Principe de fonctionnement d'un dépoussiéreur à filtre plissé	16
Figure 2.2: Schéma de principe du banc métallisation	18
Figure 2.3 : Vue du banc de génération des fumées de métallisation (INRS)	20
Figure 2.4 : Vue du dépoussiéreur pilote	20
Figure 2.5 : Schéma de principe d'un pistolet à arc électrique.	21
Figure 2.6 : Schéma de principe de l'enceinte de métallisation	22
Figure 2.7 : Photo de l'intérieur de l'enceinte de métallisation	22
Figure 2.8 : Photo du moteur d'alimentation du pistolet	22
Figure 2.9 : Photo du cyclone en amont du dépoussiéreur DFO 3-12.	24
Figure 2.10 : Photo du dépoussiéreur DFO 3-12	24
Figure 2.11 : Vue générale du dépoussiéreur pilote.	25
Figure 2.12 : Photo du dépoussiéreur pilote ouvert.	25
Figure 2.13 : Photo du média A	27
Figure 2.14 : Photo du média B	27
Figure 2.15 : Vue amont au microscope à balayage du média A	27
Figure 2.16 : Vue aval au microscope à balayage du média A	27
Figure 3.1 : Diamètres équivalents utilisés pour les agglomérats de nanoparticules	30
Figure 3.2 : Illustration du diamètre équivalent en volume d'une particule.	30
Figure 3.3 : Illustration du diamètre de mobilité électrique d'une particule.	35
Figure 3.4 : Illustration de morphologie d'agrégats de dimensions fractales différentes (Ouf, 2006)	37
Figure 3.5 : Schéma détaillé de la ligne 2	42
Figure 3.6 : Principe de l'Electrical Low Pressure Impactor	44
Figure 3.7 : Efficacité de charge E_{ch} du chargeur corona de l'ELPI en fonction du diamètre de mobilité électrique des particules	46
Figure 3.8 : Sélection par un DMA d'une particule de mobilité électrique donnée	48
Figure 3.9 : Distribution de charge de particules entre 1 et 100 nm après passage au sein d'une source bipolaire d'après Wiedensohler	50
Figure 3.10 : Comparaison des distributions en nombre des fumées de métallisation sur le terrain et sur le banc d'essais « Métallisation ». Piquage aval cabine métallisation et amont dépoussiéreur, dilution 1000, partie micronique coupée par un impacteur. Masse volumique supposée : 5724 kg.m^{-3}	52
Figure 3.11 : Distribution granulométrique en masse de l'aérosol Zn/Al par impacteur Marple Andersen 298	52
Figure 3.12 : Distribution granulométrique en masse de l'aérosol Zn/Al par impacteur DLPI.	53
Figure 3.13 : Distribution granulométrique en nombre de la fraction submicronique de l'aérosol Zn/Al54	

Figure 3.14 : Cliché de microscopie électronique à transmission des particules ultrafines contenues dans les fumées de métallisation réalisé à partir de la conduite de prélèvement.	55
Figure 3.15 : Distribution des particules primaires issues des fumées de métallisation.	56
Figure 3.16 : Distribution granulométrique SMPS corrigée selon Lall et Friedlander	58
Figure 3.17 : Schéma de principe du tandem DMA-ELPI dans le cas de l'aérosol de carbone	60
Figure 3.18 : Schéma de principe de la modélisation	62
Figure 3.19 : Aérosol généré suivant une loi log-normale (GSM = 200 nm, GSD = 1,5) - GSM : Geometric Standard Mean – GSD : Geometric Standard Deviation.	63
Figure 3.20 : Etat de charge de l'aérosol à la sortie de la source radioactive	64
Figure 3.21 : Distribution en nombre en sortie de la source radioactive	64
Figure 3.22 : Fonctions de transfert pour $d_{m0} = 191,3$ nm	65
Figure 3.23 : Aérosol en sortie de la colonne DMA. N représente le nombre de charges élémentaires	65
Figure 3.24 : Efficacité de transport de l'aérosol entre le DMA et l'ELPI	66
Figure 3.25 : Charge de l'aérosol en entrée de l'ELPI pour les différentes populations de particules portant -N charges. E_{ch} représente l'efficacité de charge après passage du corona de l'ELPI ($fA \cdot cm^3$), $I(-N)$, le courant porté par la population portant -N charges à la sortie du DMA après passage du corona de l'ELPI	67
Figure 3.26 : Courbes de probabilité de dépôt des particules. La courbe numérotée i correspond à la probabilité qu'une particule de diamètre dynamique d_a soit collectée sur le plateau i. La courbe « totale » est la somme des probabilités sur l'ensemble des plateaux.	68
Figure 3.27 : Histogramme final de l'ELPI. Courant -N correspond au courant engendré par la population sortie du DMA	68
Figure 3.28 : Evolution de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique pour le DEHS.	72
Figure 3.29 : Diamètre des particules bichargées en fonction des particules monochargées	73
Figure 3.30 : Comparaison du traitement d'inversion avec les diamètres médian et géométrique.	73
Figure 3.31 : Evolution expérimentale de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique pour des agglomérats nanostructurés de carbone.	74
Figure 3.32 : Schéma de principe du couplage DMA-ELPI adapté au banc « Métallisation »	76
Figure 3.33 : Photo du tandem DMA-ELPI appliqué aux fumées de métallisation.	77
Figure 3.34 : Evolution de la masse effective en fonction du diamètre de mobilité électrique pour les fumées de métallisation.	78
Figure 3.35 : Caractéristiques de l'évolution de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique	79
Figure 3.36 : Estimation du facteur de forme dynamique χ en fonction du diamètre en mobilité électrique d_m .	80
Figure 4.1 : Illustration des différentes phases de colmatages.	86
Figure 4.2 : Illustration du bouchage des plis selon différentes vitesses.	87
Figure 4.3 : Evolution de la perte de charge d'un média plissé selon le nombre de pli. 1 inch = 25,4 mm. 1 W.G = 0,249066 kPa. (Chen et al., 1995)	89
Figure 4.4 : Relation schématique entre la structure du dépôt et les conditions de filtration en fonction du nombre de Péclet Pe , de Stokes St et du nombre d'interception (Kanaoka, 1986).	90
Figure 4.5 : Schéma détaillé de la ligne 4.	97
Figure 4.6 : Photo des impacteurs en cascade Andersen 1 ACFM (à gauche) et Andersen Marple 298 (à droite)	98
Figure 4.7 : Evolution de la perte de charge du dépôt en fonction de la masse surfacique déposée pour différentes vitesses moyennes de filtration	100
Figure 4.8 : Vue de l'interféromètre	101
Figure 4.9: Schéma de principe des mesures par interférométrie	102
Figure 4.10 : Exemple de déviation du signal dans l'interférométrie	103

Figure 4.11 : Evolution de l'épaisseur du dépôt en fonction de la masse surfacique déposée pour différentes vitesses moyennes de filtration	103
Figure 4.12 : Evolution de la porosité du dépôt en fonction de la masse surfacique déposée pour différentes vitesses moyennes de filtration	105
Figure 4.13 : Evolution de la porosité du dépôt en fonction de la vitesse moyenne de filtration	106
Figure 4.14 : Schéma des porosités inter et intra-agrégat.	107
Figure 4.15 : Illustration de la longueur maximale projetée L et du diamètre de giration d_g .	109
Figure 4.16 : Evolution du nombre de particules primaires constituant un agrégat selon le diamètre en mobilité électrique	112
Figure 4.17 : Illustration du facteur de recouvrement	115
Figure 4.18 : Evolution de la dimension fractale D_f et du préfacteur fractal k_G pour de particules simulées en fonction du paramètre de recouvrement δ . $k_{G,\infty}$ est la valeur lorsque N_{pp} tend vers l'infini (Oh & Sorensen, 1997)	116
Figure 4.19 : Evolution de la porosité globale en fonction du préfacteur fractal et du nombre de particules primaires.	117
Figure 4.20: Evolution de la porosité globale en fonction de la dimension fractale D_f . Les paramètres k_G et N_{pp} sont gardés constants et valent respectivement 2,4 et 200.	118
Figure 4.21 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle de Novick. Particules primaires	120
Figure 4.22 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle d'Endo. Particules primaires	120
Figure 4.23 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle d'Endo-Cunningham. Particules primaires	121
Figure 4.24 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle de Thomas (pas de fusion). Particules primaires	121
Figure 4.25 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle de Thomas (fusion partielle). Particules primaires	122
Figure 4.26 : Distribution de la population submicronique en nombre en fonction du diamètre équivalent en volume	124
Figure 4.27 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle de Novick. Agglomérat	125
Figure 4.28 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle d'Endo. Agglomérat	125
Figure 4.29 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle d'Endo-Cunningham. Agglomérat	126
Figure 5.1 : Schémas des différentes étapes du mouvement d'une manche lors d'un décolmatage pneumatique. P_{int} : pression intérieure, P_{ext} , pression extérieure (Simon, 2005)	134
Figure 5.2 : Illustration de la surpression ΔP_{over} du décolmatage (Lo, Chen, et al., 2010)	135
Figure 5.3 : Illustration du pas de plissage et de la hauteur d'un filtre plissé.	136
Figure 5.4 : Profil de la pression statique d'un filtre plissé.	137
Figure 5.5 : Illustration des cycles de colmatage/décolmatage. Décolmatage déclenché pour une perte de charge fixe.	141

Figure 5.6 : Vue générale du dépoussiéreur pilote	142
Figure 5.7 : Schéma détaillé de la ligne 5	143
Figure 5.8 : Efficacité fractionnelle de la cartouche A en fonction du diamètre aérodynamique des particules à une masse surfacique de 6 g.m^{-2} à 10 L.min^{-1}	144
Figure 5.9 : Evolution de la perte de charge du média A en fonction de la masse surfacique des fumées de métallisation générées, On-line : décolmatage on-line. P_{delc} représente la pression de décolmatage.	145
Figure 5.10 : Evolution de la perte de charge d'un média plan pour la totalité des particules et les particules submicroniques.	146
Figure 5.11 : Evolution de la perte de charge du média B en fonction de la masse surfacique des fumées de métallisation générées. Les courbes bleue et rouge correspondent respectivement à la perte de charge et au à la perte de charge rapportée à la vitesse de filtration instantanée.	149
Figure 5.12 : Cliché du média B après un décolmatage off-line.	151
Figure 5.13: Schéma détaillé de la ligne 4	153
Figure 5.14 : Illustration de l'ensemble {support + filtre} dans l'étude des cycles colmatage/décolmatage sur filtre plan	154
Figure 5.15 : Schéma de principe du banc « décolmatage »	155
Figure 5.16 : Vue d'ensemble du banc "décolmatage".	155
Figure 5.17 : Exemple de signal mesuré par oscilloscope d'un décolmatage on-line. Conditions opératoires : pression de décolmatage de 6 bars pendant 200 ms.	156
Figure 5.18 : Evolution de la perte de charge en fonction de la masse surfacique générée sur l'ensemble des cycles de colmatage/décolmatage du média C. DON : décolmatage on-line, DOF : décolmatage off-line.	158
Figure 5.19 : Etude de compressibilité du gâteau de colmatage à une masse surfacique générée de $14,8 \text{ g.m}^{-2}$	160
Figure 5.20 : Clichés avant et après décolmatage du média plan C.	162
Figure 5.21 : Evolution de la perte de charge de la cartouche B ($8,5 \text{ m}^2$) à $1,15 \text{ cm.s}^{-1}$ en fonction des différentes configurations d'essais. on : décolmatage on-line, off : décolmatage off-line, D-M : décolmatage manuel, PC : precoating ($23,5 \text{ g.m}^{-2}$ poussière de dolomite)	164

Liste des tableaux

Tableau 1.1 : Caractéristiques des différents procédés de projection thermique (Proner, 1999)	7
Tableau 1.2 : Secteurs d'activité dans lesquels la mise en œuvre d'un ou plusieurs procédés de projection thermique est possible en France (Savary, 2011)	7
Tableau 2.1 : Caractéristiques des conditions de génération des fumées de métallisation	23
Tableau 2.2 : Propriétés à l'état neuf des médias filtrants testés	26
Tableau 3.1 : Valeurs de facteur de forme dynamique dans la littérature	33
Tableau 3.2 : Principaux montages de détermination des propriétés des particules. ρ_e : masse volumique effective ; D_f : dimension fractale, d_{pp} : diamètre de particule primaire, L : longueur maximale projetée de l'agglomérat/agrégat.	38
Tableau 3.3 : Coefficients a_i de Wiedensohler (1988)	49
Tableau 3.4 : Composition chimique des fumées de métallisation par microanalyse EDS	59
Tableau 3.5 : Calcul de la masse volumique effective en fonction du diamètre aérodynamique caractéristique	69
Tableau 3.6 : Caractéristiques principales des aérosols tests	70
Tableau 3.7 : Valeurs de dimension fractale des agglomérats de carbone.	75
Tableau 3.8 : Synthèse de la caractérisation des fumées de métallisation produites par le banc	83
Tableau 4.1 : Valeurs de porosité dans la littérature.	91
Tableau 4.2 : Propriétés à l'état neuf du filtre GLA-5000	98
Tableau 4.3 : Conditions de colmatages submicronique sur filtre plan	99
Tableau 4.4 : Porosité du dépôt pour différentes vitesses moyennes de filtration de 7,8, 18,8 et 30,9 cm.s^{-1}	104
Tableau 4.5 : Estimation de la constante de Hamaker selon le système fibres/particules.	112
Tableau 4.6 : Comparaison des couples préfacteur/dimension fractale disponibles dans la littérature.	114
Tableau 4.7 : Synthèse de l'estimation des paramètres pour le calcul théorique de la porosité globale	118
Tableau 4.8 : Synthèse des résultats relatifs au dépôt	128
Tableau 5.1 : Synthèse des cinétiques des colmatages du média B. La session 1 est exclue des moyennes car elle correspond à une mise en régime du média.	150
Tableau 5.2 : Propriétés à l'état neuf du filtre C	153
Tableau 5.3 : Synthèse des cinétiques des cycles de colmatage/décolmatage du média plan C.	159
Tableau 5.4 : Synthèse des différents colmatages effectués sur le média C.	161
Tableau 5.5 : Synthèse des efficacités des décolmatage avec/sans precoating, - : inefficace, - : peu efficace, +: efficace.	166

Notations

Constantes

A	constante de Hamaker	4.10^{-19} J
C_i	vitesse moyenne des ions	240 m.s^{-1}
e	charge élémentaire	$1,602.10^{-19}$ C
k_B	constante de Boltzmann	$1,38.10^{-23}$ J.K ⁻¹
S	constante de Sutherland	110,4 K pour l'air
C_1	constante de cohésion	$\text{m}^2.\text{g}^{-1}$
ϵ_0	constante diélectrique du vide	$8,854.10^{-12}$ F.m ⁻¹

Symboles latins

a_{gc}	surface spécifique de la particule primaire	m^{-1}
a_{gf}	surface spécifique d'une fibre	m^{-1}
a_{gp}	surface spécifique d'une particule	m^{-1}
C_0	facteur de recouvrement	-
C_N	concentration numérique	part.m ⁻³
C_u	coefficient de correction de Cunningham	-
d_a	diamètre équivalent aérodynamique	m
d_{ag}	diamètre de l'agglomérat/agrégat	m
d_{ev}	diamètre équivalent en volume	m
D_f	dimension fractale	-
d_f	diamètre de fibre moyen	m
D_{fm}	dimension fractale liée à d_m	-
d_g	diamètre de giration	m
$d_{g,ev}$	diamètre géométrique de la distribution en volume	m
$d_{g,N}$	diamètre géométrique de la distribution en nombre	m
d_m	diamètre équivalent en mobilité électrique	m
d_{me}	diamètre équivalent en masse	m
d_p	diamètre de la particule	m
d_{pp}	diamètre de particule primaire	m
D_{pr}	dimension fractale liée à d_a	-
d_{qe}	diamètre de charge électrique équivalent	m
E_{ch}	efficacité de charge du corona de l'ELPI	fA.cm ³
e_g	épaisseur du gâteau	m
F_{ad}	forces d'adhésion entre le dépôt et la surface filtrante	N
F_c	facteur correctif du modèle de Thomas	-
F_{co}	forces de cohésion au sein du gâteau	N
F_{drag}	force de traînée d'une particule	N
G	grammage	g.m^{-2}
h_k	coefficient de Kozeny	-
I	intensité électrique	A

k_{fm}	préfacteur fractal lié à D_{fm}	-
k_G	préfacteur fractal lié à D_f	-
k_m	préfacteur lié à D_{fm}	-
Kn	nombre de Knudsen	-
k_{pr}	préfacteur lié à D_{pr}	-
L	longueur maximale projeté de l'agglomérat	m
m	masse	kg
m_g	masse du gâteau	kg
N	nombre de plis	-
N_{pp}	nombre de particules primaires	-
n_T	charge globale des particules dans le corona de l'ELPI	A.s
P	pression	Pa
p	nombre de charges élémentaires portées par la particule	-
P_{amont}	Pression à l'amont du filtre	Pa
P_{aval}	Pression à l'aval du filtre	Pa
Pe	nombre de Péclet	-
P_s	pression statique	Pa
P_T	pénétration des particules dans le corona de l'ELPI	$A^{-1}.s^{-1}$
Q	débit volumique	$m^3.s^{-1}$
R_f	résistance du filtre à l'écoulement	m^{-1}
S_f	surface filtrante	m^2
T	température	K
U_f	vitesse de filtration	$m.s^{-1}$
U_i	vitesse interstitielle	$m.s^{-1}$
V	volume	m^3
V_{TS}	vitesse de chute d'une particule	$m.s^{-1}$
Z	mobilité électrique	$m^2.s^{-1}.V^{-1}$
Z_f	épaisseur du média	m

Symboles grecs

μ_g	viscosité dynamique	Pa.s
α_f	compacité du média	-
α_g	compacité du gâteau	-
β	rapport de plissage	-
ΔP	Perte de charge	Pa
ΔP_f	Perte de charge d'un média vierge	Pa
ΔP_g	perte de charge du gâteau	Pa
ΔP_{over}	surpression	Pa
$\Delta P_{résiduel}$	perte de charge après décolmatage	Pa
ε	porosité	-
ε_g	porosité du gâteau	-
ε_{inter}	porosité inter-agrégat	-
ε_{intra}	porosité intra-agrégat	-
η	efficacité de charge	-
λ_g	libre parcours moyen	m
ρ	masse volumique	$kg.m^{-3}$
ρ_0	masse volumique de référence	$kg.m^{-3}$
ρ_e	masse volumique effective	$kg.m^{-3}$

Notations

ρ_p	masse volumique de la particule	kg.m^{-3}
σ_g	écart-type géométrique relatif à une distribution log-normale	-
ν	fonction de vide	-
χ	facteur de forme dynamique	-
ω	constante expérimentale	Pa.m

Indices et exposants

0	initial ou référence
agg	relatif à l'agglomérat
ev	relatif à la sphère de diamètre d_{ev}
f	relatif au média ou au filtre
g	relatif au gâteau
m	relatif au matériau
p	relatif à la particule
pp	relatif à la particule primaire
sph	relatif à une sphère

Acronymes

AMS	Aerosol Mass Spectrometer
APM	Aerosol Particle Mass analyzer
CNC	Compteur à Noyaux de Condensation
DLPI	Dekati® Low Pressure Impactor
DLS	Dynamic Light Scattering
DMA	Differential Mobility Analyzer
EDS	Energy Dispersive Spectrometry
ELPI	Electrical Low Pressure Impactor
SLS	Static Light Scattering
SMPS	Scanning Mobility Particle Sizer
TEM ou MET	Transmission Electronic Microscopy ou Microscope Electronique à Transmission

Introduction générale et problématique

Assurer et conserver la pureté de notre atmosphère est une préoccupation majeure à notre époque. La filtration de l'air est un objectif primordial dans de nombreux secteurs susceptibles d'engendrer une pollution particulaire : bâtiment, automobile ou encore bien d'autres secteurs industriels. Depuis longtemps, de nombreuses études se sont attachées à la compréhension et à la prédiction du comportement des médias filtrants vis-à-vis des particules. Actuellement, du fait du récent accroissement massif des nanotechnologies, les études sur les nanoparticules connaissent un grand développement.

Cet essor soulève des interrogations sur l'exposition professionnelle. En 2009, la commission particulière du débat public nanotechnologie pointe le manque de connaissance sur la métrologie et la toxicité des nanoparticules, qu'elles soient un produit recherché ou un résidu de procédé tel que la combustion, le broyage, la fusion des matériaux (fumées).

A ce jour, aucune législation spécifique aux nano-objets n'existe sur les valeurs limites d'exposition (VLE). L'ACGIH (American Conference of Governmental Industrial Hygienists., 2007) considère que les données sont actuellement insuffisantes pour déterminer des valeurs limites spécifiques pour les nanoparticules. En revanche, des VLE existent pour les poussières. Les VLE françaises sur une période de travail de 8h sont de 10 mg.m^{-3} pour les poussières inhalées sans effet reconnu et de 5 mg.m^{-3} pour les poussières alvéolaires. Le National Institute for Occupational Safety and Health (NIOSH) ("CDC - NIOSH Publications and Products - Current Intelligence Bulletin 63," 2012) préconise pour les particules de dioxyde de titane une VLE $0,3 \text{ mg.m}^{-3}$ pour sa forme nanoparticule et $2,4 \text{ mg.m}^{-3}$ au-delà.

Notre étude porte sur les particules métalliques contenues dans les fumées issues de procédés de projection thermique (ou fumées de métallisation). Ces particules sont toxiques du fait de leur composition chimique. C'est pourquoi, le procédé se déroule dans une enceinte fermée et le personnel doit être protégé. L'air extrait pour la protection collective des travailleurs doit être filtré pour protéger l'environnement extérieur. Cette opération est assurée dans la majorité des installations par un dépoussiéreur à médias filtrants. Le dépôt formé par les poussières captées induit une augmentation de la perte de charge du filtre, ce qui entraîne une augmentation du coût énergétique et des difficultés à maintenir le débit de filtration nominal. Il est alors impératif de régénérer le filtre.

Des retours d'expériences spécifiques aux installations de métallisation témoignent d'un colmatage des filtres très rapide ainsi que de l'inefficacité des techniques de décolmatage pneumatique habituellement utilisées. Il en résulte une durée de vie des éléments filtrants très réduite. Les mesures de terrains montrent que 80% à 95% en nombre des particules

contenues dans les fumées de métallisation ont une taille inférieure à 100 nm, c'est-à-dire qu'elles correspondent aux particules dites ultrafines (PUF). Ces particules sont soupçonnées d'être responsables des colmatages rapides et des mauvais décolmatages observés du fait qu'elles présentent d'une part, une grande surface spécifique impliquant de une augmentation de résistance aéraulique et d'autre part, des forces d'adhésion dépôt/surface du média importantes.

Ce travail de recherche s'inscrit dans une volonté de l'INRS (Institut National de Recherche et de Sécurité) en collaboration avec l'équipe SAFE (Sécurité, Aérosols, Filtration et Explosion) du LRGP (Laboratoire Réactions et Génie des Procédés) de réunir des informations sur les fumées de métallisation et d'améliorer les performances des dépoussiéreurs à cartouches filtrantes vis-à-vis des fumées de métallisation. Il s'agit donc d'étudier aussi bien la phase de filtration que celle du décolmatage. A terme, ce travail doit contribuer à l'augmentation de la durée de vie des éléments filtrants et le maintien du débit de filtration pour préserver la santé et la sécurité du personnel ainsi que la qualité de l'environnement extérieur.

Pour répondre à cette problématique, ce document a été décomposé en cinq parties :

Le premier chapitre est consacré à des généralités sur le procédé de métallisation et son contexte. Nous y présentons les différents types de procédés de projection thermique et un récent recensement des entreprises susceptibles de mettre en œuvre un ou plusieurs de ces procédés. Nous abordons le cadre législatif des fumées de métallisation et les différentes études toxicologiques et épidémiologiques conduites sur les nanoparticules sur l'animal et l'homme dont le zinc et l'aluminium.

Le second chapitre est dédié à la description détaillée du banc d'essais et du matériel utilisé au cours de notre étude. L'originalité de ce travail réside dans le fait que nous reproduisons le procédé de métallisation à une échelle moindre sur un banc instrumenté. L'ensemble des appareils utilisés (enceinte de métallisation, cyclone, dépoussiéreurs) provient d'un fournisseur industriel. L'extrapolation au terrain en sera donc plus aisée. L'instrumentation du banc est décomposée en cinq parties : suivi de concentration massique, instrumentation, caractérisation du dépôt, étude des cycles de colmatage/décolmatage sur filtre plan et sur cartouche plissée.

Le chapitre 3 débute sur les notions de caractérisation de particules. Nous nous axerons tout d'abord sur la caractérisation des fumées de métallisation. Ceci passe par la définition de différentes notions valables pour l'ensemble des particules (diamètres équivalents, facteur de forme dynamique) et également celles spécifiques à un regroupement de particules primaires appelé agglomérat (masse volumique effective, dimension fractale). Ce chapitre décrira donc les fumées de métallisation en termes de distribution granulométrique mais également structurelle. Ce dernier point a fait l'objet d'un banc expérimental annexe et d'une modélisation.

Le quatrième chapitre présente les caractéristiques du dépôt formé au cours de la phase de filtration. Le dépôt des fumées de métallisation sur média plan est caractérisé par sa

porosité. L'influence de la vitesse est également étudiée. Nous comparerons la détermination de la porosité expérimentale à la théorique. Nous relèverons ensuite divers modèles de perte de charge de la littérature pour tenter de prédire la perte de charge du média filtrant pendant cette période et choisir le modèle le plus adapté. Deux approches sont abordées conformément à ce qui est observé dans la littérature : particule primaire et agglomérat.

Le cinquième et dernier chapitre investit les cycles de colmatage/décolmatage sur des médias plissés et plans. Cette partie fera l'objet de la détermination des cinétiques de colmatage. Nous étudierons l'inefficacité des décolmatages classiquement utilisés. Une étude approfondie du décolmatage sur filtre est menée pour améliorer le décolmatage.

Enfin, une conclusion générale viendra clore ce manuscrit. Elle rassemblera les principaux éléments mis en évidence dans cette étude de recherche, leurs apports et les perspectives qui peuvent être envisagées.

Chapitre 1

Généralités sur la métallisation

1.1. Généralités sur les procédés de projection thermique

L'apparition des revêtements par projection thermique date du XX^e siècle avec le procédé de shoopage du nom de son inventeur Shoop. Le but principal de ce procédé est d'améliorer les propriétés d'un matériau, appelé matériau support, pour résister à diverses sollicitations. Ces sollicitations peuvent être internes (contraintes mécaniques), externes (frottement) ou encore environnementales (corrosion, oxydation, chaleur, attaque chimique) (Proner, 1999). Les différentes classes constituant les traitements de surface sont présentées sur la Figure 1.1.

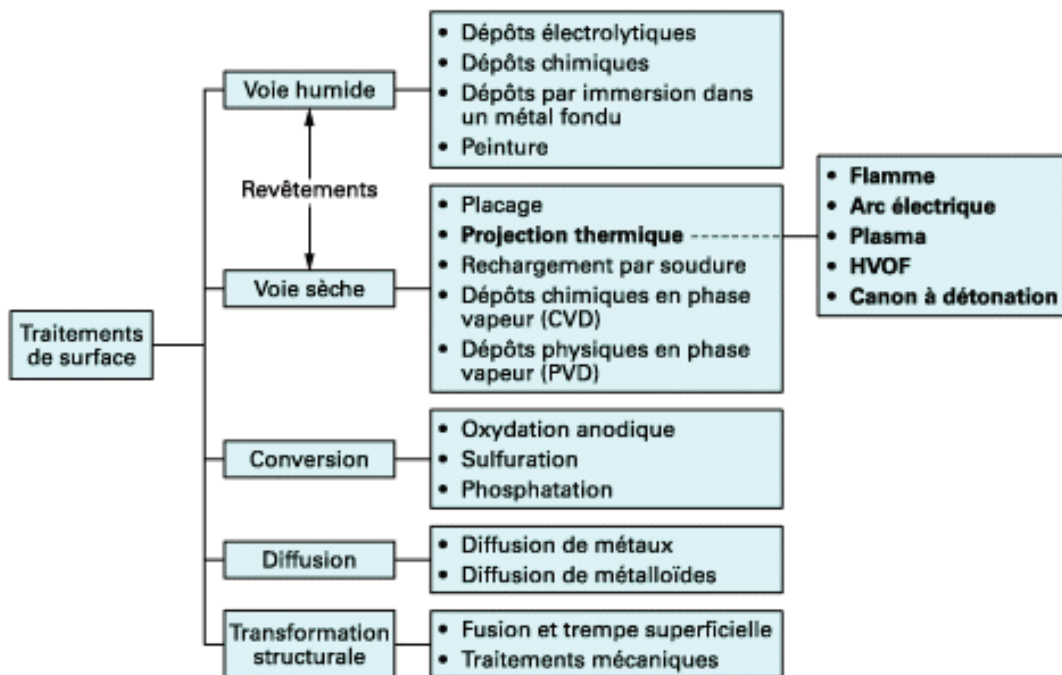


Figure 1.1 : La projection thermique dans les traitements de surface. Extrait des techniques de l'ingénieur (Proner, 1999)

La projection thermique est aujourd'hui utilisée dans de nombreux domaines tels que l'automobile ou le bâtiment en tant que protection anticorrosion. Elle est également utilisée pour améliorer la résistance aux frottements et la biocompatibilité des prothèses médicales.

Bien qu'il existe plusieurs procédés de projection thermique, le principe reste identique. un matériau d'apport (métal, céramique, plastique, ...) est fondu à haute température par l'énergie dégagée par une flamme oxy-gaz (généralement un mélange d'acétylène et d'oxygène) ou un arc électrique puis projeté à grande vitesse sur la pièce à traiter (Ducos, 1999). Le matériau projeté adhère très fortement à la surface de la pièce et forme ainsi une couche stable. Les liaisons sont uniquement mécaniques (Proner, 1999), c'est-à-dire que la surface de base ne subit aucune fusion. L'épaisseur du revêtement est comprise entre 50 micromètres et quelques millimètres. Lorsque le matériau d'apport est métallique, ce procédé porte le nom de métallisation. Ce dernier procédé est très utilisé dans la construction navale ou l'industrie du bâtiment, notamment pour la protection cathodique des pièces en fer par le zinc.

Les différents procédés de projection thermique se répartissent en quatre classes :

- La projection thermique flamme

Il s'agit du procédé le plus ancien, à l'origine de la projection thermique. Il fait appel à une flamme oxyacétylénique comme source de chaleur. La température à l'intérieur de la flamme peut atteindre 3000 °C. Le matériau d'apport est véhiculé par l'énergie cinétique transmise par les gaz de combustion. Elle se décline essentiellement sous deux variantes : projection flamme-poudre, projection flamme-fil. Ce procédé peut être mis en œuvre dans tous les domaines : aéronautique, automobile, papeterie, aciérie, sidérurgie, construction d'infrastructures. Il permet de résoudre des problèmes d'abrasion, de corrosion, d'usure, d'isolation thermique ou électrique.

- La projection thermique par arc électrique entre deux fils

Le principe de la projection par arc électrique consiste à faire jaillir un arc électrique entre deux fils consommables, un jet d'air comprimé pulvérisant le métal fondu et le projetant sur le matériau support. La température de fusion peut atteindre 6000°C. L'épaisseur du dépôt est alors comprise entre 0,2 et 3 mm avec une porosité de 5 à 10%. Les matériaux d'apport doivent être conducteurs. Il s'agit du zinc, de l'aluminium, du cuivre et des aciers. Ce procédé est principalement utilisé dans les secteurs de l'automobile et de l'aéronautique (protection des structures métalliques extérieures en ambiance marine).

- La projection thermique par plasma

Le principe de ce procédé est l'utilisation d'un arc électrique dans un plasma gazeux. Le matériau d'apport sous forme de poudre est introduit dans un plasma gazeux porté entre 15000 et 20000 °C grâce à une décharge haute fréquence. La porosité des dépôts est inférieure à 10%. Le matériau d'apport est très variable : métaux, alliages, céramiques ou carbures. Il permet de résoudre des problèmes d'usure, de corrosion, de barrière thermique,

1.1 - Généralités sur les procédés de projection thermique

de frottement ou d'oxydation, notamment dans les secteurs de l'aéronautique et de l'automobile.

- La projection dynamique à froid (cold spray).

Les particules d'une taille comprise entre 10 et 40 µm sont chauffées dans un gaz, le plus souvent chimiquement neutre (azote ou hélium) à une température comprise entre 100°C et 800°C. Elles sont ensuite projetées sur le support par un jet supersonique, permettant d'obtenir une déformation suffisante à l'impact sur le substrat. Cette technique est utilisée pour traiter la corrosion, l'usure, ou la conductivité électrique dans des secteurs d'activité tels que le biomédical, l'aérospatiale, la chimie et l'électronique. Certains professionnels de la projection thermique ne considèrent pas ce nouveau procédé comme appartenant réellement à la famille des procédés de projection thermique. En effet, les particules métalliques sont chauffées à une température le plus souvent inférieure à la température de fusion. L'accrochage des particules se fait exclusivement par des liaisons mécaniques dues aux chocs des particules sur le support.

Le Tableau 1.1 récapitule les caractéristiques des procédés de projection thermique.

Tableau 1.1 : Caractéristiques des différents procédés de projection thermique (Proner, 1999)

Caractéristiques	Projection flamme-poudre	Projection flamme-fil	Arc électrique	Plasma
Source de chaleur	flamme oxyacétylénique	flamme oxyacétylénique	arc électrique	plasma
Température de flamme..... (°C)	3 000	3 000	6 000	12 000
Transport des particules	gaz flamme	air comprimé	air comprimé	gaz plasma (Ar/H)
Vitesse des particules..... (m/s)	40	150	250	200
Forme du produit d'apport	poudre	fil-cordon	fil	poudre
Taux horaire de dépôt..... (kg/h)	1 à 3	1 à 20	5 à 30	1 à 4
Rendement moyen (1)(%)	50	70	80	70
Force d'adhérence..... (MPa)	20 à 40	20 à 40	40	30 à 70
Taux de porosité..... (%)	10 à 20	10 à 20	8 à 15	1 à 10
Épaisseur déposée..... (mm)	0,1 à 1,5	0,1 à 1,5	0,2 à 3	0,05 à 1,5
Exemples de matériaux d'apport	- métaux - céramiques - carbures dans matrice métallique	- métaux - céramiques - carbures dans matrice métallique	- métaux	- métaux - céramiques - carbures

(1) Pourcentage de poudre projetée qui adhère au matériau.

Une étude de l'INRS recense le nombre d'entreprises et de salariés susceptibles d'utiliser un ou plusieurs procédés de projection thermique.

Tableau 1.2 : Secteurs d'activité dans lesquels la mise en œuvre d'un ou plusieurs procédés de projection thermique est possible en France (Savary, 2011)

Secteur d'activité	Nom	Nombre d'établissements	Nombre de salariés
	Traitement de surface	1623	24253

Travail des métaux	Forge, estampage, matriçage ; métallurgie des poudres	260	11360
	Découpage, emboutissage	1020	26778
	Décolletage	577	12020
	Mécanique industrielle	5078	72029
Fonderie	Fonderie de fonte	86	11119
	Fonderie d'acier	40	5168
	Fonderie de métaux légers	117	8469
	Fonderie d'autres métaux non-ferreux	152	3762
Fabrication d'appareils et d'objets métalliques	Fabrication de structures métalliques et de parties de structures	1755	39048
	Fabrication de portes et fenêtres en métal	1230	18734
	Fabrication d'autres réservoirs, citernes et conteneurs métalliques		
	Fabrication de générateurs de vapeur, à l'exception des chaudières pour le chauffage centrale	45	6416
	Fabrication de moules et de modèles	546	8452
	Fabrication d'articles ménagers métalliques	94	5444
	Fabrication d'autres articles métalliques	801	15150
	Fabrication d'équipements d'irradiation médicale, d'équipements électro-médicaux et électro-thérapeutiques	140	4339
	Fabrication d'appareils électroménagers		
	Fabrication de moteurs et de turbines, à l'exception des moteurs d'avions et de véhicules	148	13479
	Fabrication d'éléments hydrauliques et pneumatiques	410	8315
	Fabrication d'autres pompes et compresseurs	181	12811
	Fabrication d'autres articles de robinetterie	231	12594
	Fabrication d'engrenages et d'organes mécaniques de transmission	153	16835
	Fabrication d'autres machines à usage spécial	485	12750
	Fabrication de machines-outils pour le travail des métaux		
	Fabrication d'autres machines spécialisées	371	7620
	Construction de véhicules automobiles	190	127770
	Fabrication d'autres équipements automobiles	554	71480
	Construction de navires et de structures flottantes	116	9823
	Construction de locomotives et d'autre matériel ferroviaire roulant	52	11703
	Construction aéronautique et spatiale	213	92598
	Construction de véhicules militaires de combat	8	657
Fabrication de motocycles	37	1841	
Réparation - Maintenance	Réparation d'ouvrages en métaux	598	14133
	Réparation et maintenance navale	777	4882
	Réparation et maintenance d'aéronefs et d'engins spatiaux	149	5373
	Réparation et maintenance d'autres équipements de transport	32	1680
	Installation de structures métalliques, chaudronnées et de tuyauterie	3539	44281
	Travaux de menuiserie métallique et serrurerie	7736	53595

De manière générale, tout établissement qui travaille les métaux est susceptible de posséder un ou plusieurs postes de projection thermique. Les secteurs d'activité intéressés sont les secteurs concernant la fonderie de métaux (ferreux, non-ferreux et précieux), les secteurs de travail des métaux, les fabrications d'objets métalliques, de machines, les secteurs automobile, aéronautique, naval, ferroviaire et les secteurs de la réparation et de la maintenance.

1.2. Législation des fumées de métallisation

Nous venons de voir que l'activité de projection thermique à laquelle appartient la métallisation s'exerce dans de nombreux secteurs d'activité (métallurgie, nucléaire, agroalimentaire, électronique, automobile, aéronautique, etc.), que ce soit en production, en construction ou en maintenance, en atelier ou sur chantier. Du fait des hautes températures atteintes, ces procédés émettent des fumées qui peuvent être inhalées par les opérateurs et les personnes qui travaillent à proximité. Ces fumées, composées d'un mélange de gaz et de poussières, peuvent, selon leur composition, leur concentration et la durée d'exposition, présenter des effets néfastes pour la santé et être à l'origine de pathologies professionnelles. Dans les ambiances de travail, les concentrations de fumées peuvent ainsi être très élevées et atteindre plusieurs dizaines de mg.m^{-3} .

Aucune législation spécifique aux nano-objets n'existe encore sur les valeurs limites d'exposition (VLE). L'ACGIH (American Conference of Governmental Industrial Hygienists., 2007) considère que les données sont actuellement insuffisantes pour déterminer des valeurs limites spécifiques pour les nanoparticules. En revanche, des VLE existent pour les poussières. Les VLE françaises sur une période de travail de 8h sont de 10 mg.m^{-3} pour les poussières inhalées sans effet reconnu et de 5 mg.m^{-3} pour les poussières alvéolaires (Malard, 2010).

1.3. Réglementation

Toutes les techniques de projection thermique sont basées sur la pulvérisation de métal fondu à l'aide d'un gaz. Les installations sont soumises à autorisation, suivant le code 2567 de la nomenclature de janvier 1998 des installations classées pour la protection de l'environnement.

Selon le Code du travail (articles R. 4212-1 à 7, R. 4222-1 à 22, R. 4722-1 et 2 et R. 4724-2 et 3 relatifs à l'aération et à l'assainissement), l'aération et l'assainissement de l'atmosphère des lieux de travail dans lesquels s'exercent des travaux de soudage, de coupage, de projection thermique, etc. sont des « locaux à pollution spécifique ». L'employeur a donc l'obligation de capter les poussières, gaz et vapeurs « au fur et à mesure de leur production, au plus près de leur source d'émission et aussi efficacement que possible, notamment en

tenant compte de la nature, des caractéristiques et du débit des polluants de l'air ainsi que des mouvements de l'air » (art. R. 4422-12 du Code du travail).

1.4. Toxicologie des fumées de métallisation

Les mesures de terrain sur les sites utilisant le procédé de métallisation (projection thermique par arc électrique) mettent en évidence la présence de particules de taille nanométrique dites ultrafines ou PUF (Particules UltraFines), c'est-à-dire de dimensions inférieures à 100 nm, dont la toxicité est parfois élevée (zinc, aluminium, étain, alliages nickel-chrome). La Figure 1.2 témoigne que, bien que négligeables en termes de volume ou de masse face aux particules fines ou grossières, elles représentent près de 95% de la concentration numérique des fumées (Bemer et al., 2010).

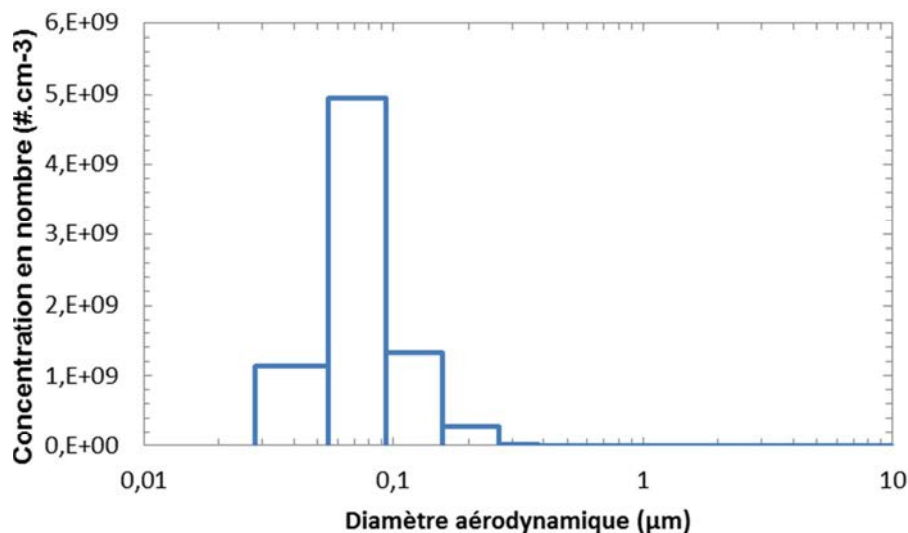


Figure 1.2 : Distribution en nombre des fumées de métallisation dans une entreprise. Mesures ELPI

Diverses approches convergentes montrent une réactivité biologique de l'homme particulièrement élevée pour les nanoparticules liée à leur surface spécifique importante (Bau, 2008). Les nanoparticules peuvent donc représenter un danger pour l'homme (Hervé-Bazin, 2007; Oberdörster et al., 2007; Ostiguy et al., 2008). L'évaluation des risques pour la santé de l'homme et de son entourage est donc primordiale.

Certaines maladies pulmonaires sont liées aux fines poussières depuis longtemps : pneumoconiose (silicose, amiantose), cancer pulmonaire, fièvre du soudeur, asthme professionnel, béryllose, ... Au niveau pulmonaire, il apparaît que la toxicité est liée au stress oxydatif causé par la présence de métaux de transition, d'une fraction organique ou par une très haute surface spécifique des poussières déposées (Ostiguy et al., 2008).

Des études sur la toxicité des particules ultrafines sur des souris ont démontré une inflammation pulmonaire dans un premier temps puis une migration des particules ultrafines

inhalées vers les tissus extra-pulmonaires et la circulation sanguine (Elder et al., 2000, 2002, 2004; Nemmar et al., 2002; Zhou et al., 2003).

De multiples études épidémiologiques relient directement et de manière significative les particules ultrafines à des effets respiratoires et cardio-vasculaires (Seaton et al., 1995; Peters et al., 1997, 2001; MacNee & Donaldson, 2000; Samet et al., 2000; Utell & Frampton, 2000; Wichmann et al., 2000; Penttinen et al., 2001; Kreyling et al., 2004; Pope et al., 2004). Ces études sont principalement axées sur l'émission de particules ultrafines par des véhicules. D'autres études cliniques en laboratoire montrent que les particules ultrafines se déposent tout le long de l'arbre pulmonaire et sont responsables de divers problèmes cardio-vasculaires (Brown et al., 2000; Daigle et al., 2003; Oberdörster et al., 2005).

Les études médicales réalisées par l'INRS (Malard, 2010) affirment que sur le plan toxicologique, une exposition chronique et massive des voies respiratoires à des fumées ou à de fines poussières d'aluminium contenues dans les fumées de métallisation, est susceptible d'entraîner une fibrose interstitielle pulmonaire. Elle est caractérisée cliniquement par l'apparition d'une toux sèche à l'effort qui est susceptible de s'aggraver et qui est liée à une altération de l'état général.

Quant au zinc, il est susceptible d'entraîner la « fièvre des métaux ». Cette fièvre se caractérise par l'apparition d'une hyperthermie accompagnée d'une asthénie, de frissons, de douleurs musculaires diffuses. Wang (Wang et al., 2006) a observé chez des souris contaminées par des nanoparticules de zinc une dégénérescence graisseuse des cellules cardio-vasculaires. Une étude récente de Gojova (Gojova et al., 2007) sur des cellules humaines montre que les nanoparticules de zinc sont à forte dose ($10 \mu\text{g.mL}^{-1}$) cytotoxiques.

Au niveau du dépôt pulmonaire, les particules nanométriques peuvent atteindre les ramifications les plus profondes de l'arbre respiratoire. Elles pourraient alors atteindre les alvéoles et passer dans le système sanguin. Ce n'est pas entièrement le cas grâce au phénomène de diffusion brownienne prépondérant pour ces tailles de particules. Les travaux de Witschger (Witschger & Fabriès, 2005) montrent qu'elles sont pour la plupart arrêtées aux différents niveaux du système pulmonaire : région extra-thoracique, région trachéo-bronchique et région alvéolaire (Figure 1.3). Rappelons toutefois que les études de toxicologie sur les nanoparticules sont récentes et ne peuvent être pour l'instant généralisées.

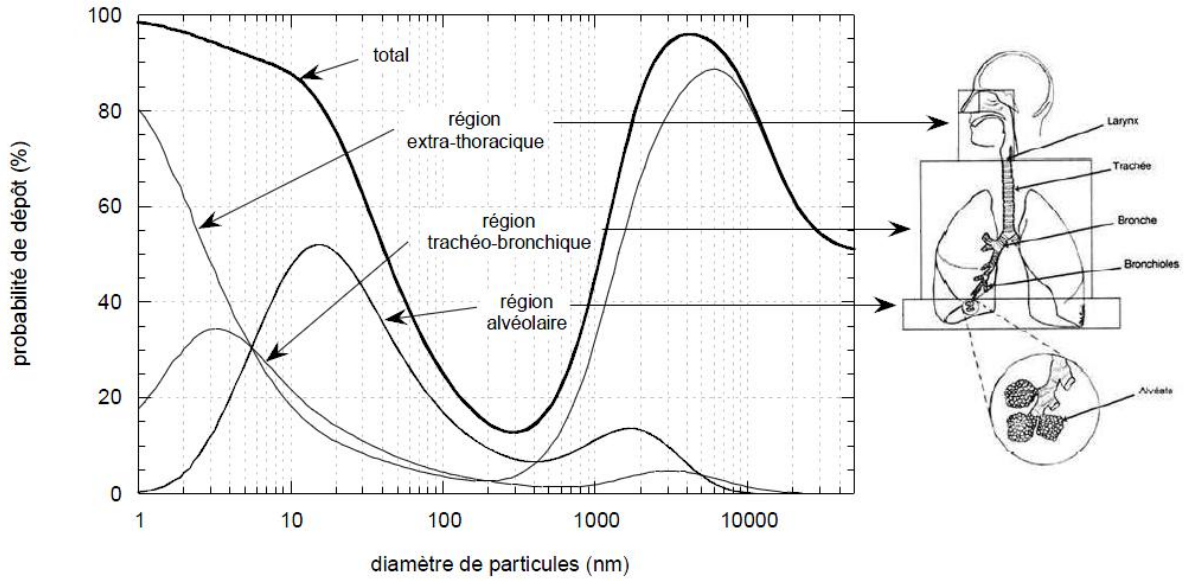


Figure 1.3 : Probabilité de dépôt au sein de l'arbre pulmonaire (Witschger & Fabriès, 2005)

1.5. Prévention

Plusieurs approches existent pour maîtriser la présence des particules ultrafines : élimination, substitution, techniques d'ingénierie, moyens administratifs et équipement de protection individuel (Ostiguy et al., 2006) (Figure 1.4).

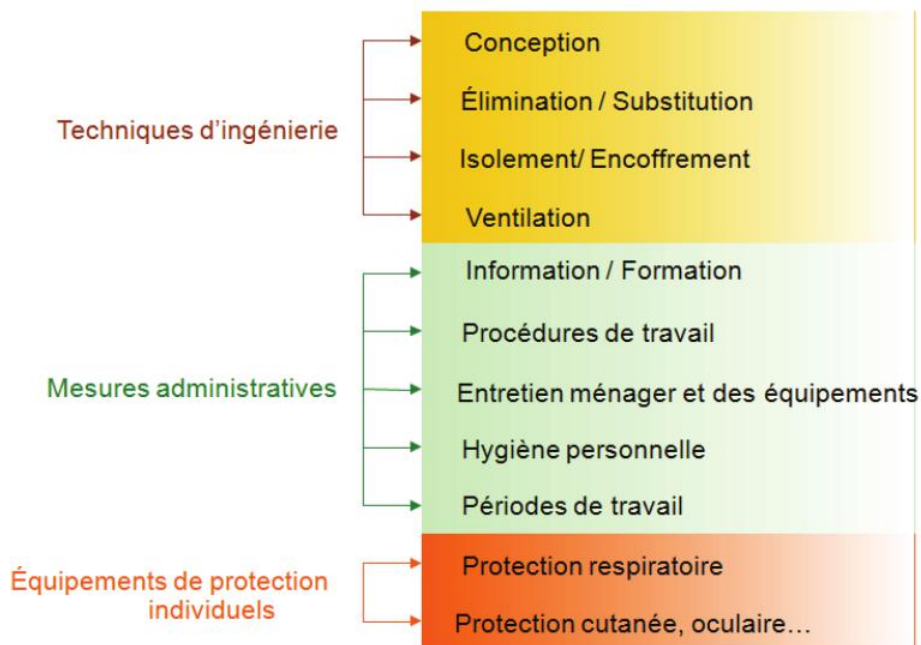


Figure 1.4 : Hiérarchie de maîtrise de risques appliquée aux nanoparticules (Ostiguy et al., 2006)

Compte tenu des nombreuses incertitudes relatives à la toxicité et à l'aspect sécuritaire des nanoparticules (incendies, explosion), l'IRSST (Institut de recherche Robert-Sauvé en santé et en sécurité du travail) recommande d'adopter un maximum de précautions. L'extraction de l'air empoussiéré par ventilation est l'une de ces possibilités. Elle permet de protéger collectivement le personnel en diminuant la concentration particulaire au sein de la cabine où se déroule l'opération de métallisation. Le débit moyen de ventilation est généralement de l'ordre de $30\,000\text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$.

Il va de soi qu'extraire l'air vicié n'est pas suffisant. En effet, il est impensable de réinjecter cet air dans la cabine ou rejeter directement dans l'atmosphère sans traitement préalable. L'opération de filtration est assurée par un dépoussiéreur. Diverses technologies de filtration existent. Citons à titre non exhaustif les filtres à manches, à poches, les cartouches plissées, les filtres à fibres. De même, plusieurs techniques de régénération de ces filtres sont disponibles : contre-courant, air pulsé, ...

Les techniques de dépoussiérage actuellement les plus efficaces et les plus utilisées pour séparer des particules d'un fluide porteur sont les médias fibreux (souvent sous forme de cartouches) de très haute efficacité. Ils sont constitués de fibres de taille voisine du micromètre. Le principal problème posé par la filtration de telles particules réside dans le colmatage progressif du filtre. Il est donc nécessaire de régénérer le filtre. Cette opération s'appelle le décolmatage.

Le décolmatage de ces media fibreux est souvent à l'origine de problèmes affectant leurs performances. Ainsi l'usure mécanique de la structure du filtre (perforations) peut être à l'origine de fuites pouvant entraîner une forte dégradation de l'efficacité (Mouret et al., 2009). Ces perforations lorsqu'elles restent peu importantes, demeurent la plupart du temps ignorées car non détectées (à moins d'un examen visuel minutieux) mais leur incidence sur l'efficacité peut être très importante. Ces micro-perforations peuvent avoir d'autres origines que l'usure mécanique due au décolmatage (défaut de fabrication, dégradation par impact de micro-objets transportés par la ventilation, particules chaudes, etc.) mais nuisent dans tous les cas à l'objectif initial de protection de l'environnement et/ou des personnes. De plus, le décolmatage par à-coup de pression (pulse-jet) peut induire une éventuelle remise en suspension, en aval du dépoussiéreur, des nanoparticules préalablement fixées par le media (Simon, 2005). Les nombreuses particules submicroniques et nanométriques issues de ces bouffées sont d'un apport négligeable d'un point de vue massique (et donc négligeable au regard de la norme de rejet) mais pas d'un point de vue numérique. Enfin, si le décolmatage permet d'abaisser la perte de charge des médias fibreux, il ne permet pas un retour à sa valeur initiale car une partie des particules collectées est à l'origine d'un colmatage partiellement irréversible (Lo, Chen, et al., 2010). Il est donc primordial de mener des études sur pilote industriel pour déterminer d'une part l'efficacité de ces cartouches filtrantes vis-à-vis des particules ultrafines contenues dans les fumées de métallisation et, d'autre part, comprendre et tenter d'apporter une solution au problème de colmatage irréversible constaté sur le terrain.

1.6. Conclusion

Le procédé de métallisation est un procédé thermique très utilisé dans le traitement de surface des pièces contre la corrosion. Les mesures sur le terrain montrent que les fumées engendrées par ce procédé sont extrêmement émissives en particules de taille nanométrique (Bemer et al., 2010).

Les études existantes dans le domaine des nanoparticules indiquent que le paramètre de surface semble être le plus adapté pour corrélérer la dose à son effet sur la santé de l'homme et de son entourage. Elles montrent également que l'ensemble des particules nanométriques inhalées se déposent à tous les niveaux dans les poumons humains. Elles peuvent alors entraîner des complications toxicologiques. Il est donc impératif de protéger aussi bien les travailleurs que l'environnement. Cet environnement englobe leur lieu de travail (cabine) et l'atmosphère extérieure où sont rejetées les fumées.

Pour ce qui est de la protection des travailleurs, les moyens de protection disponibles sont soit individuels (cagoule à adduction d'air ou autres masques respiratoires) soit collectifs (extraction de l'air vicié par aspiration). L'air extrait pour la protection collective des travailleurs doit être filtré pour protéger l'environnement extérieur. Cette opération est assurée par un dépoussiéreur, généralement à cartouches filtrantes. Des retours d'expériences témoignent des problèmes de ces installations à maintenir la filtration dus à la fraction nanométrique des fumées. C'est pourquoi, ce travail de recherche a pour objectif d'étudier la filtration des fumées de métallisation sur les éléments filtrants contenus dans les dépoussiéreurs afin d'en améliorer les performances. Il s'inscrit dans la protection de l'environnement et permet de contribuer à créer une ambiance de travail la plus saine possible, conformément à la législation.

Chapitre 2

Présentation du banc « Métallisation »

Ce chapitre est dédié à la description du banc d'essai « Métallisation » qui permet de produire les fumées issues du procédé de métallisation. Nous décrirons dans un premier temps le principe général de fonctionnement d'un dépoussiéreur, qu'il soit plissé ou à manches.

Dans un second temps, nous exposerons le principe général de ce banc dans ses étapes de génération, transport et filtration avant de présenter succinctement les différentes lignes mises en place en vue de caractériser les fumées de métallisation en termes de concentration, de granulométrie, de structure et d'étudier les cycles de colmatage et décolmatage. Une partie consacrée à l'instrumentation nous permettra de caractériser la morphologie et les propriétés des fumées de métallisation.

Enfin, nous présenterons les éléments principaux qui constituent le banc « Métallisation », à savoir les parties de génération et de filtration (dépoussiéreurs).

2.1. Présentation et fonctionnement du dépoussiéreur

La technologie de dépoussiérage permet de collecter les poussières en séparant mécaniquement les phases gazeuses telles que l'air des solides tels que les poussières. Son utilisation est devenue très commune dans de nombreux domaines (agro-alimentaire, incinération, métallurgie, sidérurgie, nucléaire, travail du bois ...) et a fait l'objet d'une thèse spécifique (Simon, 2005) ; raison pour laquelle nous ne développerons que très peu cet aspect. Les filtres peuvent être de différentes nature : filtre à manches, filtre à poches, filtres à fibres ou encore filtres rigides. Les filtres plissés font partie des filtres à fibres et sont désormais privilégiés car ils permettent à même encombrement que les filtres plans d'augmenter la surface de filtration. Ils ne sont cependant pas adaptés aux aérosols fortement concentrés composés de particules grossières.

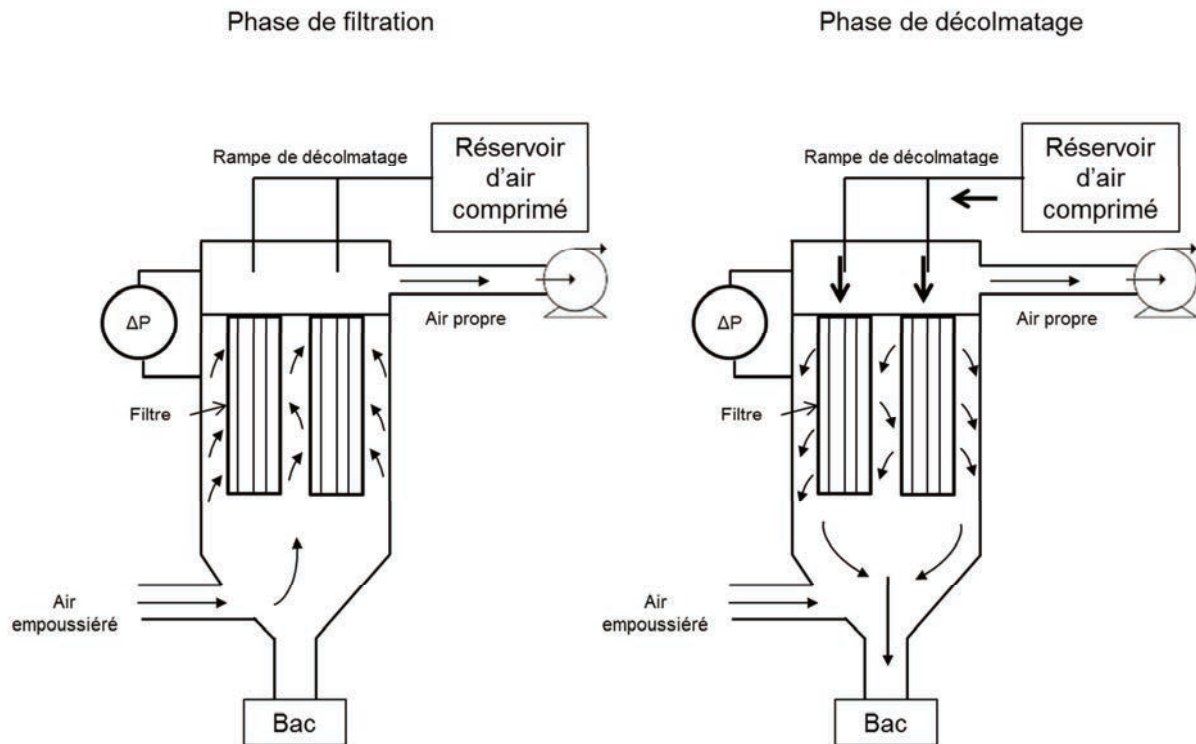


Figure 2.1 : Principe de fonctionnement d'un dépoussiéreur à filtre plissé

Le principe de fonctionnement d'un dépoussiéreur à filtres plissés est présenté Figure 2.1. Le dépoussiéreur se compose d'un caisson principal comprenant les éléments filtrants, d'une partie supérieure comprenant le système de décolmatage, très généralement un pulse d'air à haute pression et enfin une trémie permettant de récupérer les poussières filtrées. L'air empoussiéré entre par le bas du dépoussiéreur pour en ressortir par le haut (mode « up-flow »).

L'air traverse les manches ou les filtres plissés de l'extérieur vers l'intérieur. La vitesse de filtration est classiquement comprise entre 1 et 6 cm.s^{-1} . Pendant cette phase de filtration, les particules s'accumulent sur la surface extérieure du média filtrant et forment un dépôt appelé gâteau de filtration.

Le gâteau de filtration engendre une perte de charge supplémentaire au fonctionnement du dépoussiéreur ce qui conduit à un surcoût énergétique. Les éléments filtrants doivent donc être régulièrement régénérés en retirant le gâteau de particules. Cette opération s'appelle le décolmatage. Elle consiste à injecter de l'air comprimé à contre-courant dans le filtre pour détacher le gâteau qui tombe dans la trémie située sous le filtre. L'opération de décolmatage conditionne en partie les performances des dépoussiéreurs.

La technique de dépoussiérage peut s'adapter aussi bien sur une grande gamme de taille de particules qu'à une concentration très variable allant d'une dizaine à plusieurs centaines de g.m^{-3} . Le type de média le plus répandu pour les filtres est le média fibreux (papier, fibre de verre, ...). Ils sont en effet simples à mettre en œuvre tout en présentant un rapport coût/efficacité très intéressant. Le bon fonctionnement d'un dépoussiéreur dépend de plusieurs facteurs dont le média fibreux utilisé, les conditions opératoires de fonctionnement (vitesse de filtration) et sa capacité à assurer un décolmatage pour régénérer efficacement le

média filtrant. Le décolmatage d'un média peut être amélioré par un traitement de surface. Nous aborderons plus en profondeur le problème du colmatage et décolmatage dans le chapitre 5 de ce manuscrit.

2.2. Description du banc

Le banc Métallisation est un banc d'essai de type pilote. Il a été conçu dans l'optique de reproduire à échelle moindre que l'échelle industrielle les conditions de colmatage et de décolmatage rencontrées dans le domaine du traitement des fumées de métallisation avec pour objectif :

- La caractérisation des fumées de métallisation
- L'étude du colmatage
 - o Accroissement de la perte de charge du média filtrant
 - o Caractérisation du gâteau de colmatage
- L'étude du décolmatage
 - o Paramètres influents
 - o Traitements possibles pour améliorer le décolmatage

Ce banc (Figure 2.2) se compose de trois grandes parties :

- Une enceinte de métallisation dans laquelle sont générées les fumées.
- Une canalisation principale de 10 m (diamètre 200 mm) reliant l'enceinte de métallisation aux organes de filtration et sur laquelle plusieurs lignes d'études sont implantées.
- Un système de dépoussiérage industriel (ensemble cyclone-dépoussiéreur industriel) chargé de filtrer l'air avant son rejet à l'extérieur. Le cyclone et le dépoussiéreur sont espacés par une canalisation d'environ 5 m (diamètre 200 mm).

Ces trois parties sont articulées comme suit. L'aérosol est généré au sein de l'enceinte de métallisation (A) grâce à un pistolet de type arc électrique alimenté par deux fils constitués d'un alliage zinc/aluminium. Les scories de la génération sont récupérées dans un bac situé dans l'enceinte. Les fumées contenant la fraction de particules la plus fine et donc trop légère pour tomber dans le bac sont extraites dans la canalisation principale (B) au moyen d'un ventilateur situé à l'extrémité de la canalisation principale. Les fumées sont alors dirigées vers un ensemble série cyclone-dépoussiéreur (C) situé à l'extérieur du bâtiment sous un abri pour y être filtrées.

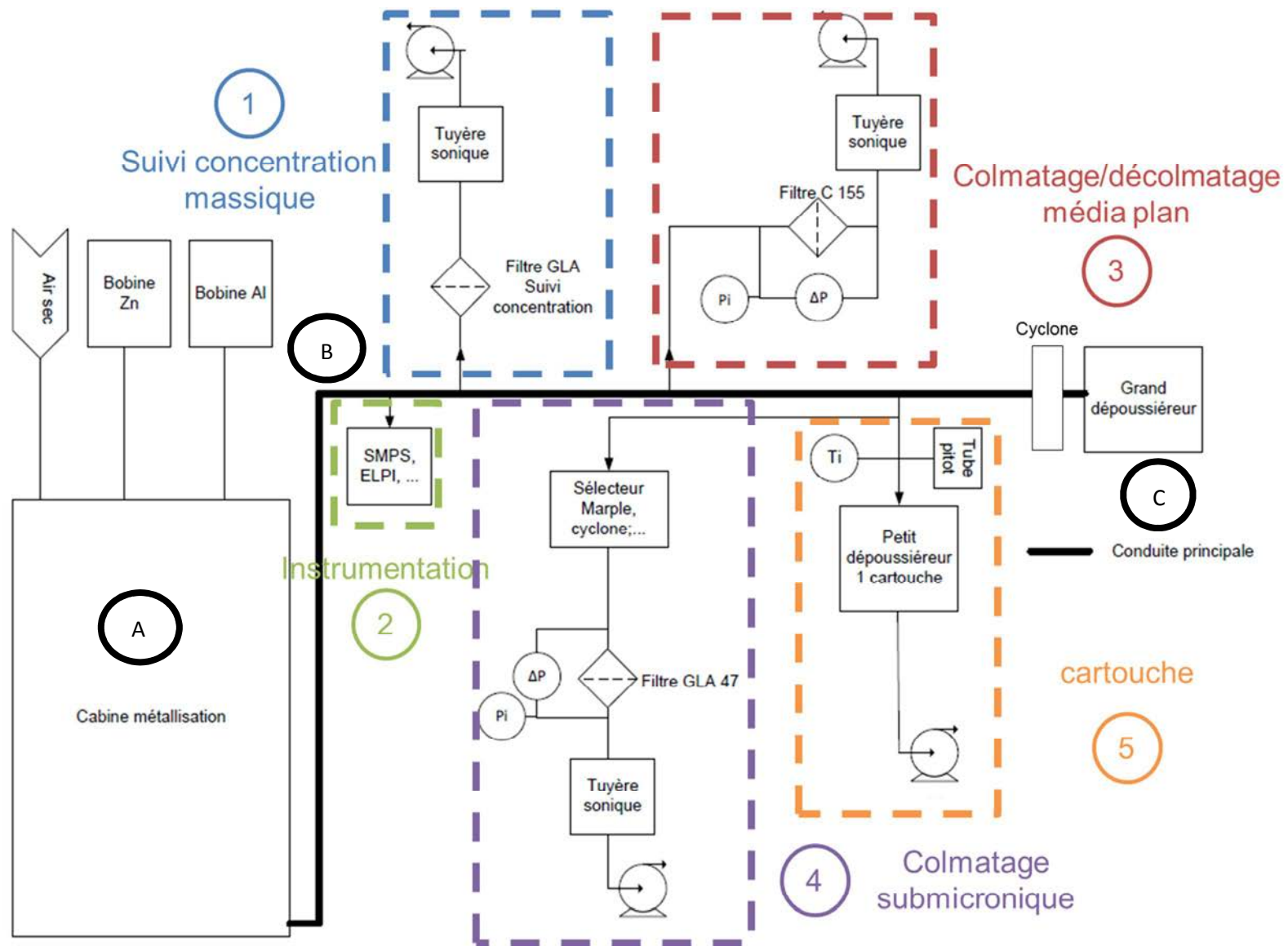


Figure 2.2: Schéma de principe du banc métallisation

La canalisation principale présente plusieurs piquages. Ils sont identifiés sur le schéma de principe par les chiffres 1 à 5. Ces différentes lignes sont dédiées à :

1. *Suivi concentration massique*
Un prélèvement sur filtre membranaire en PVC (GLA-5000, Pall) permet de connaître la concentration massique lors de chaque expérience.
2. *Instrumentation*
Cette partie comprend les appareils utilisés pour mesurer la granulométrie de l'aérosol (ELPI (Electrical Low Pressure Impactor), DLPI (Dekati Low Pressure Impactor), SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) ou encore d'autres grandeurs qui serviront à la détermination de paramètres tels que la masse volumique effective, le facteur de forme dynamique ou la dimension fractale décrits ultérieurement. La distance entre l'émission des fumées et la prise d'échantillon est d'environ 4,5 m.
3. *Colmatage filtre plan*
Cette ligne est dédiée à l'étude des cycles de colmatage/décolmatage sur filtre plan. Cette ligne permet de colmater des filtres plans de diamètre 155 mm qui seront décolmatés par la suite. Le banc « décolmatage » sera décrit ultérieurement dans le chapitre 5.
4. *Colmatage submicronique*
Cette branche est mise en œuvre pour caractériser le dépôt submicronique des fumées de métallisation sur un filtre plan membranaire de diamètre 47 mm en termes d'épaisseur de gâteau et de porosité.
5. *Pilote*
Cette ligne contient le dépoussiéreur pilote, composé d'une seule cartouche plissée filtrante. La distance entre la canalisation principale et le dépoussiéreur pilote est d'environ 3 m. Cette ligne comporte en plus l'instrumentation nécessaire pour suivre les cycles de colmatage/décolmatage d'une cartouche plissée, à savoir des capteurs de mesure de pressions différentielles, de température et de débit. Cette ligne sera décrite en détail dans le chapitre 4.

Nous précisons que l'air introduit dans l'enceinte de métallisation provient du réseau et est préalablement filtré par un bloc de filtration dédié à cet effet. Des photos du banc sont présentées Figure 2.3 et Figure 2.4.

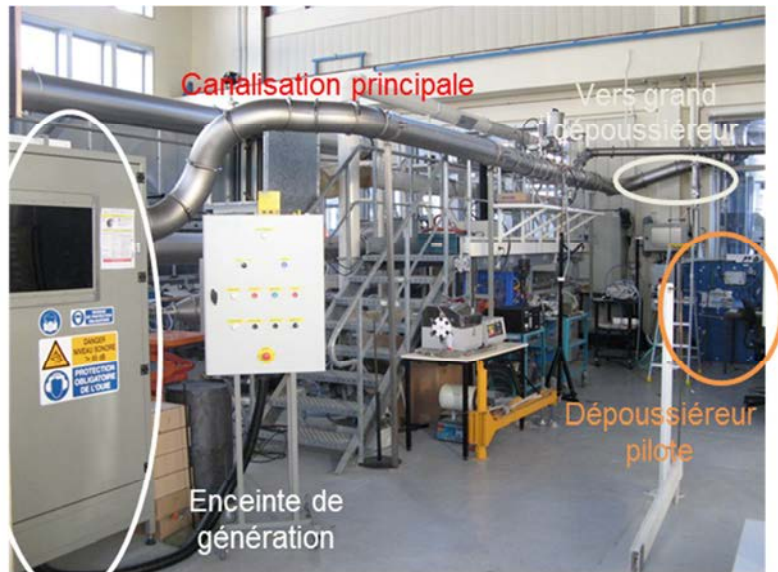


Figure 2.3 : Vue du banc de génération des fumées de métallisation (INRS)

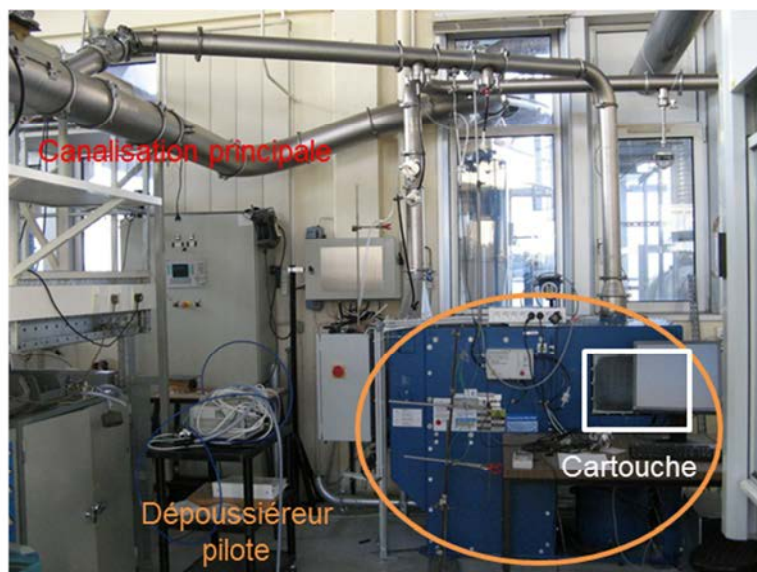


Figure 2.4 : Vue du dépoussiéreur pilote

2.3. Description des éléments principaux

2.3.1. Enceinte de métallisation

Les fumées de métallisation sont composées de particules générées dans l'enceinte de métallisation et qui n'ont pas adhéré à la surface de la pièce à traiter. Les dimensions de l'enceinte de génération sont 1,9 m de haut, 0,95 m de large et 1,5 m de long. Le système de génération est constitué d'un pistolet à arc électrique appartenant à la famille des pistolets à arcs électriques entre deux fils (Arc-spray), de type Margarido M25, d'un cylindre rotatif à

2.3 - Description des éléments principaux

métalliser et d'un bac de récupération. Les dimensions du cylindre de métallisation sont 50 cm de hauteur et de 30 cm de diamètre.

Les deux fils constituant le matériau d'apport pour le traitement de la pièce sont tout d'abord amenés au niveau de la tête du pistolet pour y être fondus à haute intensité sous l'effet d'un arc électrique de 120 A (Figure 2.5). Le métal est alors fondu dans l'arc et projeté par de l'air sur la surface du cylindre rotatif (Figure 2.7) sous une pression de 7 bars. Ce procédé diffère du procédé thermique à flamme du fait qu'il n'emploie aucune source de chaleur extérieure pour la combustion du fil d'apport.

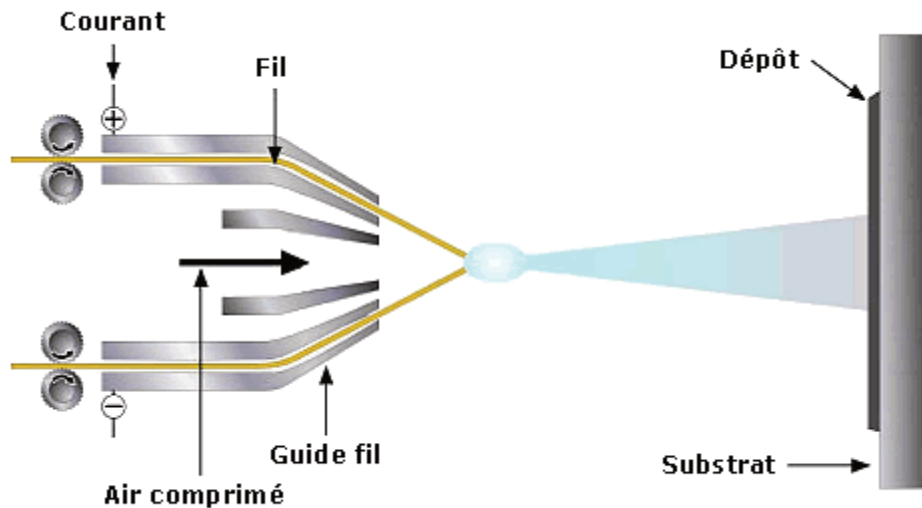


Figure 2.5 : Schéma de principe d'un pistolet à arc électrique.

Les particules les plus lourdes ou qui n'ont pas adhéré tombent dans le bac de récupération par sédimentation. Les plus fines (inférieures à quelques micromètres) sont aspirées au sommet de l'enceinte (Figure 2.6).

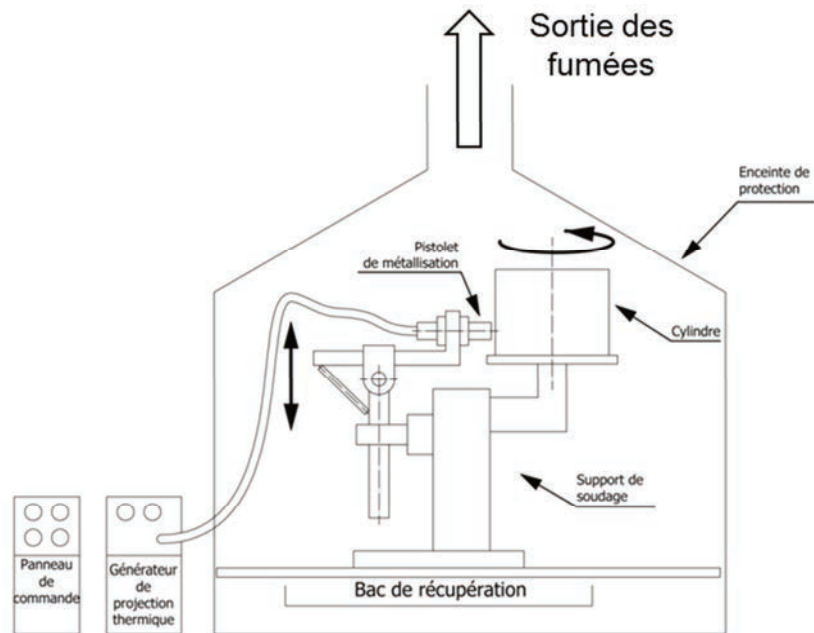


Figure 2.6 : Schéma de principe de l'enceinte de métallisation



Figure 2.7 : Photo de l'intérieur de l'enceinte de métallisation



Figure 2.8 : Photo du moteur d'alimentation du pistolet

Le moteur électrique situé à l'extérieur de l'enceinte (Figure 2.8) permet d'alimenter en continu le pistolet en matériau d'apport (constitué par les fils d'aluminium et de zinc). Les fils d'alimentation sont en permanence sous tension mécanique afin de garder la même vitesse de défilement afin de garantir une génération stable dans l'enceinte.

2.3 - Description des éléments principaux

Les conditions de génération sont maintenues constantes dans toutes les expériences. Elles sont synthétisées sur le tableau ci-après.

Tableau 2.1 : Caractéristiques des conditions de génération des fumées de métallisation

Description			Unité
Répartition massique des bobines	Zn/Al	85/15	
Arc électrique	Intensité	120	A
référence	Zinacor Z851-2.00-SD 300 Lot 191 684		
	Tension	21	V
Pistolet	Vitesse fil	5,87	cm.s ⁻¹
	Débit massique	2,07	g.s ⁻¹
	P _{alimentation air}	7	bar

2.3.2. Ensemble cyclone-dépoussiéreur industriel

L'ensemble cyclone-dépoussiéreur constitue les organes terminaux de filtration des fumées de métallisation avant rejet de l'air épuré dans l'atmosphère. Cet ensemble non instrumenté traite un débit moyen de 2000 m³.h⁻¹. Il est uniquement utilisé en tant qu'organe d'épuration pour éviter les rejets particuliers dans l'atmosphère.

Le cyclone (Figure 2.9), Torit HR 60, permet de préfiltrer l'aérosol en amont du dépoussiéreur en éliminant les particules grossières par force centrifuge. Ainsi, seule la partie fine atteint le dépoussiéreur. Son diamètre aérodynamique de coupure est de 1 µm.

Le dépoussiéreur terminal, Torit DFO 3-12, présenté sur la Figure 2.10, est équipé de 6 cartouches plissées nommées média A qui assurent une surface filtrante de 6 x 17,7 m².



Figure 2.9 : Photo du cyclone en amont du dépoussiéreur DFO 3-12.



Figure 2.10 : Photo du dépoussiéreur DFO 3-12

Un automate déclenche le cycle de décolmatage du dépoussiéreur à chaque arrêt de filtration soit à la fin de chaque expérience de métallisation. Il s'agit donc d'un décolmatage off-line, c'est-à-dire avec filtration arrêtée. Le décolmatage est prédéfini selon les recommandations du constructeur et reste constant tout au long de notre étude. Le dépoussiéreur décolmatage étage par étage. Ainsi, le premier étage situé le plus en haut est décolmaté sous une pression relative d'environ 3,5 bars, puis le second et enfin le troisième. Un cycle de décolmatage comprend trois fois cette opération. Chaque décolmatage est donc établi pour chaque cartouche par trois séries d'à-coups d'air comprimé. La durée d'impulsion par à-coup est de 100 ms.

L'ensemble des caractéristiques techniques du dépoussiéreur industriel est donnée en Annexe 1.

2.3.3. Dépoussiéreur pilote

Le second dépoussiéreur dit pilote est situé sur la ligne 5 de prélèvement (diamètre 100 mm) de la conduite principale (diamètre 200 mm). Le modèle utilisé est le même que le grand dépoussiéreur, à savoir le DownFlo® 1-1. Des vues globale et rapprochée sont données Figure 2.11 et Figure 2.12. Le dépoussiéreur pilote est décrit plus en détail dans le chapitre 5.

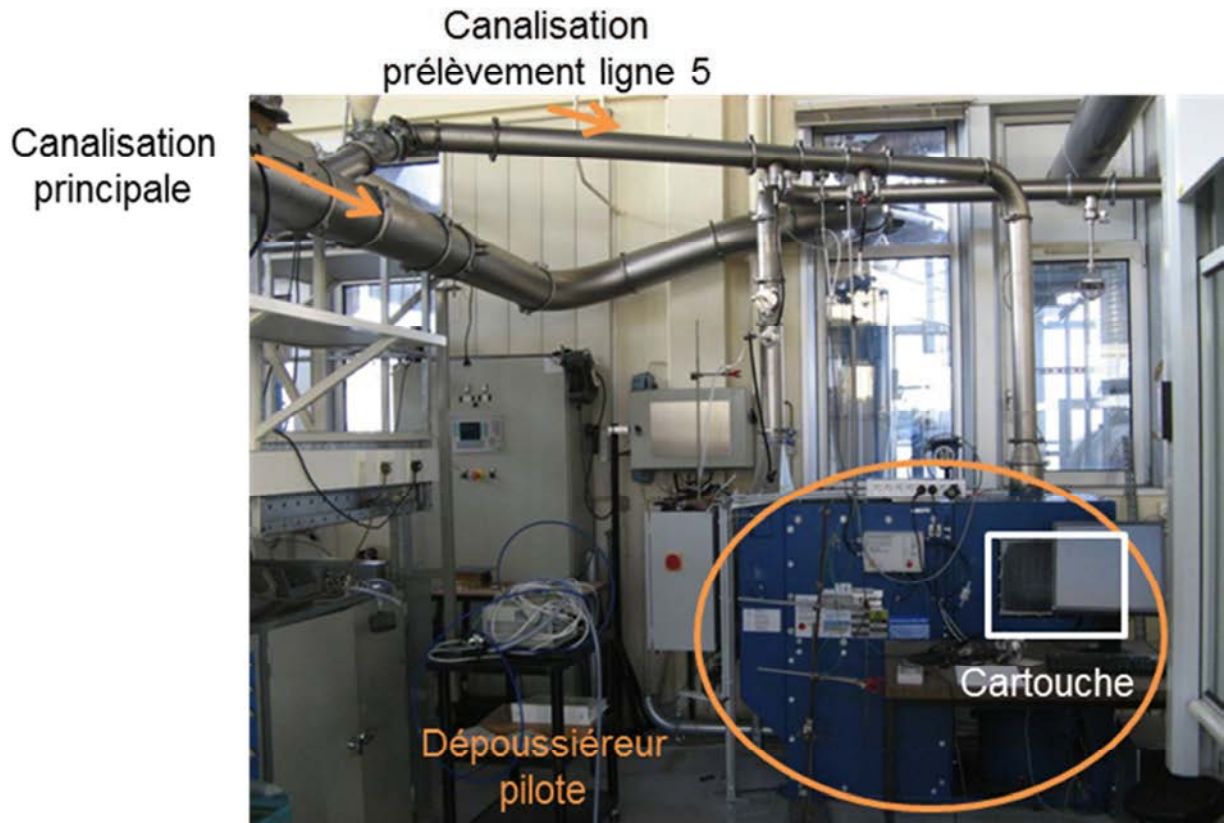


Figure 2.11 : Vue générale du dépoussiéreur pilote.

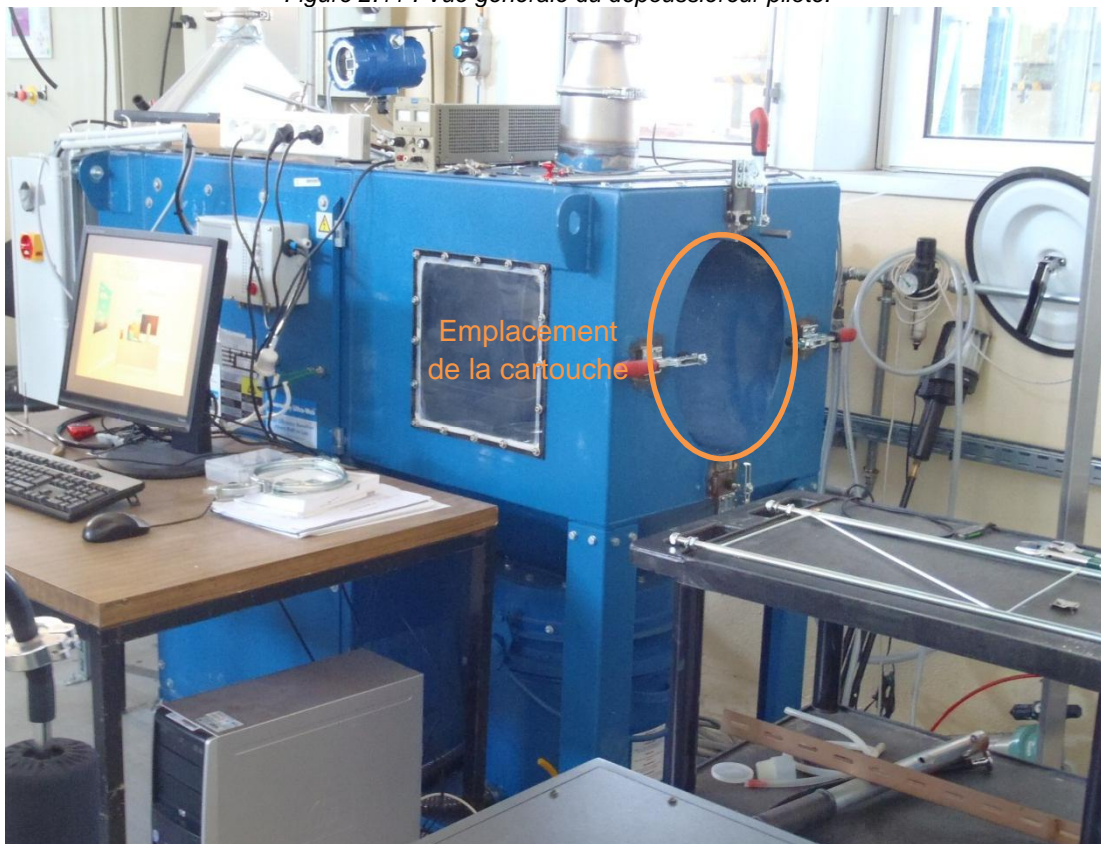


Figure 2.12 : Photo du dépoussiéreur pilote ouvert.

Deux types de modèles de cartouches ont été mis en œuvre. Les cartouches proviennent du même fournisseur que les dépoussiéreurs. Elles sont préconisées pour la filtration des effluents gazeux issus du procédé de métallisation. Elles bénéficient toutes les deux d'un traitement de surface constitué par une couche de nanofibres. Ce traitement est utilisé, selon le fournisseur, pour améliorer leur efficacité de filtration vis-à-vis des particules submicroniques et le décolmatage.

Les caractéristiques des cartouches données par le fournisseur sont listées dans le Tableau 2.2.

Tableau 2.2 : Propriétés à l'état neuf des médias filtrants testés

Média	Unité	Cartouche UltraWeb®	Cartouche FiltraWeb®
Désignation		A	B
Type de média		Plissé	Plissé
Composition		Cellulose	Synthétique/verre
Dimensions		Hauteur : 67 cm section ovale : 37 cm, 28 cm	
Traitement de surface		couche de nanofibres	couche de nanofibres
Efficacité à 0,5 µm	%	99,99	99,99
Grammage G	g.m ⁻²	114	114
Epaisseur Z	mm	0,28	0,56
Surface filtrante par cartouche	m ²	17,7	8,5
Hauteur de pli	mm	38	38
Largeur du pli	mm	2,84	6,03
Rapport de plissage β	-	13,4	6,3

La description technique complète de ces médias est disponible en Annexe 2.

Le ratio β est défini comme le rapport de la hauteur de pli sur le pas de plissage. Il permet de caractériser le plissage des médias. Un rapport de pli élevé signifie une surface de filtration plus importante à nombre de plis et pas de plissage égaux.

Nous notons que la hauteur de pli des cartouches de 38 mm est différente des 50 mm utilisés habituellement sur les cartouches standards. Cette diminution de hauteur de plis a pour effet d'augmenter la rigidité du média et ainsi diminuer la déformation de la cartouche. L'incrustation de la poussière doit être, selon le fournisseur, réduite et donc simplifier le décolmatage.

Les Figure 2.13 et Figure 2.14 présentent des vues macroscopiques des cartouches testées. Les deux cartouches utilisent la même technologie nanofibre. Seuls les clichés du média A pris au microscope électronique à balayage sont présentés ici (Figure 2.15 et Figure 2.16).



Figure 2.13 : Photo du média A



Figure 2.14 : Photo du média B

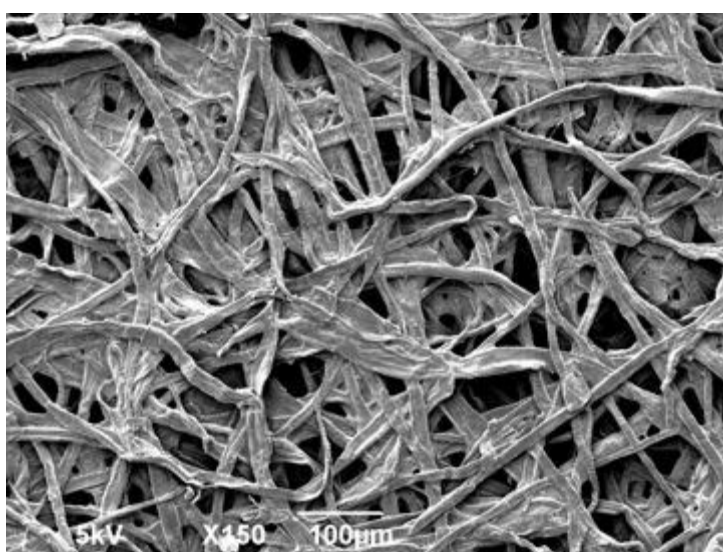


Figure 2.15 : Vue aval au microscope à balayage du média A

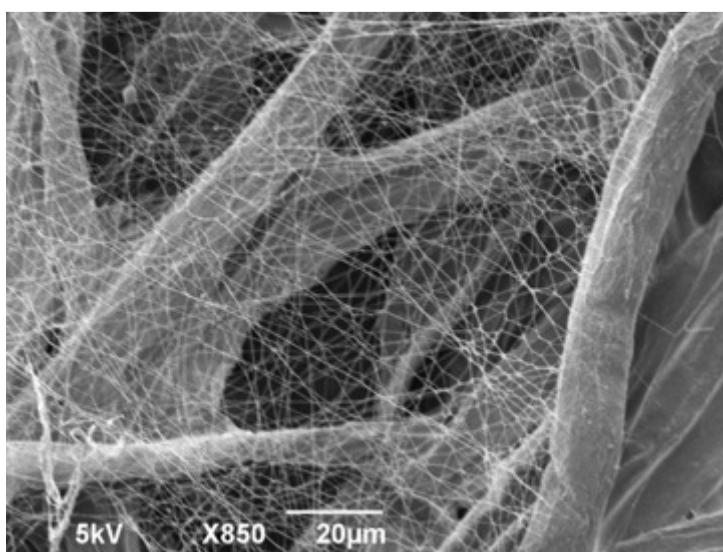


Figure 2.16 : Vue amont au microscope à balayage du média A

Le dépoussiéreur pilote est équipé d'un ventilateur en aval afin d'extraire une partie de l'aérosol de la canalisation principale. Le débit du dépoussiéreur est de l'ordre de $300 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. Ce débit est mesuré soit au centre de la conduite secondaire par un tube de Pitot, soit par un débitmètre à turbine.

Les cycles de colmatage/décolmatage sont contrôlés et ajustables par un automate. Les variables ajustables sont :

- La durée d'impulsion de l'à-coup de pression.
Elle correspond au temps d'ouverture de l'électrovanne donnant sur le réseau d'air comprimé. Cette valeur est généralement fixée à 100 ms, valeur utilisée classiquement en milieu industriel.
- Le nombre d'impulsions
- Le temps entre les impulsions
- La perte de charge consigne pour laquelle le décolmatage est déclenché.
La variation de ce paramètre nous permet de tester différentes valeurs de consigne. Nous pouvons notamment déterminer l'influence ou non de cette variable sur l'efficacité du décolmatage.
- Déclenchement manuel ou automatique.
En plus de la valeur de perte de charge consigne, la séquence de décolmatage peut être déclenchée manuellement. Nous pouvons donc déclencher un décolmatage de type online (filtration maintenue pendant le décolmatage) ou offline (filtration arrêtée pendant le décolmatage).

2.4. Conclusion

Ce chapitre avait pour objectif de présenter le banc « Métallisation » qui a été conçu spécifiquement pour répondre à la problématique posée par la filtration des fumées de métallisation. Ainsi, ce banc va nous permettre d'étudier les fumées de métallisation en tant qu'aérosol ou dépôt et les cycles de colmatage/décolmatages des médias filtrants.

Différentes lignes d'études sont implantées sur la canalisation principale pour répondre à cette problématique : suivi de la concentration massique, analyse granulométrique, caractérisation des fumées, étude du colmatage, étude des cycles de colmatage/décolmatage. Chaque ligne sera spécifiquement exposée dans le chapitre approprié.

Dans le chapitre suivant, nous caractériserons les fumées produites par le banc en termes de nature chimique, distribution granulométrique et de structure.

Chapitre 3

Caractérisation des fumées

Ce chapitre est consacré à la caractérisation des fumées de métallisation en termes de distribution granulométrique et morphologie. Des observations au MET (Microscope Electronique à Transmission) ont mis en évidence la nature nanostructurée de la fraction fine de ces particules. Or caractériser une particule par sa taille demeure toujours problématique lorsque la forme de cette dernière est très éloignée d'une sphère. Nous définirons donc dans un premier temps la notion de diamètre équivalent et nous nous focaliserons sur deux diamètres équivalents (le diamètre en mobilité électrique et le diamètre aérodynamique) et les relations entre ces diamètres au travers d'un facteur de forme dynamique qui tient compte de l'interaction de la particule avec le milieu environnant.

Dans un deuxième temps, nous développerons une technique relevée dans la littérature : le tandem DMA-ELPI. Cette méthode consiste à remonter à la masse volumique effective des agglomérats par détermination du diamètre aérodynamique d'une particule préalablement sélectionnée selon son diamètre en mobilité électrique. Une grande partie de ce travail a consisté à mettre au point ce couplage et à valider la méthode sur des aérosols « modèles » avant de l'appliquer aux fumées de métallisation. La connaissance de la masse volumique effective va nous permettre de remonter à une dimension fractale des agglomérats.

3.1. Taille d'une particule

3.1.1. Diamètres équivalents

La métrologie est essentielle lorsqu'on s'intéresse aux nanoparticules. En effet, les particules constituant les fumées de métallisation sont formées par condensation des vapeurs métalliques. Les nanoparticules s'agglomèrent très rapidement (Lucas et al., 2009) pour former des agrégats dont la taille est comprise entre quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres. Ainsi, les particules sont loin de constituer une sphère idéale et deux appareils de mesure utilisant des propriétés différentes d'une même nanoparticule ne renvoient pas le même diamètre. C'est pourquoi de nombreux diamètres dits équivalents existent dans la littérature pour caractériser des particules qu'elles soient agglomérées ou non. Ces diamètres équivalents visent à ramener la particule à une sphère idéale. La figure

suivante, extraite de la thèse de F.X Ouf (Ouf, 2006) représente ces différents diamètres sur un regroupement de nanoparticules.

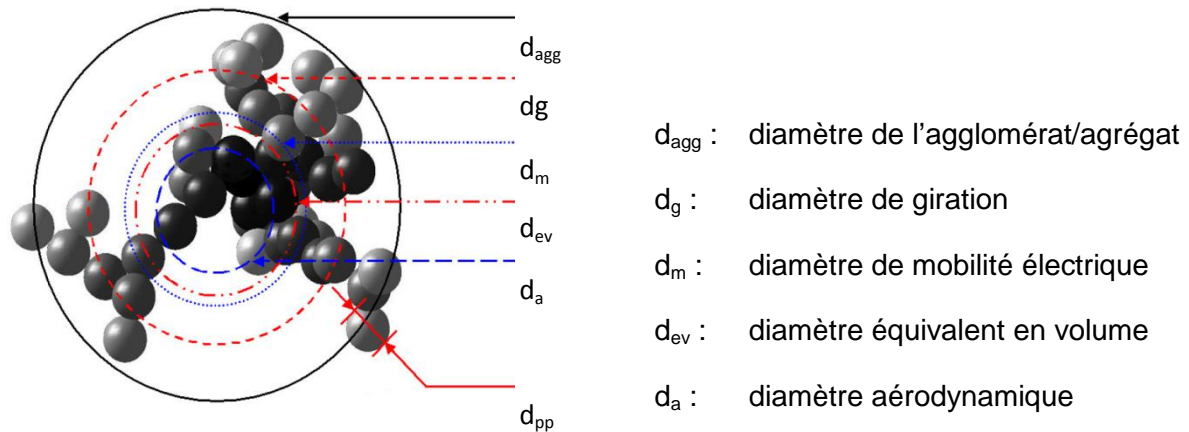


Figure 3.1 : Diamètres équivalents utilisés pour les agglomérats de nanoparticules

Ainsi, utiliser un diamètre équivalent consiste à assimiler une particule quelconque à une sphère parfaite de diamètre représentatif de la propriété à reproduire (vitesse de chute, volume, masse, mobilité électrique, ...). La Figure 3.2 exprime, par exemple, le volume d'une particule quelconque à gauche et la sphère équivalente associée de même propriété, c'est-à-dire de même volume, à droite.

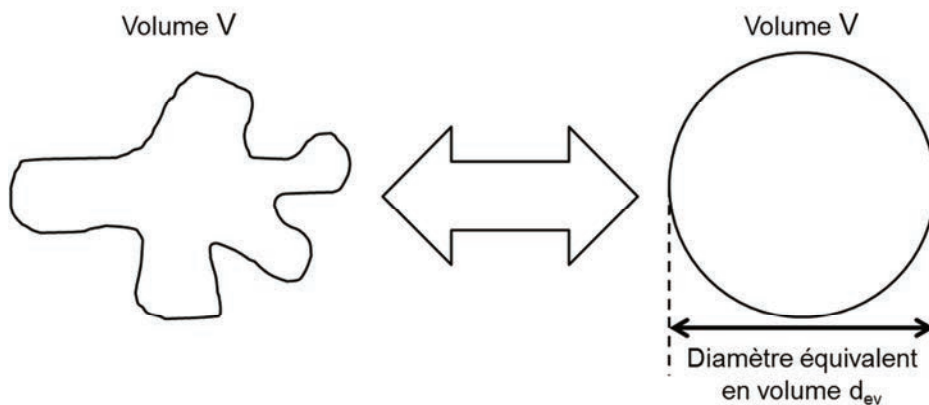


Figure 3.2 : Illustration du diamètre équivalent en volume d'une particule.

3.1.1.1. Diamètre de mobilité électrique

Le diamètre de mobilité électrique d'une particule, noté d_m , est le diamètre de la sphère qui possède la même vitesse de déplacement dans un champ électrique constant que la particule considérée et possédant une seule charge élémentaire (Flagan, 2001). Cette vitesse de déplacement, caractérisée par la mobilité électrique Z qui s'exprime en $m^2.V^{-1}.s^{-1}$, est définie par :

$$Z = \frac{p e C u(d_m)}{3 \pi \mu_g d_m} \quad (3.1)$$

avec p le nombre de charges élémentaires portées par la particule (C), e , la charge élémentaire ($1,6 \cdot 10^{-19} C$), Cu le coefficient de Cunningham (Cunningham, 1910) défini en lexique (-), μ_g ¹ la viscosité dynamique du gaz (Pa.s) et d_m le diamètre de mobilité électrique de la particule (m).

Le diamètre de mobilité électrique d_m correspond à l'équivalence :

$$Z(d_p) = Z(d_m) \Leftrightarrow \frac{C u(d_p)}{d_p} = \frac{C u(d_m)}{d_m} \quad (3.2)$$

avec d_p , le diamètre de la particule (m).

Nous utiliserons ce diamètre pour qualifier la propriété électrique d'une particule. Ce diamètre est mesuré notamment par l'appareil SMPS que nous décrivons un peu plus tard dans ce chapitre.

3.1.1.2. Diamètre aérodynamique

Le diamètre aérodynamique d_a est le diamètre de la sphère de masse volumique ρ_0 égale à 1000 kg.m^{-3} qui possède la même vitesse de chute terminale V_{TS} que la particule considérée de masse volumique ρ_p . Soit (Renoux & Boulaud, 1998),

$$V_{TS}(d_p) = C u(d_p) d_p^2 \rho_p = C u(d_a) d_a^2 \rho_0 \quad (3.3)$$

Le diamètre aérodynamique d_a s'exprime donc en fonction de d_p selon :

$$d_a = d_p \sqrt{\frac{C u(d_p) \rho_p}{C u(a) \rho_0}} \quad (3.4)$$

Ce diamètre est utilisé dans des appareils basés sur l'impaction tels que les impacteurs en cascade DLPI, l'ELPI ou encore l'impacteur Andersen.

¹ La viscosité dynamique μ_g est définie en lexique.

3.1.2. Relation entre les diamètres équivalents

3.1.2.1. Facteur de forme dynamique

La force de traînée d'une particule quelconque diffère de celle d'une sphère de même volume. Cette différence est prise en compte par le facteur de forme dynamique χ . En effet, la force de traînée d'une particule dépend du régime dans laquelle elle évolue. En régime continu ($Kn \ll 1$), la force de traînée d'une particule sphérique de diamètre d_p s'écrit :

$$F_{drag} = 3 \pi \mu_g U_i d_p \quad (3.5)$$

avec U_i , la vitesse interstitielle de la particule.

Dans les autres régimes de transition et moléculaire, la force de traînée doit être corrigée pour tenir compte du fait que cette force diminue lorsque la vitesse relative du gaz au niveau de la surface de la particules n'est plus nulle (Hinds, 1999). Cette correction est réalisée par le coefficient de Cunningham.

La force de traînée sur une particule sphérique s'écrit alors :

$$F_{drag} = \frac{3 \pi \mu_g U_i d_p}{Cu(d_p)} \quad (3.6)$$

Dans le cas de particules non sphériques, un facteur de correction dépendant de la morphologie de l'agglomérat est ajouté pour considérer la forme de la particule dans l'équation (3.6). Ce facteur, appelé facteur de forme dynamique χ , est défini comme le rapport de la force de traînée de la particule considérée F^p sur le force de traînée F^{ev} d'une sphère de volume équivalent de diamètre d_{ev} et de même vitesse (Fuchs, 1964; Hinds, 1999).

$$\chi = \frac{F_{drag}^p}{F_{drag}^{ev}} \quad (3.7)$$

Le facteur de forme dynamique χ est toujours strictement supérieur à 1 à l'exception d'une particule sphérique où il égale 1. Ainsi, la force de traînée pour une particule non sphérique s'écrit quel que soit le régime :

$$F_{drag} = \frac{3 \pi \mu_g U_i \chi d_{ev}}{Cu(d_{ev})} \quad (3.8)$$

Le facteur de forme dynamique χ est très dépendant de la forme de la particule. Ainsi pour des agglomérats compacts, χ est dépendant de la porosité de l'agglomérat mais très peu du

3.1 - Taille d'une particule

nombre de particules primaires composant la particule (Brockmann & Rader, 1990). De plus, le facteur de forme dynamique diminue lorsque la température augmente (Bau, 2008; Kim, Wang, Emery, et al., 2009; Mocho & Ouf, 2011). L'agglomérat devient en effet plus compact. Sa forme se rapproche donc d'une sphère.

Les valeurs du facteur de forme dynamique χ disponibles dans Tableau 3.1 montre que ce dernier varie habituellement entre 1 et 2. Il convient de noter que des auteurs ont travaillé plus récemment sur des agglomérats beaucoup plus denses que les agglomérats de sel (Kim, Wang, Emery, et al., 2009) et trouvent des valeurs entre 1 et 4.

Tableau 3.1 : Valeurs de facteur de forme dynamique dans la littérature

Auteur	Particule	χ	Commentaire
(Horvath, 1974)	-	1,08	$d_{pp}=200-300$ nm
(Kousaka et al., 1996)	-	1,12	$d_{pp}=120-150$ nm
(Zelenyuk et al., 2006)	Sulfate d'ammonium	1,03	$d_m = 160$ nm
		1,07	$d_m = 500$ nm
	Sel NaCl sphérique	1,02	Morphologie modifiée par un four
	Sel NaCl cubique	1,06 à 1,17	
Sel NaCl agglomérés compact	1,3 à 1,4		
(Wang et al., 2010)	Agglomérats NaCl	1,02 à 1,26	Morphologie modifiée par humidité
(Kim, Wang, Emery, et al., 2009)	Agglomérats d'argent	2,5	Température ambiante à 100 nm
		4	Température ambiante à 300 nm
		1,1	Température de 200°C à 100 nm
		2	Température de 200°C à 200 nm
		1	Température de 600°C à 50 nm
		1,1	Température de 600°C à 100 nm
(Shapiro et al., 2012)	Suies de diesel	2	$d_m = 200$ nm – $D_f = 2,31 - k_G = 1,07$
		5	$d_m = 750$ nm – $D_f = 2,31 - k_G = 1,07$
	Suies incendies	2,7	$d_m = 200$ nm – $D_f = 1,98 - k_G = 1,13$
		4,3	$d_m = 750$ nm – $D_f = 1,98 - k_G = 1,13$
(DeCarlo et al. 2004)	Sphères polystyrène latex	1,1 à 1,2	

Des travaux de Wang (Wang & Sorensen, 1999) sur le lien entre diamètre de mobilité électrique et diamètre de giration pour des agrégats de dimension fractale $D_f \approx 1,75$ selon différents régimes ont été repris par Baron (Baron et al., 2001). Ce dernier montre alors que le facteur de forme dynamique χ peut être estimé à partir du nombre de particules primaires N_{pp} constituant l'agrégat. Okuyama (Okuyama et al., 1981) avait déjà montré des choses similaires pour des agglomérats de moins de 25 particules primaires.

$$\chi = N_{pp}^{0,11} \text{ pour } N_{pp} \leq 60 \quad (3.9)$$

$$\chi = 0,6 N_{pp}^{0,24} \text{ pour } N_{pp} \geq 60 \quad (3.10)$$

Toutefois, il a également été mis en évidence que le facteur de forme dynamique dépend de l'orientation de l'agglomérat (Kousaka et al., 1996; Binder et al., 2006, 2009). Ainsi, Binder (Binder et al., 2006) ont observé une variation de jusqu'à 20 % du facteur de forme dynamique pour des particules dont la dimension fractale vaut 1,85.

Ainsi, Le facteur de forme dynamique est une information précise sur la morphologie de la particule qu'elle soit agglomérat ou non. Il témoigne de la non sphéricité de la particule étudiée. En plus de cette information morphologique, le facteur de forme dynamique intervient lors du passage d'un diamètre équivalent à un autre.

3.1.2.2. Lien avec le diamètre équivalent en volume

Les diamètres équivalents décrits plus haut sont bien entendus liés entre eux (DeCarlo et al., 2004) et plus particulièrement au diamètre équivalent au volume d_{ev} .

Le diamètre de mobilité électrique de la particule est directement lié au diamètre équivalent en volume d_{ev} par la relation :

$$d_m = \frac{Cu(d_m)}{Cu(d_{ev})} \chi d_{ev} \quad (3.11)$$

Pour des particules sphériques de diamètre d_p portant une seule charge, nous avons l'égalité :

$$d_p = d_{ev} = d_m \quad (3.12)$$

Dans le cas contraire, comme le coefficient de Cunningham augmente lorsque le diamètre de la particule diminue (DeCarlo et al., 2004),

$$d_m > d_{ev} \quad (3.13)$$

La Figure 3.3 représente le cas d'une particule de diamètre sphérique de mobilité électrique 100 nm et portant 2 charges élémentaires. La particule équivalente en termes de mobilité électrique, c'est-à-dire la sphère ne portant qu'une seule charge élémentaire mais présentant les mêmes propriétés électriques que la particule considérée possède un diamètre de 68 nm. En effet, à nombre de charge égal, une particule sera d'autant plus facilement déviée dans un champ électrique qu'elle sera petite.

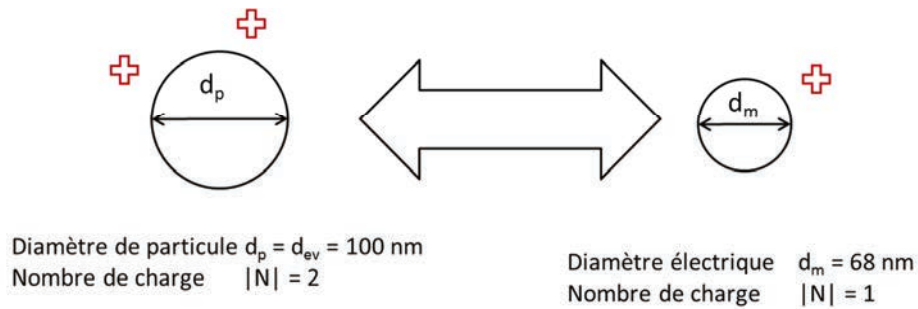


Figure 3.3 : Illustration du diamètre de mobilité électrique d'une particule.

Le diamètre aérodynamique est quant à lui lié au diamètre équivalent en volume d_{ev} de la particule. Leur relation est donnée par Hinds (Hinds, 1999) :

$$d_a = d_{ev} \sqrt{\frac{1 \rho_p Cu(d_{ev})}{\chi \rho_0 Cu(d_a)}} \quad (3.14)$$

3.1.2.3. Synthèse

D'une manière générale, pour passer d'un diamètre équivalent d_x à un diamètre équivalent d_y , il est nécessaire de passer par le diamètre équivalent en volume d_{ev} par le jeu d'équations suivant (DeCarlo et al., 2004).

$$\left\{ \begin{array}{l} d_m = \frac{Cu(d_m)}{Cu(d_{ev})} \chi d_{ev} \\ d_a = d_{ev} \sqrt{\frac{1 \rho_p Cu(d_{ev})}{\chi \rho_0 Cu(d_a)}} \end{array} \right. \quad (3.15)$$

$$(3.16)$$

L'intervention du coefficient de Cunningham appliqué au diamètre équivalent recherché d_y est un inconvénient dans la détermination de d_y . Il est donc nécessaire de procéder par itération pour résoudre ces équations.

3.1.3. Caractéristiques d'un agglomérat

Les diamètres équivalents caractérisent n'importe quel type de particule et peuvent fournir des informations très intéressantes sur l'aérosol, comme par exemple son facteur de forme, ou sur le regroupement de particules entre elles.

Ce regroupement est appelé agrégat ou agglomérat selon les forces de liaisons fortes ou faibles mises en jeu (Aitken et al., 2004). En effet, les particules dites agglomérées sont maintenues ensemble par des liaisons de faible intensité telle que la force de Van Der Waals. Les points de contacts physiques sont alors limités. Dans ce cas, la surface développée par la particule est considérée comme étant la somme des surfaces de chacune des particules primaires composant la particule. Une désagglomération des particules est envisageable si l'énergie fournie est suffisante.

Dans le cas d'un agrégat, les particules sont unies par des liaisons plus importantes telles que des liaisons covalentes comme lors d'une fusion partielle de particules primaires. Les particules ne peuvent être dissociées les unes des autres ou alors sous un coût énergétique très élevé. La surface développée par la particule ne peut pas être approximée à la somme des surfaces de chacune des particules primaires composant la particule.

Quel que soit le regroupement des particules primaires, des paramètres supplémentaires sont disponibles pour caractériser ce regroupement de particules primaires.

3.1.4. Dimension fractale

La notion de dimension fractale D_f également appelée dimension de Hausdorff a été introduite par le mathématicien Benoît Mandelbrot (Mandelbrot, 1967, 1983). Ce paramètre s'applique dans le cas d'agglomérat ou d'agrégat. La dimension fractale D_f permet de lier un nombre de particules primaires N_{pp} composant l'agglomérat à la taille de ces éléments primaires (Bonczyk & Hall, 1991) :

$$N_{pp} = k_G \left(\frac{d_g}{d_{pp}} \right)^{D_f} \quad (3.17)$$

avec d_g , le diamètre de giration décrit au chapitre 4 et k_G , un préfacteur fractal. d_g et D_f peuvent être déterminés par des techniques de diffraction statique et dynamique de la lumière (Wang & Sorensen, 1999; Sorensen, 2001) ou encore l'analyse de clichés : box counting (uniquement pour la dimension fractale) (Foroutan-pour et al., 1999; Lee & Hsieh, 2010; Kanniah et al., 2012) ou encore l'analyse du rayon de giration.

Ce paramètre, compris entre 1 et 3, renseigne sur la structure géométrique et morphologique de l'agglomérat dans l'espace. Il est très utilisé dans le cas de particules nanostructurées

c'est-à-dire issues d'une agglomération de particules primaires. Ainsi, un agglomérat de structure linéaire possédera une dimension fractale de 1 alors qu'un agglomérat compact, c'est-à-dire replié sur lui-même, aura une dimension fractale proche de 3 (Figure 3.4).

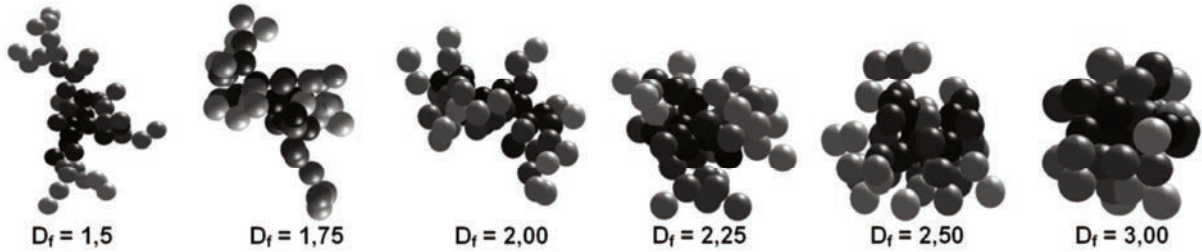


Figure 3.4 : Illustration de morphologie d'agrégats de dimensions fractales différentes (Ouf, 2006)

Dans la pratique, en raison du grand nombre de clichés nécessaire à sa détermination, le diamètre de giration est souvent remplacé par les diamètres équivalents aérodynamique d_a et mobilité électrique d_m . La dimension fractale D_{fm} lie alors la masse de l'agglomérat m_{agg} à son diamètre de mobilité électrique d_m par la relation :

$$m_{agg} = k_{fm} \left(\frac{d_m}{d_{pp}} \right)^{D_{fm}} \quad (3.18)$$

Ou encore

$$N_{pp} = k_m \left(\frac{d_m}{d_{pp}} \right)^{D_{fm}} \quad (3.19)$$

avec k_m et k_{fm} des préfacteurs liés par (Shapiro et al., 2012) :

$$k_m = \frac{6 k_{fm}}{\pi \rho_p d_{pp}^3} \quad (3.20)$$

La masse de l'agglomérat peut également être exprimée en fonction du diamètre aérodynamique de l'agglomérat.

$$m_{agg} = k_{pr} \left(\frac{d_a}{d_{pp}} \right)^{D_{pr}} \quad (3.21)$$

avec d_a , le diamètre aérodynamique de la particule en régime moléculaire ($Kn > 10$).

De nombreux auteurs (Köylü, Faeth, et al., 1995; Park, Kittelson, Zachariah, et al., 2004; Chandler et al., 2007) ont tenté de relier ces différentes dimensions fractales et chercher des conditions pour pouvoir les confondre. Chandler (Chandler et al., 2007) suppose $D_{fm} = D_{pr}$. D'autres auteurs (Schmidt-Ott et al., 1990; Slowik et al., 2004; Van Gulijk et al., 2004) supposent que lorsque $D_f > 2$, alors $D_{fm} = D_f$ quel que soit le régime de l'écoulement.

Par la suite, Nous suivrons la démarche adoptée par ces auteurs et considérerons que toutes les dimensions fractales explicitées précédemment sont égales.

3.1.5. Principaux montages de détermination des propriétés des particules

Le Tableau 3.2 partiellement issu des travaux de Shapiro (Shapiro et al., 2012) synthétise les principales techniques utilisées pour déterminer les propriétés des particules. Notons que dans la littérature, la différence entre les grandeurs fractales décrites précédemment mesurée n'est pas systématiquement faite.

Tableau 3.2 : Principaux montages de détermination des propriétés des particules. ρ_e : masse volumique effective ; D_f : dimension fractale, d_{pp} : diamètre de particule primaire, L : longueur maximale projetée de l'agglomérat/agrégat.

Technique	Auteurs	Détermination directe	Détermination indirecte
Differential Mobility Analyzer (DMA) + Aerosol Particle Mass analyzer (APM)	(Park et al., 2003; Pagels et al., 2009; Shin, 2009; Shin, Wang, et al., 2010)	d_m, m_{agg}	$\chi, d_a, d_{ev}, \rho_e ; D_f$
DMA + LPI/ELPI (Electrical Low Pressure Impactor)	(Kelly & McMurry, 1992; Ristimäki et al., 2002; Van Gulijk et al., 2004)	d_m, d_a	$\rho_e ; D_f, \chi, d_{ev}$
DMA + Transmission Electronic Microscopy (TEM)	(Rogak et al., 1993; Park, Kittelson, & McMurry, 2004)	$d_m, d_g, d_{pp}, L,$	D_f, χ, d_{ev}
Static Light Scattering (SLS) + Dynamic Light Scattering (DLS)	(Wang & Sorensen, 1999)	d_m, d_g	D_f
DMA + Aerosol Mass Spectrometer (AMS)	(Slowik et al., 2004, 2007; Katrib et al., 2005; Schneider et al., 2006; Zelenyuk et al., 2006)	d_m, d_a	$\rho_e ; D_f, \chi, d_{ev}$
SMPS + ELPI	(Van Gulijk et al., 2004)	d_m, d_a	$\rho_e ; D_f, \chi, d_{ev}$

Une technique très répandue pour mesurer la dimension fractale est la combinaison des propriétés électrique et aérodynamique de l'agglomérat. Ces deux diamètres équivalents permettent d'obtenir une masse volumique de la particule en fonction de son diamètre de mobilité électrique. Cette masse volumique est appelée masse volumique effective ρ_e . Son évolution donne accès à la dimension fractale D_f que nous recherchons pour caractériser les agglomérats contenus dans les fumées de métallisation.

Plusieurs types de masse volumique peuvent être rencontrés dans la littérature. Avant d'aborder plus en détail le protocole utilisé pour déterminer la dimension fractale, rappelons ces notions.

3.1.6. Masse volumique de l'agglomérat.

Plusieurs types de masses volumiques existent et participent à la caractérisation de l'aérosol. Cette section récapitule brièvement les masses volumiques les plus utilisées en deux sections : celles représentant un paramètre physique et celles permettant de lier une grandeur de l'agglomérat tel que sa masse à un diamètre équivalent.

3.1.6.1. Paramètre physique

3.1.6.1.1 Masse volumique réelle ρ_m

La masse volumique du matériau (*material density* en anglais) est définie comme le rapport entre la masse d'une particule m_p et son volume « réel » constitué par le matériau solide V_m (*material volume*).

$$\rho_m = \frac{m_p}{V_m} = \frac{m_p}{\frac{\pi}{6} d_{me}^3} \quad (3.22)$$

avec d_{me} , diamètre équivalent en masse. Cette définition ne tient pas compte des vides internes des particules primaires.

3.1.6.1.2 Masse volumique particulaire ρ_p

La masse volumique particulaire correspond à la masse volumique moyenne du matériau compte tenu des vides internes. Le volume de la particule V_p est alors considéré comme la somme du volume occupé par de la matière et du volume occupé par les vides internes :

$$V_p = V_m + V_{\text{vides internes}} \quad (3.23)$$

La masse volumique ρ_p s'écrit alors :

$$\rho_p = \frac{m_p}{V_p} = \frac{m_p}{\frac{\pi}{6} d_{ev}^3} \quad (3.24)$$

Dans le cas de particules sphériques, $d_{ev} = d_{me}$, sinon, $d_{ev} > d_{me}$ et donc $\rho_p < \rho_m$ (Baron & Willeke, 2001).

Dans notre cas, les diamètres des particules rencontrées sont supposés suffisamment petits pour considérer qu'il n'y a pas de vide interne dans les particules primaires. Les vues au microscope montrent des agglomérats ouverts. Nous pouvons donc considérer pour les particules que

$$V_p = V_m \quad (3.25)$$

Il en découle l'hypothèse d'égalité entre la masse volumique de la particule ρ_p et la masse volumique de la particule primaire ρ_{pp} ,

$$\rho_p = \rho_m = \rho_{pp} \quad (3.26)$$

3.1.6.2. Paramètre non physique

Nous ne traiterons ici que de la masse volumique effective ρ_e que nous utiliserons grandement par la suite. Cette masse volumique effective est largement utilisée dans le cas d'agglomérats fractals.

La masse volumique effective représente la masse volumique qu'aurait une sphère de diamètre d_m pour avoir la même masse m_p que la particule considérée. En d'autres termes, ρ_e est la masse volumique de la particule exprimée en fonction de son diamètre de mobilité électrique d_m . Elle est la grandeur qui permet de relier le diamètre de mobilité électrique d'un agglomérat d_m à sa masse m_{agg} .

Soit,

$$m_{agg} = \frac{\pi}{6} \rho_e d_m^3 \quad (3.27)$$

En combinant les relations (3.24) et (3.27), il vient

$$\rho_e = \rho_p \left(\frac{d_{ev}}{d_m} \right)^3 \quad (3.28)$$

$$\rho_e = \rho_0 \left(\frac{d_a \chi}{d_m} \right)^3 \left(\frac{\rho_0}{\rho_p} \right)^2 \quad (3.29)$$

ρ_e est plus communément écrite sous la forme (Hinds, 1999) :

$$\rho_e = \frac{Cu(d_a) d_a^2}{Cu(d_m) d_m^2} \rho_0 \quad (3.30)$$

Nous pouvons remarquer que $\rho_e = \rho_p$ pour des particules sphériques. Dans le cas contraire, $\rho_e \leq \rho_p$. Cette définition fait appel uniquement à la morphologie extérieure de la particule, c'est-à-dire que cette définition permet d'estimer le volume de vide entre l'enveloppe qui constitue la partie matérielle de la particule et l'enveloppe sphérique de la particule équivalente de diamètre d_m . En d'autres termes, ρ_e ne tient pas compte des vides internes de la particule.

Sa détermination est généralement obtenue soit en combinant des mesures de masse (Aerosol Particle Mass (APM), Tapered Element Oscillating Microbalance (TEOM)) et de mobilité électrique (Differential Mobility Analyser (DMA), Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS)) parallèle ou en série, soit par la mesure en série soit en parallèle des diamètres de mobilité électrique d_m par un DMA et du diamètre aérodynamique d_a par un Electrical Low Pressure Impactor (ELPI) (Zelenyuk et al., 2006; Lee et al., 2009; Shapiro et al., 2012). Parmi les méthodes les plus employées, nous pouvons citer :

- Couplage DMA-ELPI (Ristimäki et al., 2002; Lee & Kramer, 2004; Maricq & Xu, 2004; Van Gulijk et al., 2004; Virtanen et al., 2004; Maricq et al., 2006; Ouf, 2006)
- Couplage DMA-APM (Kelly & McMurry, 1992; Hering & Stolzenburg, 1995; McMurry et al., 2002; Park, Kittelson, & McMurry, 2004; Park, Kittelson, Zachariah, et al., 2004; Ku & Maynard, 2006; Lall et al., 2008; Kim, Wang, Emery, et al., 2009; Shin et al., 2009; Shin, Mulholland, et al., 2010)
- Analyse de clichés en microscopie électronique à transmission (Ouf, 2006)

D'après certains auteurs (Schmidt-Ott et al., 1990; Skillas et al., 1998), la masse de l'agglomérat fractal est liée à son diamètre de mobilité électrique d_m et sa dimension fractale D_f par la relation :

$$m_{agg} \propto d_m^{D_f} \quad (3.31)$$

En intégrant cette équation, plusieurs auteurs (Virtanen et al., 2002, 2004; Maricq & Xu, 2004) montrent que la masse volumique effective ρ_e est liée au diamètre de mobilité électrique par

$$\rho_e \propto d_m^{D_f-3} \quad (3.32)$$

Cette dernière relation sera essentielle dans la détermination de la dimension fractale des agglomérats. L'évolution de la masse volumique effective nous permettra de déterminer la dimension fractale.

3.2. Méthodes de prélèvement

3.2.1. Description de la ligne de prélèvement 2

Parmi les différentes lignes de prélèvement présentées au chapitre 2, la ligne 2 est utilisée pour prélever et analyser l'aérosol transporté en conduit. Une sonde de prélèvement placée au centre de la canalisation principale permet d'échantillonner l'aérosol. Deux configurations ont été utilisées au cours de notre travail (Figure 3.5) : une première pour déterminer la granulométrie de l'aérosol et une seconde pour les observations au Microscope Electronique à Transmission (MET) et mesures en ligne de certaines propriétés de l'aérosol. Le diamètre des canalisations utilisées dans les deux configurations est de 200 mm.

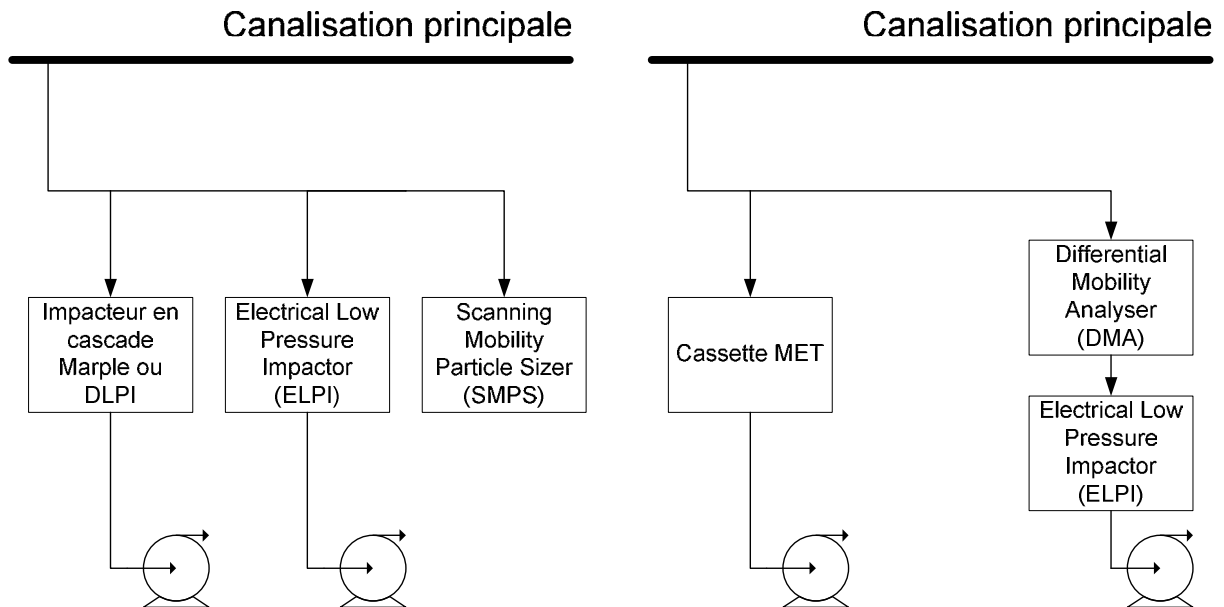


Figure 3.5 : Schéma détaillé de la ligne 2

Dans la première configuration, la ligne de prélèvement est subdivisée en trois lignes parallèles. Chaque ligne comprend un granulomètre. La première ligne contient l'impacteur en cascade Andersen Marple 298 (8 étages, gamme 0,3 à 21 μm). Elle est équipée d'un col sonique et d'une pompe (2 L.min⁻¹) en aval de l'impacteur afin de réguler le débit de prélèvement. Ce granulomètre donne des mesures hors ligne par méthode gravimétrique. A la fin de l'échantillonnage, les différents plateaux composant l'impacteur sont pesés et permettent d'obtenir la concentration massique de particules en fonction de leur diamètre aérodynamique.

Les granulomètres Electrical Low Pressure Impactor (ELPI) et Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) utilisés sur les deux autres lignes donnent à l'instar du précédent granulomètre des mesures en ligne. Ces deux granulomètres disposent chacun de leur propre pompe

régulée. Ils fournissent des concentrations numériques en fonction du diamètre aérodynamique pour l'ELPI et du diamètre de mobilité électrique pour le SMPS.

La seconde configuration est utilisée pour échantillonner sur cassette destinée à la microscopie et déduire des propriétés « en vol » de l'aérosol telles que la masse volumique effective, la dimension fractale ou le facteur de forme dynamique. Dans le cas de prélèvement pour la microscopie, la cassette est équipée en aval d'un col sonique et d'une pompe à air tout comme l'impacteur Andersen Marple 298. La seconde branche de prélèvement utilisée pour les mesures des propriétés en ligne est composée d'un DMA (Differential Mobility Analyser) de type Vienna (Grimm SMPS +C) en série avec un ELPI. Le principe de cette branche est de combiner les propriétés électriques via le DMA et aérodynamiques via l'ELPI de l'aérosol afin d'accéder à des données telles que la masse volumique effective ρ_e qui nous permettra de déduire le facteur de forme dynamique χ et la dimension fractale D_f .

Nous allons à présent décrire les différents appareils utilisés pour caractériser les fumées de métallisation : le DLPI, l'ELPI et le SMPS.

3.2.2. DLPI

Le Dekati® Low Pressure Impactor (DLPI) est un granulomètre de type impacteur en cascade à basse pression qui utilise les propriétés aérodynamiques des particules pour les séparer en 14 différentes classes. Chaque classe étant représentée par un plateau d'impaction. Sa gamme de mesure est très large et va de 30 nm à 50 μm (données techniques DEKATI). Le débit de prélèvement de 10 L.min⁻¹ est assuré par une pompe située en aval de l'appareil.

Des filtres de collecte de 25 mm sur les plateaux d'impaction collectent les particules au cours de la mesure. Les pesées des filtres avant et après échantillonnage permettent d'obtenir la distribution gravimétrique des particules. L'inconvénient du DLPI est que la mesure est différée dans le temps. Il faut donc attendre la fin de l'échantillonnage et des différentes pesées pour avoir un résultat.

3.2.3. ELPI

3.2.3.1. Principe

L'Electrical Low Pressure Impactor (ELPI) est un DLPI auquel a été rajouté un chargeur Corona. Il charge également les particules avant classification afin d'être en mesure de les comptabiliser. Le fonctionnement de l'ELPI peut être scindé en deux parties : la charge des particules puis leur répartition par classe aérodynamique, sur différents plateaux où elles sont comptées globalement par la mesure du courant induit avec des électromètres (Keskinen et al., 1992).

Le temps d'échantillonnage est très court, de l'ordre de 1 s. Comme le DLPI, sa gamme de mesure est très large et va de 28 nm à 10 μm (données techniques DEKATI) en

configuration normale et jusqu'à 7 nm en configuration « electrical filter stage ». Les caractéristiques détaillées de l'ELPI sont données en Annexe 3.

La Figure 3.6 représente ces étapes.

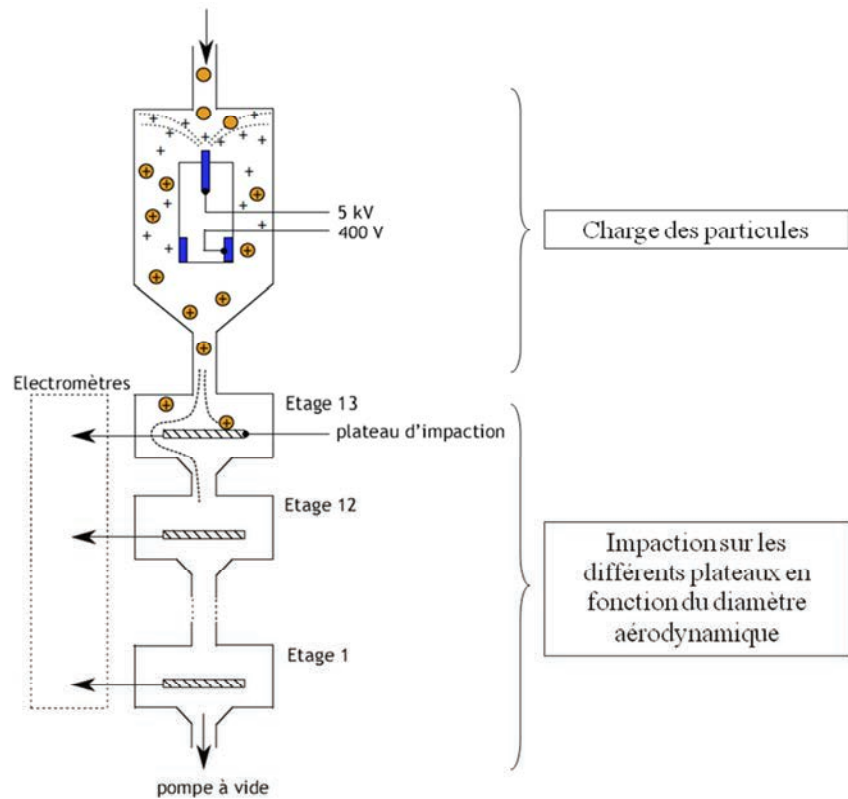


Figure 3.6 : Principe de l'Electrical Low Pressure Impactor

La première étape est la charge des particules entrantes par effet couronne à l'aide d'une électrode chargée positivement à 5000 V. Les ions superflus, c'est-à-dire qui ne s'attachent pas aux particules de l'aérosol sont éliminés par un piège à ions de 400 V. La seconde étape est la répartition des particules selon leur diamètre aérodynamique sur les 13 plateaux d'impaction. En percutant le plateau d'impaction, les particules chargées vont induire un courant sur le plateau, courant mesuré par un électromètre. Le seuil de détection de l'ELPI se situe à 5-10 fA par plateau. La mesure du courant par plateau permet, à partir de la loi de charge de l'appareil, de remonter au nombre de particules globales sur le plateau (Keskinen et al., 1992). L'ensemble des plateaux fournit la distribution de l'aérosol sous forme d'histogramme. Le plateau 13 n'étant pas équipé d'électromètre, l'ELPI fournit donc 12 points de mesures. Le débit de référence de l'ELPI est de 10 L.min⁻¹.

3.2.3.2. Loi de charge

Les mécanismes et équations mis en jeu dans l'ELPI sont décrits par Marjamäki (Marjamäki et al., 2000, 2005; Virtanen et al., 2001).

Lors de leur entrée dans l'ELPI, les particules sont chargées en vue de pouvoir mesurer un courant induit sur les plateaux d'impaction. Pour ce faire, l'air est ionisé par effet couronne sous une tension de 5000 V. L'efficacité de charge E_{ch} dépend de la pénétration des particules P_T , de leur charge globale n_T et du débit Q_r circulant dans l'ELPI (3.33).

$$E_{ch} = P_T n_T e Q_r \quad (3.33)$$

La connaissance de l'efficacité de charge E_{ch} permet de recalculer à partir du courant mesuré sur les plateaux la concentration numérique des particules C_N sous certaines hypothèses.

Moisio (Moisio et al., 1999) a déterminé expérimentalement une expression de l'efficacité globale de charge E_{ch} du chargeur avec des particules de chlorure de sodium et des sphères de latex. Elle vaut alors :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \frac{Q_r}{10} 4,48 (d_m)^{1,9087} & \text{pour } d_m < 0,095 \\ \frac{Q_r}{10} 1,293 (d_m)^{1,3805} & \text{pour } 0,095 \leq d_m < 1,196 \\ \frac{Q_r}{10} 1,3529 (d_m)^{1,1308} & \text{pour } d_m > 1,196 \end{array} \right. \quad (3.34)$$

avec Q_r , le débit d'aspiration réel (9,5 L.min⁻¹ dans notre cas) et Q_n le débit d'aspiration de référence de l'ELPI (10 L.min⁻¹) et d_m en μm . Le logiciel de calcul ELPIVI vendu avec l'ELPI utilise ce jeu d'équations.

La Figure 3.7 illustre l'efficacité de charge E_{ch} en fonction du diamètre de mobilité électrique d_m .

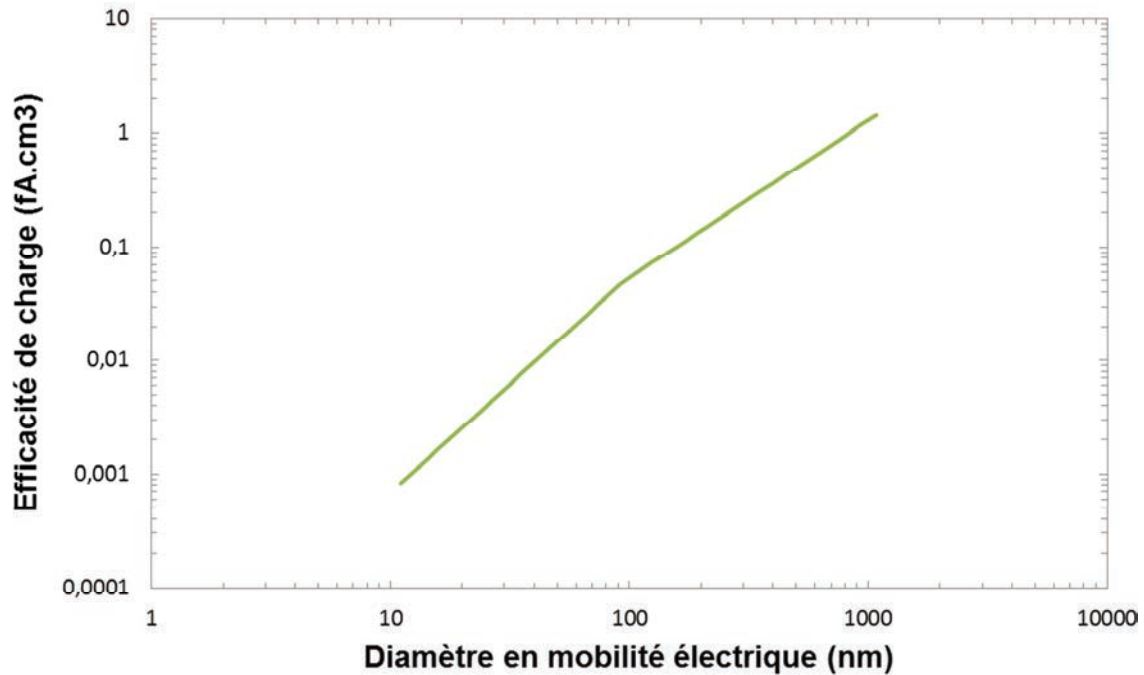


Figure 3.7 : Efficacité de charge E_{ch} du chargeur corona de l'ELPI en fonction du diamètre de mobilité électrique des particules

Notons que ce jeu d'équation a été déterminé pour des particules sphériques et cubiques de références. Unger (Unger et al., 2004) a constaté que cette loi ne s'applique pas pour les aérosols cubiques. Ce résultat est cohérent avec les travaux de Oh (Oh et al., 2004) qui montrent qu'un agrégat de faible dimension fractale pouvait porter jusqu'à 30 % de charges de plus que des particules compactes. Une récente publication de Ouf (Ouf & Sillon, 2009) remet en cause l'efficacité de charge pour des particules fractales. Ces auteurs ont en effet observé une efficacité de charge plus élevée pour des particules fractales que pour des particules de référence (sphériques ou cubiques). Ils déterminent ainsi une efficacité de charge $P_T n_T$ pour les particules fractales dans le mode « trap on » de l'ELPI. Ouf préconise l'utilisation du diamètre de charge électrique équivalente d_{qe} plutôt que le diamètre de mobilité électrique d_m . Ces deux diamètres sont liés selon Rogak (Rogak & Flagan, 1992) :

$$d_{qe} = 1,1 d_m \quad (3.35)$$

3.2.3.3. Détermination de la distribution en nombre

A la sortie du chargeur, les particules entrent dans zone d'impaction de l'ELPI où elles sont réparties sur les différents plateaux selon leurs diamètres aérodynamiques respectifs. Quatre mécanismes de collecte entrent en jeu dans cette partie :

- Impaction (mécanisme majoritaire)
- Interception
- Diffusion
- Force image
- Space-charging

Ces mécanismes de collecte sont expliqués plus en détail en Annexe 7. La mesure du courant I par plateau est liée au nombre de particules présentes sur le plateau. Ainsi, il est possible à partir de la loi de charge de l'appareil de remonter à la concentration en nombre de particules C_N par l'équation.

$$I = E_{ch}(d_m) C_N(d_m) \quad (3.36)$$

Les hypothèses sous-jacentes pour recalculer la concentration numérique à partir du courant global mesuré sur le plateau sont :

- Particule unitaire.
- Particule sphérique. En effet, dans ce cas les diamètres aérodynamique d_a et de mobilité électrique d_m sont égaux.
- Particule pleine c'est-à-dire pas de vide interne au sein de la particule.

La connaissance supplémentaire de la masse volumique de la particule ρ_p permet de calculer la distribution massique de l'aérosol.

3.2.4. SMPS

3.2.4.1. Principe

Le Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) (Wang & Flagan, 1990) est un ensemble de deux appareils distincts utilisés en série :

- le DMA (Differential Mobility Analyser) qui permet de sélectionner des particules de mobilité électrique Z donnée.
- le Compteur à Noyaux de Condensation (CNC) assurant le comptage des particules précédemment sélectionnées par le DMA.

Le SMPS permet de déterminer la granulométrie d'un aérosol selon le diamètre de mobilité électrique d_m . Sa gamme de mesure s'étend de 11 nm à 1083,3 nm (Grimm SMPS +C : données constructeur). Ses mesures sont réalisées en deux étapes : sélection des particules dans un premier temps puis comptage dans un second temps.

La première étape est la sélection des particules de mobilité Z . Cette mobilité Z correspond à un diamètre de mobilité électrique d_m pour les particules monochargées. Cette phase est assurée par le DMA via une source radioactive et un champ électrique. L'utilité de la source est décrite plus loin dans ce manuscrit. Ainsi, seules les particules sélectionnées par le champ électrique du DMA pourront sortir de la colonne du DMA. L'aérosol est donc monodispersé en sortie de colonne du DMA en termes de mobilité électrique comme l'illustre la Figure 3.8.

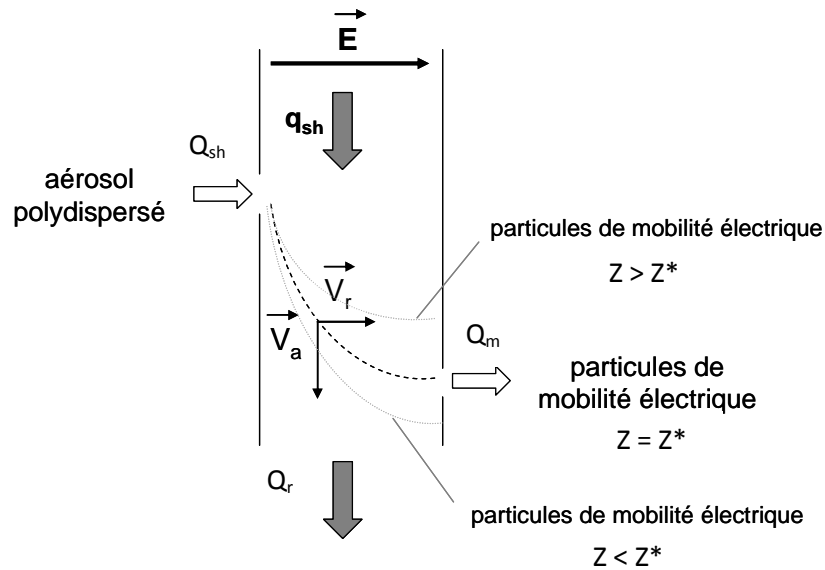


Figure 3.8 : Sélection par un DMA d'une particule de mobilité électrique donnée

La seconde étape du fonctionnement du SMPS est le comptage. Sélectionnées, les particules sont alors dirigées vers un compteur à particules, le CNC. A l'intérieur, des vapeurs de butanol se condensent sur les particules, ce qui a pour effet d'augmenter artificiellement leur taille et de les rendre ainsi détectables par un simple compteur optique.

Les paragraphes suivants sont dédiés à la description détaillée du fonctionnement du DMA. La compréhension des différents mécanismes est nécessaire en vue d'établir une modélisation expliquée plus tardivement. La modélisation constituant elle-même une étape dans la détermination des caractéristiques de l'aérosol telle que la dimension fractale.

L'étape de sélection des particules par le DMA peut être, elle-même, décomposée en deux phases : le marquage des particules puis la sélection proprement dite par mobilité électrique.

3.2.4.2. Charge des particules

La première étape dans la sélection des particules de mobilité électrique Z consiste à amener l'aérosol dans un état de charge connu. En effet, seules les particules chargées négativement vont être sélectionnées par le DMA. Il faut donc connaître la proportion totale des particules chargées dans l'aérosol pour en déduire la granulométrie complète de l'aérosol en amont du DMA. De plus, cette étape permet de s'assurer qu'il y aura des particules chargées susceptibles d'être sélectionnées dans l'aérosol.

Cette étape est réalisée par le passage de l'aérosol au voisinage d'une source radioactive de ^{214}Am (Américium). En effet, La charge électrique d'un aérosol se stabilise à un état stationnaire globalement neutre du point de vue électrique lorsque celui-ci passe à proximité d'une source bipolaire telle qu'une source radioactive. Cet état particulier est appelé « Equilibre de Boltzmann » et est régi par l'équation générale suivante (Baron & Willeke, 2001).

$$g_N = \frac{\exp\left(-\frac{p^2}{2\sigma^2}\right)}{\sum_{k=-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{k^2}{2\sigma^2}\right)} \quad (3.37)$$

avec

$$\sigma^2 = \frac{d_p k_B T}{2e^2} \quad (3.38)$$

g_N la proportion de particules portant p charges élémentaires et k_B la constante de Boltzmann ($1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$).

L'approche de Hopel et Frick (1963) (Hoppel & Frick, 1986, 1989, 1990) sur le modèle corrigé de Fuchs (Fuchs, 1964) montre que la symétrie des charges $+N$ et $-N$ n'est plus exacte en dessous de 100 nm (Baron & Willeke, 2001). Wiedensohler (Wiedensohler, 1988) propose une approximation de ce phénomène pour les charges comprises entre -2 et +2. Cette relation donne la proportion de particules chargées N fois, g_N , par rapport à l'aérosol total.

$$g_N = 10^{b_N} \quad (3.39)$$

avec

$$b_N = \sum_{i=0}^5 a_{i,N} (\log d_p)^i \quad (3.40)$$

où le diamètre de la particule d_p est exprimé en nm. Les coefficients a_i sont donnés dans le Tableau 3.3.

Tableau 3.3 : Coefficients a_i de Wiedensohler (1988)

N	-2	-1	0	1	2
a_0	-26.3328	-2.3197	-0.0003	-2.3484	-44.4756
a_1	35.9044	0.6175	-0.1014	0.6044	79.3772
a_2	-21.4608	0.6201	0.3073	0.48	-62.89
a_3	7.0867	-0.1105	-0.3372	0.0013	26.4492
a_4	-1.3088	-0.126	0.1023	-0.1553	-5.748
a_5	0.1051	0.0297	-0.0105	0.032	0.5049

La Figure 3.9 ci-après illustre cette relation.

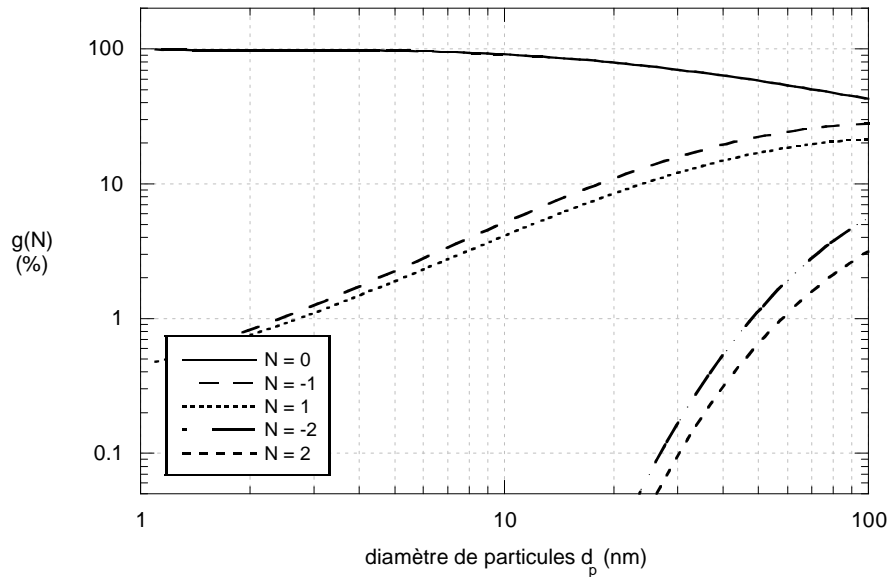


Figure 3.9 : Distribution de charge de particules entre 1 et 100 nm après passage au sein d'une source bipolaire d'après Wiedensohler

Ce graphe permet de mettre en valeur que pour des diamètres d_p inférieurs à 20 nm, la probabilité qu'une particule porte plus d'une charge peut être considérée comme nulle.

Pour des diamètres d_p inférieurs à 100 nm, la probabilité qu'une particule porte plus de deux charges est négligeable. Il faudrait donc en toute rigueur utiliser les deux équations pour décrire l'équilibre électrique de l'aérosol après son passage près de la source : approximation de Wiedensohler en dessous de 100 nm et « équation générale de Boltzmann » au-delà.

Remarque : Le logiciel Grimm SMPS vendu avec le DMA type Vienna ne prend en compte que l'équation de Boltzmann bien qu'elle ne soit plus exacte en dessous de 100 nm. Par exemple, pour un aérosol monodispersé de 30 nm, le pourcentage de particules portant -1 charge après mise à l'équilibre de Boltzmann vaut 11,5 % selon l'équation générale de Boltzmann mais 15,8 % selon Wiedensohler. Pour notre part, nous considérerons l'approximation de Wiedensohler en dessous de 100 nm puis l'équation générale de Boltzmann au-delà.

3.2.4.3. Sélection des particules

La mobilité électrique traduit la propriété d'une particule à se déplacer sous l'effet d'une force électrostatique. Ainsi, si le champ électrique auquel la particule chargée est soumise est suffisamment important pour vaincre les forces de gravité, d'inertie et de diffusion brownienne, la trajectoire de la particule peut être contrôlée par la vitesse du fluide porteur et la vitesse de dérive due au champ électrique.

3.2.4.4. Détermination de la distribution en nombre

En sortie du DMA, les particules sélectionnées possèdent toutes la même mobilité électrique Z . Elles sont alors dirigées vers le Compteur à Noyaux de Condensation (CNC). Son principe est de condenser du butan-1-ol sur les particules afin d'augmenter artificiellement leur taille et de les rendre ainsi détectables par un simple compteur optique.

La majorité des particules comptées en sortie du DMA comportent une charge élémentaire unique mais une plus petite proportion comporte deux charges ou plus. Ce phénomène, communément appelé « charge multiple » est pris en compte dans le calcul de la concentration en nombre puisque l'aérosol a préalablement été placé dans un équilibre électrique connu et maîtrisé. Les proportions des particules chargées est donc connu. Il est donc possible de retrouver le nombre de particules totales en amont du DMA.

A la fin du comptage, le SMPS passe à une autre classe. Chaque classe est comptée successivement. Ainsi, la distribution granulométrique est construite au fur et à mesure du comptage des 44 classes pour une mesure complète. Le temps pour balayer l'ensemble du spectre granulométrique est de l'ordre de 7 min.

3.3. Résultats

3.3.1. Comparaison granulométrie pilote et terrain

Travailler sur un banc permet de pouvoir mettre en œuvre un appareillage beaucoup plus important et précis que celui que l'on peut emmener sur le terrain. Cependant, il est impératif que l'aérosol généré par le banc soit similaire à ce qui est observé sur le terrain. Nos premières mesures ont donc consisté à vérifier la granulométrie issue du banc. Les mesures effectuées sur le terrain et sur le banc ont été réalisées avec le même appareil ELPI (Figure 3.10).

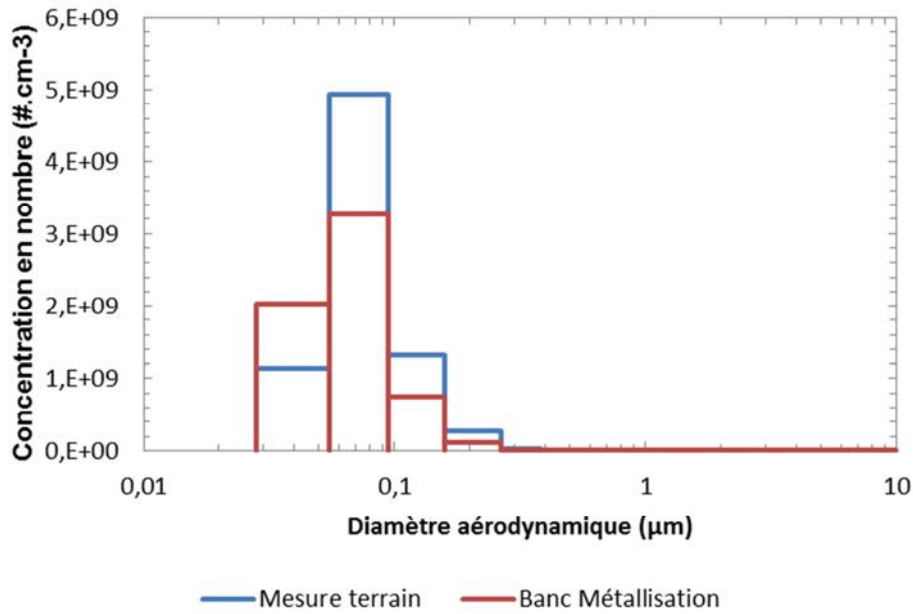


Figure 3.10 : Comparaison des distributions en nombre des fumées de métallisation sur le terrain et sur le banc d'essais « Métallisation ». Piquage aval cabine métallisation et amont dépoussiéreur, dilution 1000, partie micronique coupée par un impacteur. Masse volumique supposée : 5724 kg.m^{-3}

Les distributions ELPI ne sont pas identiques mais restent dans le même ordre de grandeur. Les résultats obtenus sur notre banc d'essais devraient donc être extrapolables au terrain.

3.3.2. Distribution granulométrique

La distribution en masse des fumées de métallisation selon leur diamètre aérodynamique a été déterminée en utilisant les deux impacteurs en cascade Marple Andersen 298 et DLPI. Ces distributions sont présentées Figure 3.11 et Figure 3.12. Le dernier plateau du Marple (inférieur $0,5 \mu\text{m}$) est un plateau terminal.

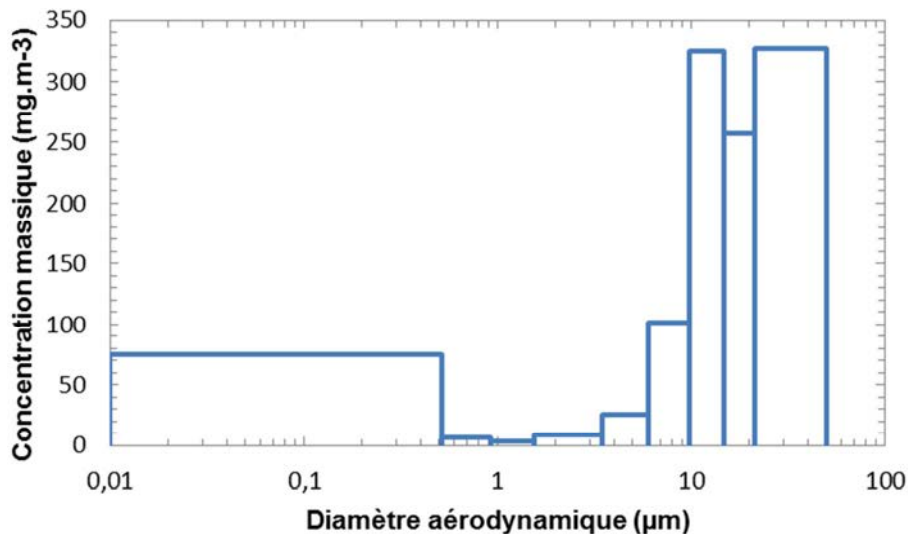


Figure 3.11 : Distribution granulométrique en masse de l'aérosol Zn/Al par impacteur Marple Andersen 298

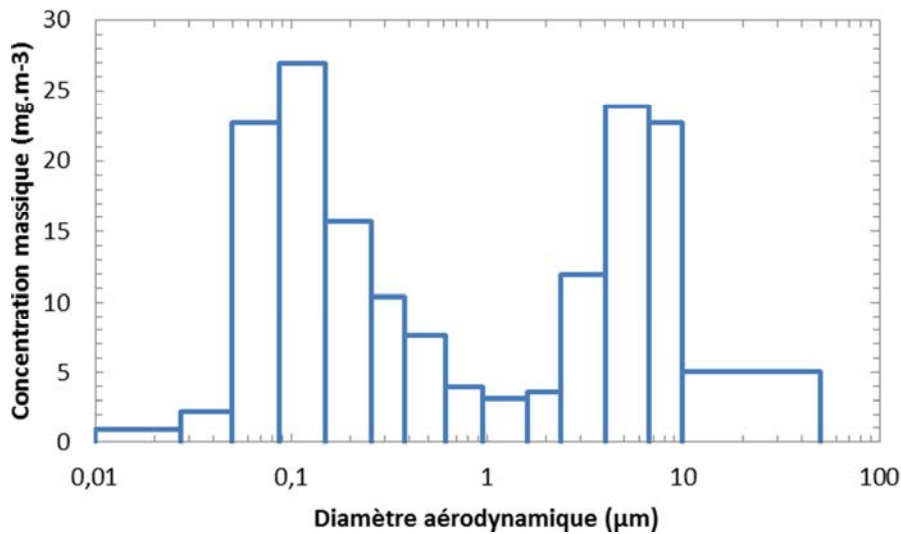


Figure 3.12 : Distribution granulométrique en masse de l'aérosol Zn/Al par impacteur DLPI.

La granulométrie obtenue par DLPI est plus fine que celle obtenue avec le Marple Andersen 298. Ces deux figures sont cohérentes avec les mesures globales effectuées sur filtre à savoir une concentration globale moyenne de 170 mg.m^{-3} . Elles s'accordent pour mettre en exergue deux populations distinctes de particules : une fine et une plus grossière de l'ordre de plusieurs micromètres. La population la plus grossière correspond aux scories de la génération avec un diamètre aérodynamique médian en masse de $9 \mu\text{m}$ tandis que la plus fine correspond aux fumées submicroniques avec diamètre médian en masse de $0,13 \mu\text{m}$.

La population correspondant aux scories apparaît comme importante au niveau de la distribution en masse. Ceci est la conséquence de leur forte taille. Cependant, elles sont minoritaires par rapport à la population submicronique en concentration numérique.

Pour affiner nos mesures au niveau submicronique, nous utilisons le granulomètre SMPS. Le SMPS est équipé d'un impacteur à l'entrée de la colonne DMA qui permet d'éliminer la partie micronique des fumées supérieure à $1 \mu\text{m}$. Ainsi, nous obtenons une distribution de la seule fraction submicronique.

Le SMPS permet de mesurer la distribution en nombre et non plus en masse en fonction du diamètre de mobilité électrique. Cette mesure a nécessité une dilution d'un facteur 1000 réalisée à l'aide de deux diluteurs en série (Topas Dil 550 et Palas VKL10 diluant respectivement d'un facteur 100 et 10) en raison de la concentration importante générée en sortie de l'enceinte de métallisation. La fraction submicronique suit une distribution log-normale de diamètre géométrique 140 nm et d'écart-type géométrique $1,5$ (Figure 3.13).

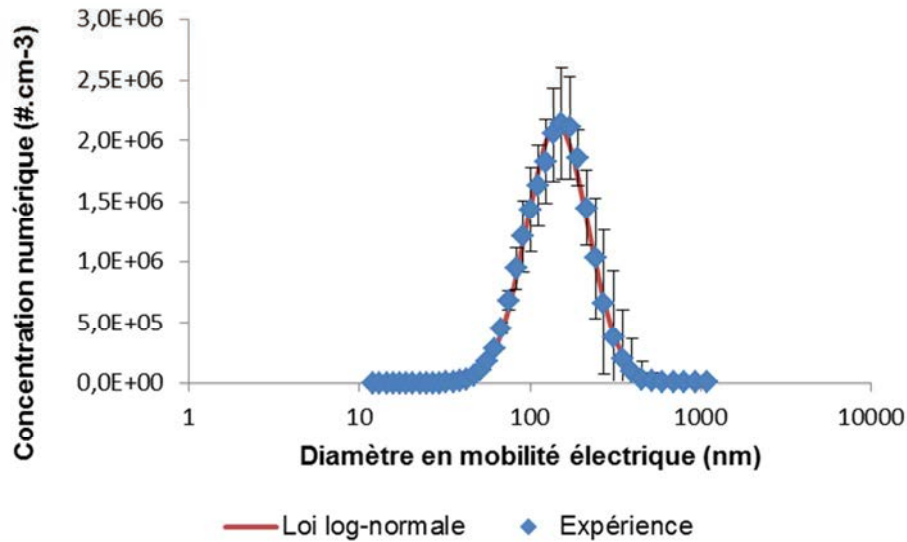


Figure 3.13 : Distribution granulométrique en nombre de la fraction submicronique de l'aérosol Zn/Al

Cette mesure confirme la présence de particules submicroniques dans les fumées de métallisation et apporte une information supplémentaire sur leur concentration numérique. Ainsi l'ordre de grandeur de la population fine est de 10^9 particules.cm⁻³.

3.3.3. Morphologie

3.3.3.1. MET

La connaissance des caractéristiques morphologiques des fumées peut s'avérer essentielle pour pouvoir établir un quelconque modèle de prédiction de perte de charge. L'aérosol a donc été échantillonné sur cassette et observé en microscopie électronique à transmission (MET). La Figure 3.14 présente des clichés pris au MET. Le fonctionnement du MET est expliqué en Annexe 5.

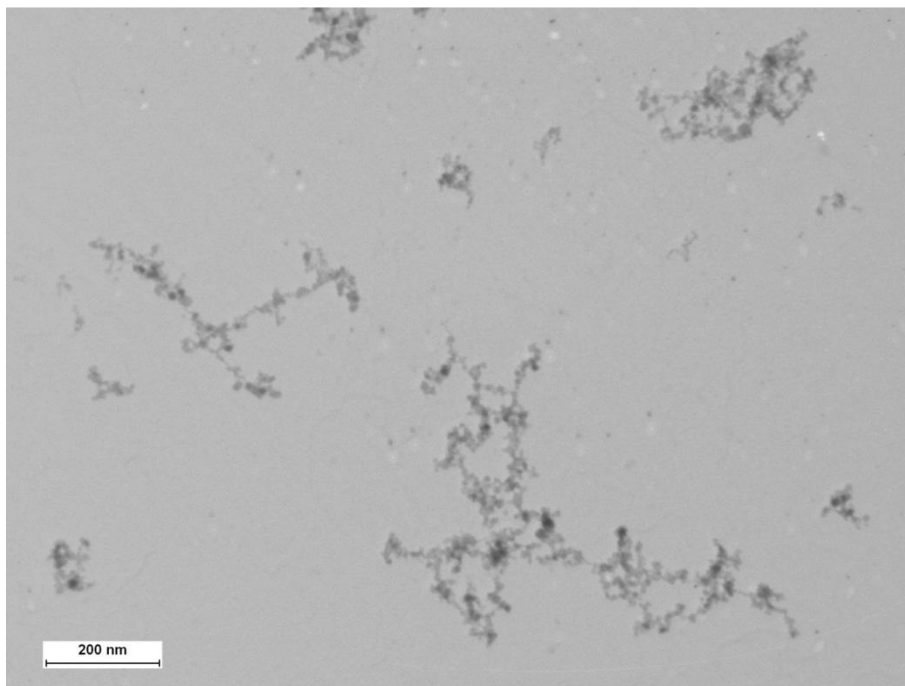
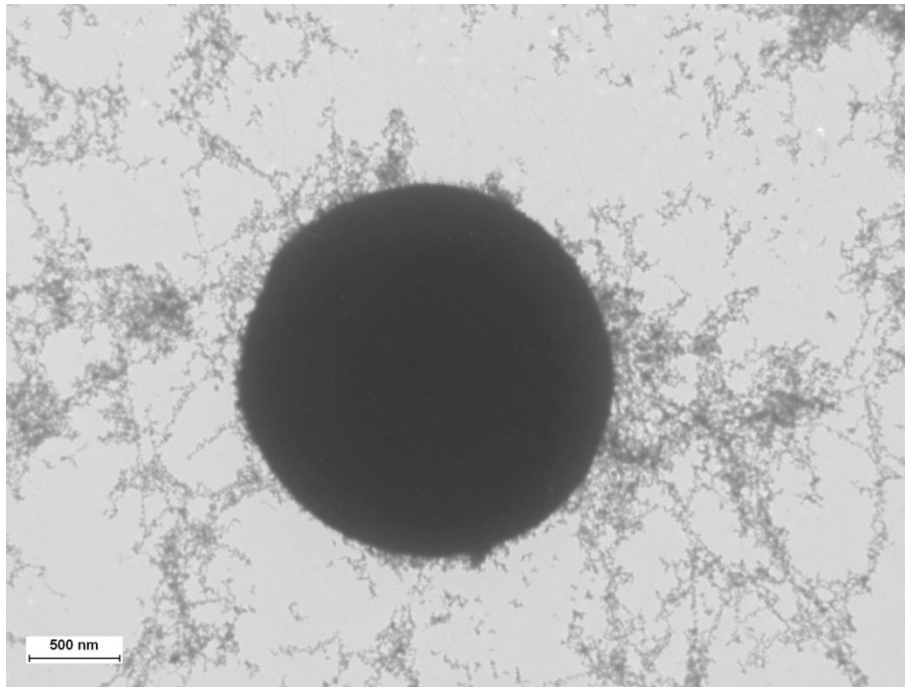


Figure 3.14 : Cliché de microscopie électronique à transmission des particules ultrafines contenues dans les fumées de métallisation réalisé à partir de la conduite de prélèvement.

Les clichés au microscope électronique à transmission confirment la distribution bimodale des fumées de métallisation vue précédemment. Par ailleurs, il apparaît que la population submicronique est composée d'agglomérats relativement ouverts et structurés par des particules dites primaires. Une analyse plus approfondie révèle des tailles d'agglomérats moyens de 150 à 600 nm. La distribution de taille des particules primaires, établie sur 100

clichés, suit une loi log-normale de diamètre géométrique en nombre 8 nm et d'écart-type géométrique 1,2 (Figure 3.15).

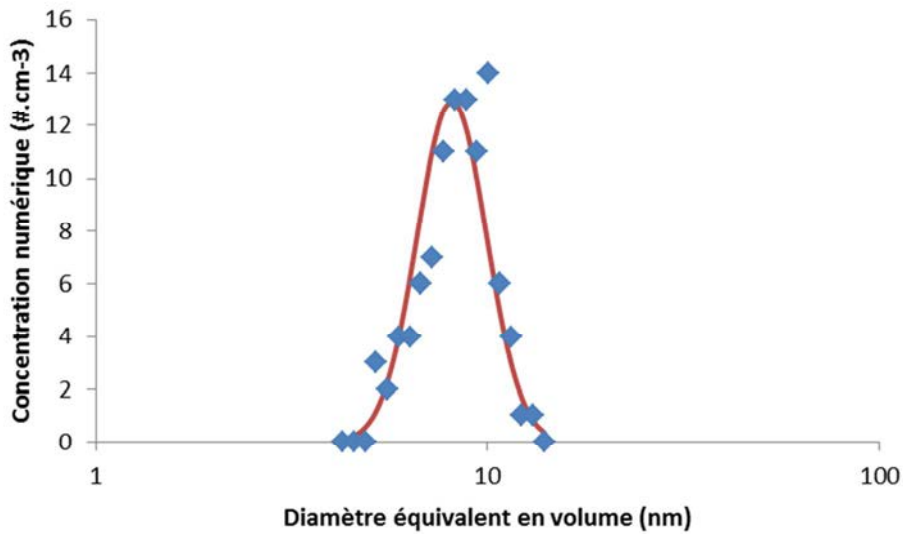


Figure 3.15 : Distribution des particules primaires issues des fumées de métallisation.

Un des objectifs de cette étude concerne la prédiction de la perte de charge des médias filtrants au cours du colmatage. Il est, par conséquent, nécessaire de caractériser cette fraction submicronique en volume puisque les modèles de perte de charge se basent sur la distribution en volume et non en nombre.

Le passage d'une distribution log-normale en nombre à une distribution en volume s'effectue par la relation suivante (Hinds, 1999).

$$d_{g,ev} = d_{g,N} \exp\left(3 \ln^2(\sigma_g)\right) \quad (3.41)$$

avec $d_{g,ev}$ le diamètre géométrique de la distribution en volume et $d_{g,N}$ celui de la distribution en nombre. L'écart-type géométrique σ_g est conservé et vaut 1,2. La distribution des particules primaires en volume suit ainsi une loi log-normale de diamètre géométrique 9 nm et d'écart-type géométrique 1,2.

La taille nanométrique des particules primaires structurant l'agglomérat permet de qualifier la population submicronique des fumées d'aérosol nanostructuré. Cette structure confère une surface spécifique d'agglomérat plus importante de celle qu'aurait une particule sphérique de même diamètre que l'agglomérat.

3.3.3.2. Correction de la distribution SMPS

Lall et Friedlander (Lall & Friedlander, 2006) se sont intéressés à la charge d'un agglomérat et plus particulièrement à leur efficacité de charge. Ils montrent alors en reprenant les travaux de Wen (Wen et al., 1984a) sur la charge des particules fibreuses que l'efficacité de charge d'un agglomérat est supérieure à celle d'une sphère de même diamètre de mobilité électrique d_m . En effet, l'efficacité de charge η d'une particule se calcule selon :

$$\eta = \sqrt{\frac{K_E e^2}{\pi d k_B T} \exp\left(-\frac{K_E q e^2}{d k_B T}\right)} \quad (3.42)$$

avec d , le diamètre de charge de la particule, q , le nombre de charges élémentaires, k_B , la constante de Boltzmann ($1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$), K_E , une constante fonction de la constante diélectrique du vide ϵ_0 ($8,854 \cdot 10^{-12} \text{ F.m}^{-1}$).

$$K_E = \frac{1}{4 \pi \epsilon_0} = 9,0 \cdot 10^9 \text{ N.m}^2.\text{C}^{-2} \quad (3.43)$$

La relation (3.42) appliquée à l'ensemble des diamètres permet de retrouver l'équilibre de Boltzmann (Hinds, 1999). Le diamètre d dépend de la nature de la particule. En effet, pour une sphère, il s'agit du diamètre de mobilité d_m .

$$d = d_m \text{ pour une sphère} \quad (3.44)$$

Dans le cas d'un agglomérat, Wen (Wen et al., 1984b) définit un diamètre de charge équivalent d_{qe} à utiliser à la place de d_m . d_{qe} dépend du diamètre de la particule primaire d_{pp} constituant l'agglomérat ainsi que le nombre de particules primaires N_{pp} . Ainsi,

$$d = d_{qe} = \frac{d_{pp} N_{pp}}{\ln(2 N_{pp})} \text{ pour un agglomérat} \quad (3.45)$$

Cette relation est valable pour N_{pp} supérieur à 10.

Lall et Friedlander (Lall & Friedlander, 2006) montrent alors que distribution en nombre en fonction du diamètre de mobilité électrique, tel que le SMPS, réalisée selon l'hypothèse de particules sphériques doit être corrigée pour tenir compte de l'agglomération. Cette correction correspond au rapport des efficacités de charges entre la sphère et l'agglomérat. La distribution en nombre des agglomérats $N_{agg}(d_m)$ s'écrit :

$$N_{agg}(d_m) = N_{sph}(d_m) \frac{\eta_{sph}}{\eta_{agg}} \quad (3.46)$$

avec $N_{\text{sph}}(d_m)$, la distribution en nombre en fonction du diamètre électrique basée sur l'hypothèse de sphères, η_{sph} et η_{agg} les efficacités de charges respectives d'une sphère et d'un agglomérat.

Ainsi, en appliquant cette correction, la nouvelle distribution du SMPS suit une distribution log-normale de diamètre géométrique 137 nm et d'écart-type géométrique 1,5 (Figure 3.16).

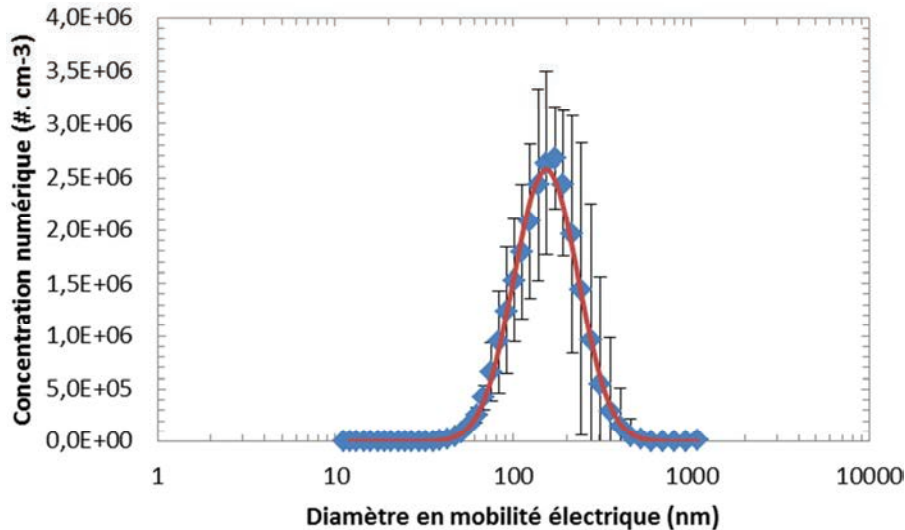


Figure 3.16 : Distribution granulométrique SMPS corrigée selon Lall et Friedlander

3.3.3.3. Composition chimique

Les analyses chimiques obtenues via le système de microanalyse EDS (Energy Dispersive Spectrometry) associé au MET semblent démontrer que les fumées sont exclusivement composées de particules contenant du zinc et de l'aluminium. La composition chimique varie peu : entre 85 et 95% en masse de Zn. Nous retrouvons donc effectivement la répartition massique des fils utilisés pour la génération. Nous utiliserons par la suite le rapport massique Zn/Al de 85/15.

Soulignons qu'il existe une période de plusieurs heures entre la collecte des particules sur cassette et leur analyse chimique au MET. Toutefois, compte tenu des cinétiques d'oxydation lente de ces éléments, on peut supposer que cette durée n'influence pas la nature oxydée ou métallique des particules produites par la génération. De plus, l'oxydation du filtre après une période de plusieurs jours à l'air libre est marquée par le passage de la couleur du dépôt du marron clair au gris clair.

3.3 - Résultats

Tableau 3.4 : Composition chimique des fumées de métallisation par microanalyse EDS

Particule	Aluminium	Zinc	Total
Degré d'oxydation par EDS	Al	Zn	
Répartition massique (%)	15	85	100
Masse volumique (kg.m ⁻³)	2700	7134	5724
Diamètre géométrique des particules primaires (nm)			9,2
Ecart-type géométrique			1,22

Compte tenu la répartition massique obtenue par EDS, nous pouvons estimer une masse volumique particulaire globale ρ_p en supposant des particules primaires non poreuses.

Le bilan de masse sur une particule s'écrit :

$$m_p = m_{Al} + m_{Zn} \quad (3.47)$$

Le rapport masse sur volume vaut alors

$$\frac{m_p}{V_p} = \frac{m_{Al} + m_{Zn}}{V_p} \quad (3.48)$$

En posant, X le rapport massique entre le zinc et l'aluminium, il vient,

$$\rho_p = \frac{1 + X}{\frac{1}{\rho_{Al}} + \frac{X}{\rho_{Zn}}} \quad (3.49)$$

L'application numérique de cette dernière équation donne

$$\rho_p = 5724 \text{ kg.m}^{-3}$$

Un échantillon prélevé dans la trémie du cyclone après plusieurs mois de fonctionnement montre des particules oxydées et partiellement cristallisées. Une détermination de la masse volumique par un pycnomètre donne la valeur de $6,16.10^3 \text{ kg.m}^{-3}$. Cette valeur est cohérente avec notre calcul théorique au vue de la nature oxydée des particules.

3.3.4. Détermination de la dimension fractale et de la masse volumique effective

3.3.4.1. Description du banc

Le banc d'essais (Figure 3.17) met en œuvre les deux appareils de mesure en série décrits précédemment : le DMA et l'ELPI. Le but est de caractériser les agrégats de particules nanométriques contenus dans un aérosol (fumées de métallisation, etc.), notamment la masse volumique effective ρ_e (équation (3.30)) puis la dimension fractale D_f (équation (3.32)). L'avantage de la technique DMA-ELPI par rapport aux clichés MET est le temps. L'analyse des clichés MET est très coûteuse en temps et par ailleurs présente l'inconvénient d'une mesure en 2D.

Avant de pouvoir être utilisé sur le banc « Métallisation », un banc annexe est mis place pour tester et valider cette technique. Les aérosols de validation sont produits soit par le générateur LASKIN pour l'huile DEHS (Di-Éthyl-Hexyl-Sébaçate) soit par le générateur Palas GFG-1000 pour l'aérosol de carbone².

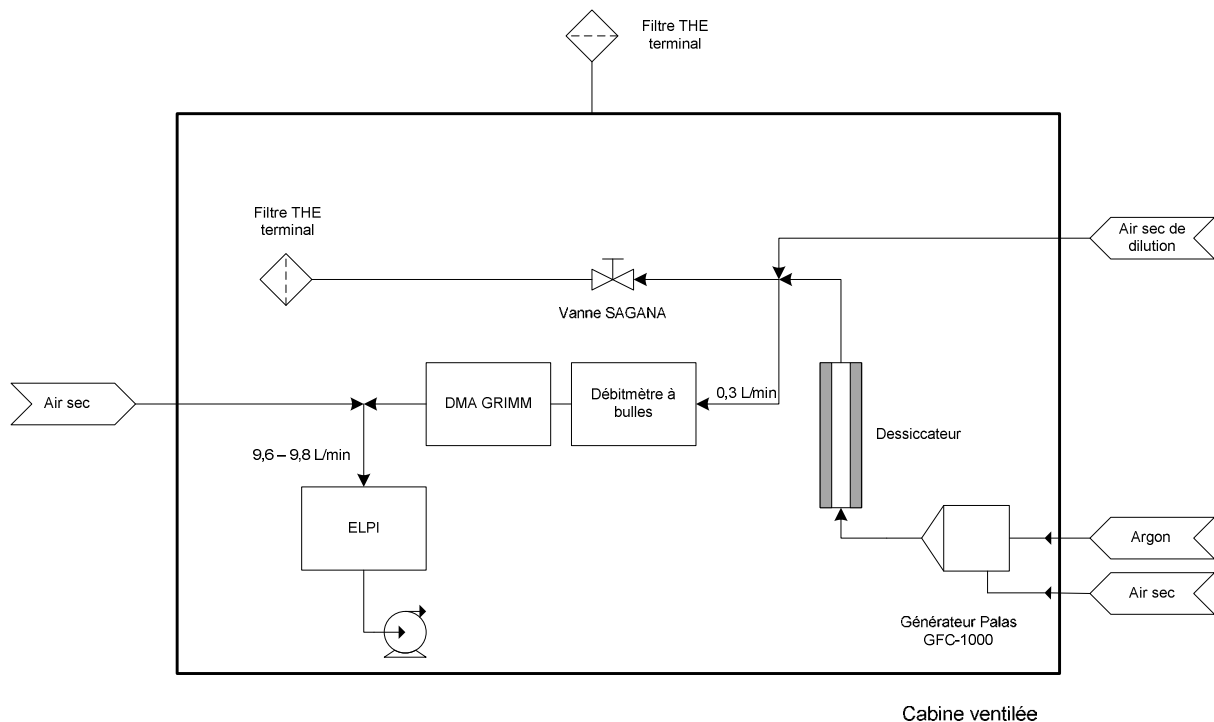


Figure 3.17 : Schéma de principe du tandem DMA-ELPI dans le cas de l'aérosol de carbone

L'aérosol polydispersé passe au travers d'un dessiccateur afin d'éliminer d'éventuelles traces d'humidité puis dans la canalisation principale où il peut être au besoin dilué par de l'air sec. En sortie de cette canalisation, l'aérosol passe dans le DMA. Ce dernier permet de

² Les générateurs sont présentés en Annexe 6.

sélectionner les particules de l'aérosol de diamètre de mobilité électrique d_m . L'aérosol sortant du DMA sera donc monodispersé (en termes de mobilité électrique) et de diamètre d_m . Le débit excédent en sortie de canalisation principale est extrait par un ventilateur avant d'être filtré et rejeté à l'extérieur du bâtiment. En sortie du DMA, l'aérosol est dilué avant d'être dirigé vers l'ELPI. En effet, les deux appareils n'ont pas le même débit de fonctionnement : 0,3 L/min pour le DMA et 9,5 L/min pour l'ELPI. Après dilution, l'aérosol rentre dans l'ELPI lequel fournit alors la distribution en courant de l'aérosol selon le diamètre aérodynamique. Ainsi, la combinaison en série du DMA et l'ELPI va nous permettre d'obtenir la masse volumique effective de l'aérosol pour un diamètre de mobilité donné.

3.3.4.2. Modélisation

Le calcul de la masse volumique effective ρ_e (équation (3.30)) fait appel au diamètre de mobilité électrique d_m . Ce diamètre définit la mobilité électrique d'une particule ne portant qu'une seule charge. Or, les particules sortant du DMA portent une et plusieurs charges. Les particules portant plusieurs charges possèdent la même mobilité électrique que les particules monochargées mais pas le même diamètre de mobilité électrique. Les particules chargées sont comptabilisées par l'ELPI comme les particules monochargées. Ainsi, le signal mesuré à l'ELPI correspond à la somme des contributions des populations monochargée et multichargées. Il est donc nécessaire de séparer dans la distribution expérimentale fournie par l'ELPI les particules monochargées des particules multichargées. C'est l'objectif principal de la modélisation que nous avons mis en place ici. Il s'agit de calculer l'état de l'aérosol initial au cours de chacune des étapes du tandem DMA-ELPI pour être en mesure de séparer les particules monochargées des particules multichargées dans le signal final de l'ELPI.

La partie modélisation se décompose en quatre grandes étapes indiquées sur la Figure 3.18. Pour illustrer le principe de ces étapes, nous utiliserons tout au long de cette partie l'exemple d'un aérosol de DEHS possédant une distribution granulométrique log-normale centrée sur 200 nm et d'écart-type géométrique 1,5. La masse volumique de cet aérosol modèle sera de 912 kg.m^{-3} , son facteur de forme de 1 (correspondant à des particules sphériques) et sa concentration totale égale à $10^7 \text{ particules.cm}^{-3}$. Le DMA Grimm utilisé ici est équipé d'une électrode positive. Il ne sélectionne que les particules négatives. Or les particules chargées négativement à la sortie du DMA vont être chargées positivement par la suite dans le chargeur de l'ELPI.

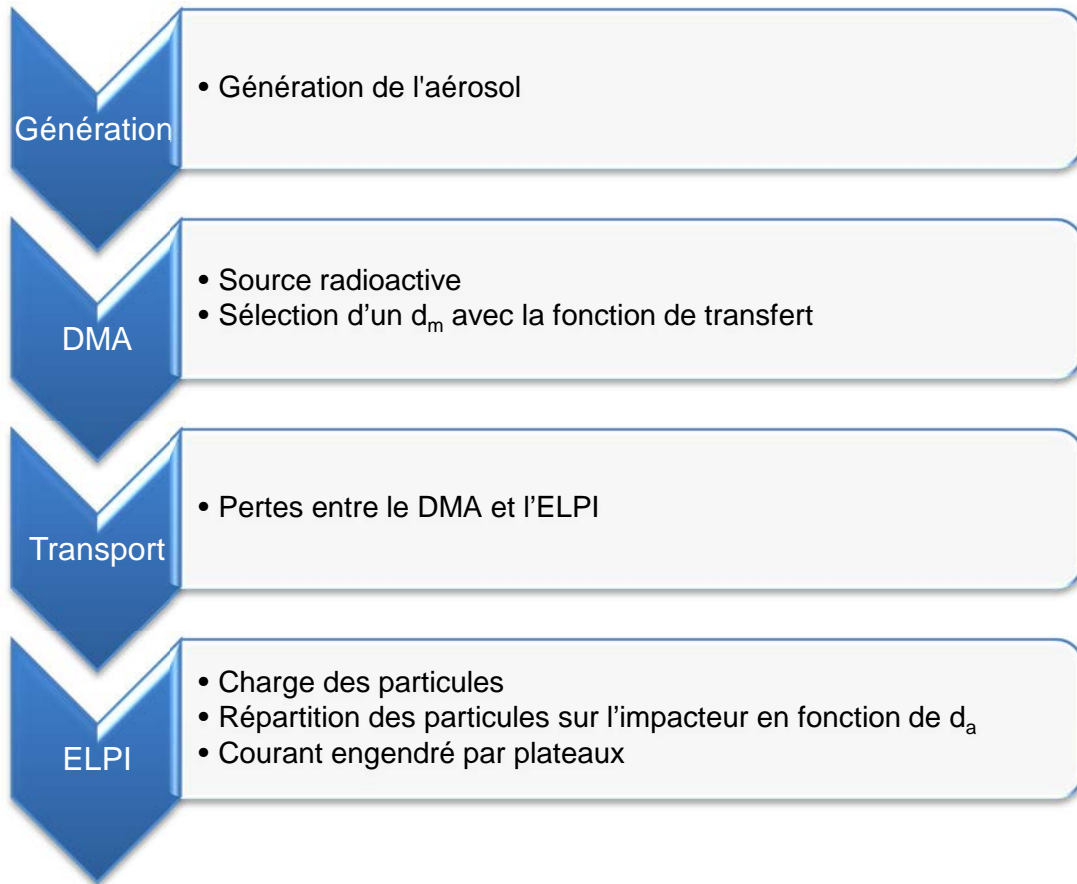


Figure 3.18 : Schéma de principe de la modélisation

3.3.4.2.1 Etape 1 : Génération de l'aérosol

L'aérosol modèle est généré virtuellement (Figure 3.19) ce qui permet d'introduire une distribution granulométrique idéale, ici une loi log-normale car c'est la distribution la plus courante des aérosols (Renoux & Boulaud, 1998). Le but de la modélisation étant de calculer les proportions de particules monochargées et multichargées en sortie du DMA arrivant dans l'ELPI (les diamètres utilisés par défaut sont ceux mesurés par le SMPS). L'étape de génération définit toutes les caractéristiques connues de l'aérosol : masse volumique, facteur de forme, etc. ; c'est-à-dire toutes les données utilisées dans les calculs et notamment dans la conversion du diamètre de mobilité électrique d_m vers le diamètre aérodynamique d_a .

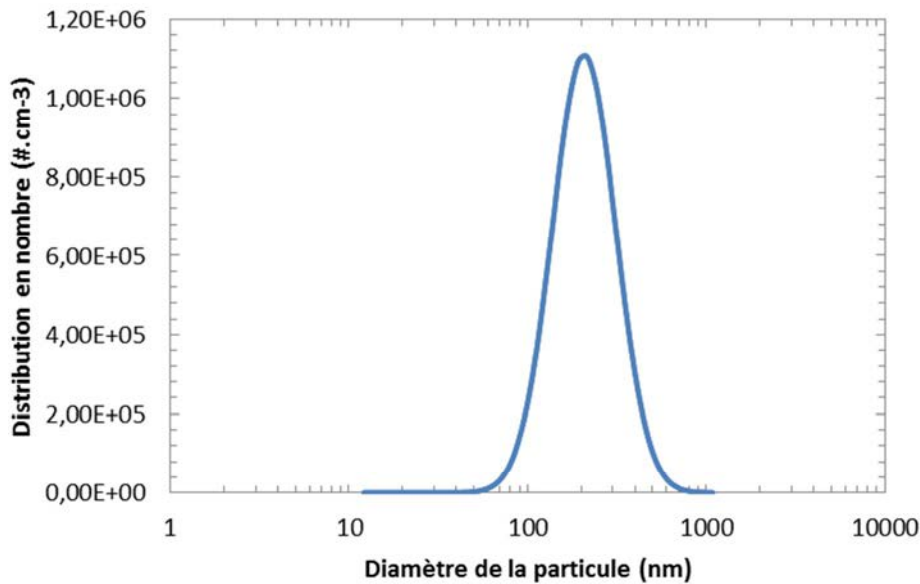


Figure 3.19 : Aérosol généré suivant une loi log-normale (GSM = 200 nm, GSD = 1,5) - GSM : Geometric Standard Mean – GSD : Geometric Standard Deviation.

3.3.4.2.2 Etape 2 : Mesure du diamètre de mobilité électrique dans le DMA

Après passage dans la source radioactive, l'aérosol atteint un état de charge stationnaire appelé équilibre de Boltzmann. Cependant, nous avons vu que cet état de charge n'est plus tout à fait exact pour les particules dont le diamètre est inférieur à 100 nm, l'équilibre de Boltzmann ne sera donc employé que pour les particules supérieures à 91 nm ; pour les autres particules, l'équilibre de Wiedensohler (Wiedensohler, 1988) sera utilisé. La Figure 3.20 représente la proportion des particules mono et multichargées (de 2 à 5 charges positives ou négatives) en fonction de leur taille. A noter que l'absence de particules chargées plus de 2 fois (positivement ou négativement) en dessous de 91 nm est due à l'approximation de Wiedensohler qui ne considère que les particules de -2 à +2 charges.

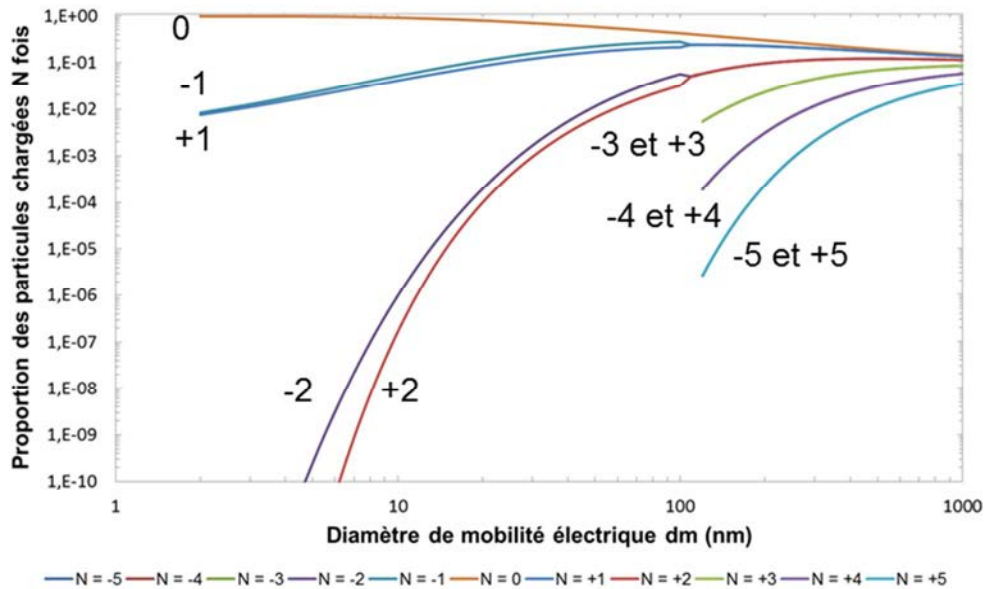


Figure 3.20 : Etat de charge de l'aérosol à la sortie de la source radioactive

Ainsi, en sortie de la source radioactive, l'aérosol est composée par des particules chargées de -5 charges élémentaires à +5 charges élémentaires entre autres. L'état de charge de l'aérosol est donné par la Figure 3.21 :

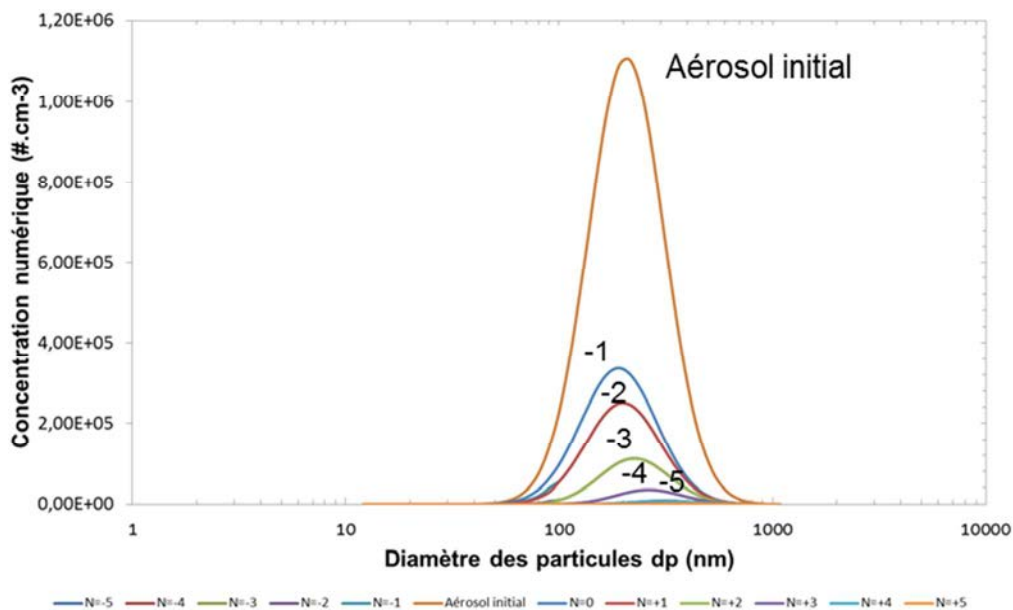


Figure 3.21 : Distribution en nombre en sortie de la source radioactive

L'aérosol passe ensuite dans la colonne du DMA dans laquelle les particules correspondant à la mobilité Z_0 seront sélectionnées selon la fonction de transfert du DMA. La fonction de transfert du DMA, c'est-à-dire la fraction de particules de mobilité Z_0 extraite de la colonne dépend du diamètre sélectionné. Cette fonction est déterminée à partir du logiciel Grimm SMPS fourni avec le granulomètre.

3.3 - Résultats

Là encore, pour des raisons de simplicité d'utilisation, c'est le diamètre d_{m0} qui est rentré directement dans la modélisation. La mobilité Z_0 associée est calculée automatiquement. Dans la suite de cet exemple, nous sélectionnons des particules de diamètre de mobilité $d_m = 191,3$ nm. La fonction de transfert du DMA associée en fonction de la mobilité Z et du diamètre d_m est représentée sur la Figure 3.22. Elle est modélisée dans notre cas par une fonction triangle.

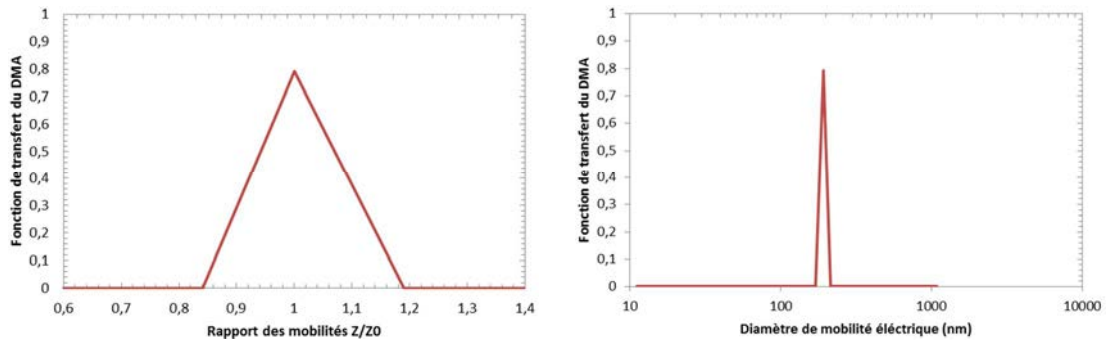


Figure 3.22 : Fonctions de transfert pour $d_{m0} = 191,3$ nm

La composition de l'aérosol en sortie du DMA est donnée Figure 3.23 :

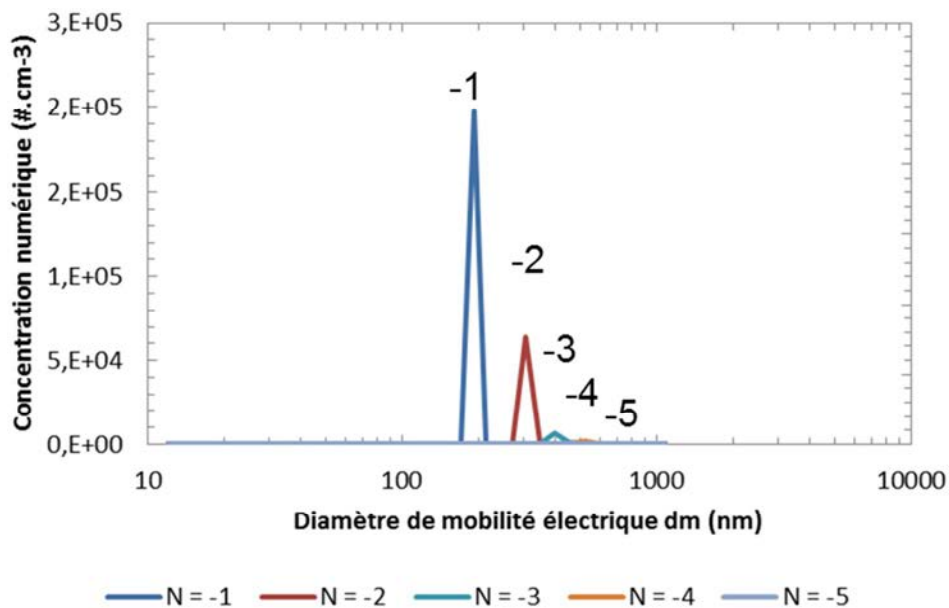


Figure 3.23 : Aérosol en sortie de la colonne DMA. N représente le nombre de charges élémentaires

La fonction de transfert dépend des caractéristiques intrinsèques du DMA et des débits circulants. Les débits utilisés dans la modélisation sont modifiables et sont fixés par défaut à 0,3 L/min pour le débit d'entrée et de 3 L.min⁻¹ pour le débit d'air propre (Sheath air). Ces valeurs correspondent aux valeurs cibles régulées par le SMPS.

3.3.4.2.3 Etape 3 : Transport entre le DMA et l'ELPI

Certaines pertes sont possibles dans les canalisations entre la sortie du DMA et l'ELPI. Les mécanismes de dépôt (sédimentation, diffusion) sont pris en compte lors du passage entre les deux appareils (Figure 3.24). De plus, les tubes reliant les deux granulomètres sont antistatiques afin de limiter au maximum le dépôt par charge électrique. Les relations utilisées pour calculer les pertes liées au transport sont données en Annexe 3.

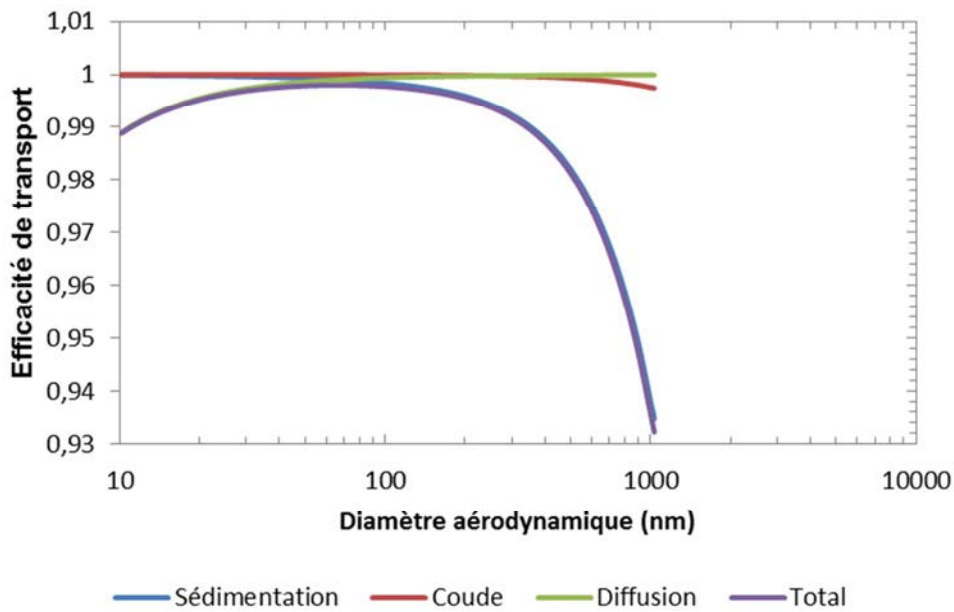


Figure 3.24 : Efficacité de transport de l'aérosol entre le DMA et l'ELPI

Ce graphe met en évidence que les seules pertes par transport en dessous de 100 nm sont dues au mécanisme de diffusion.

3.3.4.2.4 Etape 4 : Mesure du diamètre de mobilité aérodynamique dans l'ELPI

L'aérosol arrive en entrée de l'ELPI où les particules sont chargées positivement par décharge corona avant de s'impacter dans la partie impacteur.

La charge moyenne acquise par les particules dans le chargeur dépend de leur diamètre électrique d_m et est calculée à partir des modèles fournis par le fabricant. A ce stade, nous pouvons calculer le courant engendré par chacune des particules selon leur nombre de charges de surface. La Figure 3.25 illustre l'intensité du courant porté par les différentes populations en sortie de DMA et la loi de charge associée.

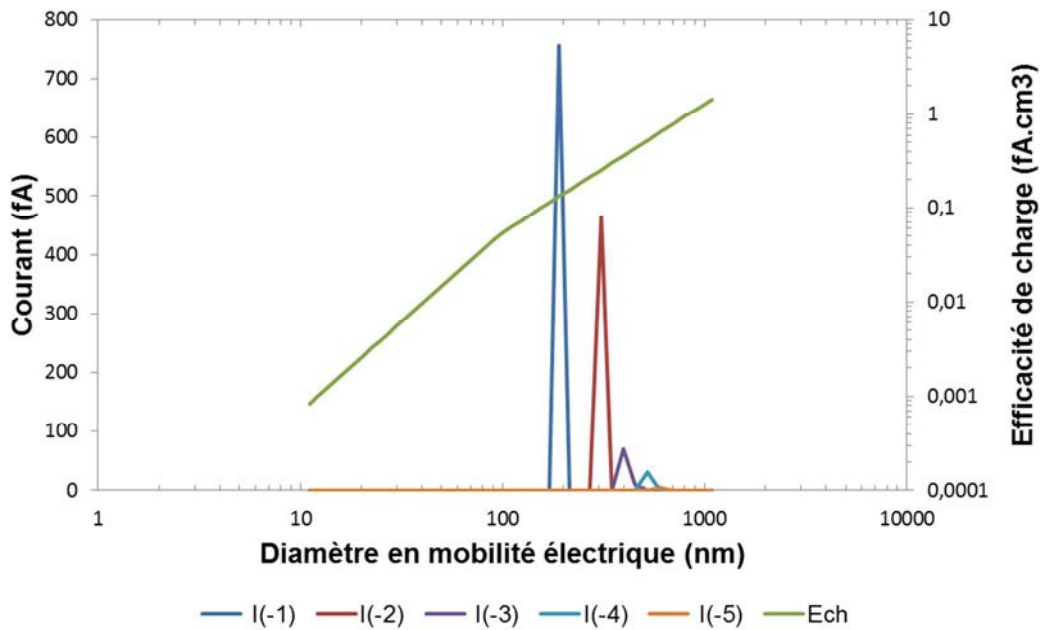
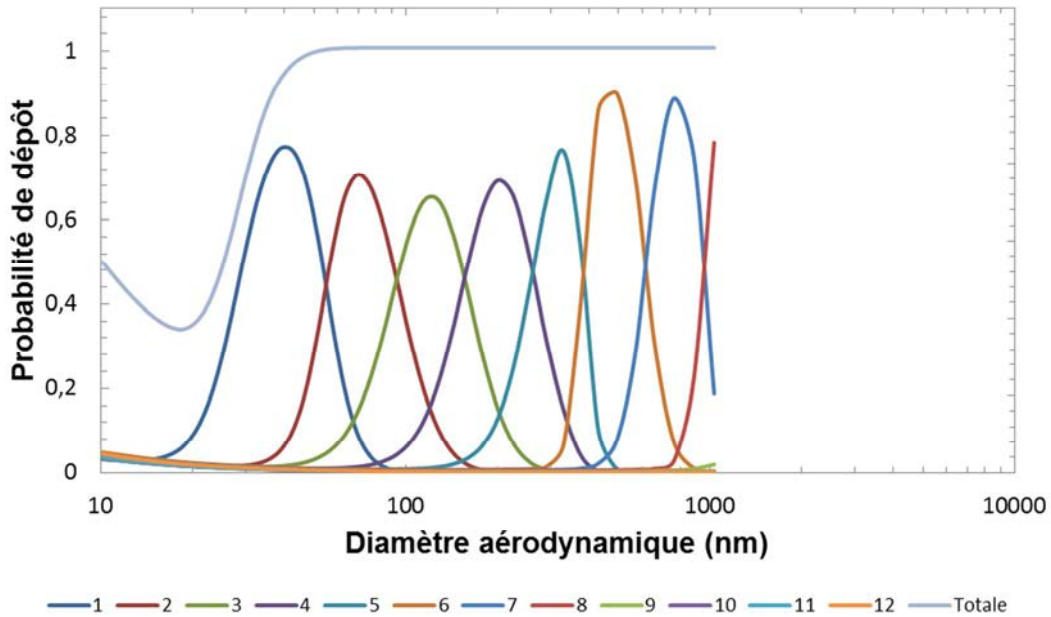


Figure 3.25 : Charge de l'aérosol en entrée de l'ELPI pour les différentes populations de particules portant $-N$ charges. E_{ch} représente l'efficacité de charge après passage du corona de l'ELPI ($fA.cm^3$), $I(-N)$, le courant porté par la population portant $-N$ charges à la sortie du DMA après passage du corona de l'ELPI

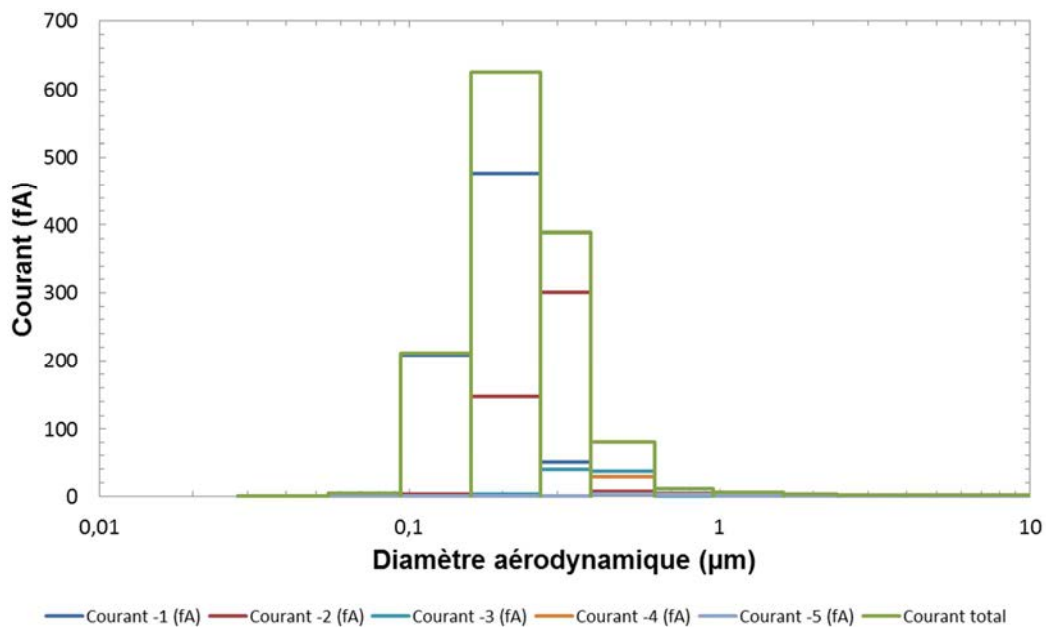
Bien que les particules de la population 2 (chargées -2 à la sortie du DMA) soient 2,3 fois moins nombreuses que celles de la population monochargée (Figure 3.23), nous remarquons qu'elles représentent un courant de 470 fA soit 61% du courant de la population monochargée. Ceci est dû au fait que les particules de la population 2 ont un diamètre plus important que celles de la population monochargée. Elles sont donc susceptibles de porter davantage de charges que celles de la population 1. Le courant généré par la population 2 est donc loin d'être négligeable.

Une fois chargées, les particules pénètrent dans la partie impacteur en cascade de l'ELPI. La collecte des particules sur les différents plateaux se fait suivant les mécanismes suivants : impaction, diffusion et électrique. Les efficacités de collecte de chaque plateau et pour chaque diamètre nous permettent de calculer la fonction de probabilité de dépôt pour chaque plateau (Figure 3.26).

L'efficacité globale des plateaux dépend du diamètre de mobilité électrique d_m et du diamètre aérodynamique d_a . Les fonctions d'efficacité de collecte (et donc les fonctions de probabilité de dépôt) sont donc dépendantes des caractéristiques de l'aérosol et plus particulièrement de sa masse volumique.



Nous remarquons que l'extrémité gauche des courbes d'efficacité remonte en dessous de 50 nm. Cette augmentation d'efficacité de collecte est due à l'effet de la force image. Une fois le calcul de répartition des particules terminé, le courant des particules est sommé plateau par plateau et permet d'obtenir l'histogramme final de l'ELPI (Figure 3.27).



La courbe verte correspond au courant engendré par les particules sans distinction de population. Cette courbe correspond à la réponse théorique de l'ELPI. Les courbes de

couleur correspondent au courant créé par chaque population. La courbe que nous devons utiliser pour le calcul de la masse volumique ρ_e est celle de la population monochargée (courbe bleue). Nous remarquons que dans notre exemple d'aérosol, le plateau 3 (plateau entre 0,094 et 0,158 μm) contient quasiment exclusivement des particules de la population 1.

Une fois la population monochargée extraite, il convient de trouver le diamètre aérodynamique le plus représentatif du signal. Trois diamètres caractéristiques sont testés ici : mode, médian et géométrique

Tableau 3.5 : Calcul de la masse volumique effective en fonction du diamètre aérodynamique caractéristique

Diamètre caractéristique	Valeur (nm)	Masse volumique effective ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)
Mode	204	1100
Médian	194	1027
Géométrique	189	983

Le calcul pour le mode est donné par l'équation suivante

$$\rho_e(\mathbf{191, 3nm}) = \frac{Cu(d_a)d_a^2}{Cu(d_m)d_m^2} \rho_0 = \frac{1,85 (0.2042 \cdot 10^{-6})^2}{1,92 (191,3 \cdot 10^{-9})^2} 1000 = \mathbf{1100\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}} \quad (3.50)$$

Nous observons que si nous utilisons le mode de la première population, nous obtenons, sans traitement de données supplémentaire tel que l'inversion de données, une masse volumique effective relativement proche de la réalité (équation (3.50)). Le Tableau 3.5 met en évidence deux faits. D'une part l'importance cruciale du diamètre caractéristique retenu (mode, médian, géométrique), c'est-à-dire la méthode de détermination du diamètre aérodynamique d_a . D'autre part, nous avons utilisé les caractéristiques réelles de l'aérosol pour établir la granulométrie finale de l'ELPI. Or, la masse volumique récupérée à partir de ce graphe est différente de celle de $912 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ injectée préalablement. Ceci est dû à la faible résolution de l'ELPI. En effet, bien que la masse volumique des sphères d'huile pleines et unitaires soit imposée à $912 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ dans tous les calculs et que la distribution dans l'impacteur soit parfaitement précise et maîtrisée, la largeur de la classe du plateau implique une erreur dans le calcul de d_a . Une amélioration de la résolution du résultat est possible par la technique d'inversions de données. Il s'agit d'un traitement mathématique permettant d'augmenter la résolution initiale d'un appareil (Bau & Witschger, 2011).

3.3.4.3. Validation du banc

3.3.4.3.1 Présentation du banc

Avant d'être en mesure de caractériser les agrégats ou agglomérats de fumées de métallisation, le tandem DMA-ELPI doit d'abord être validé sur des aérosols connus. Les

aérosols utilisés sont l'huile DEHS (Di-Éthyl-Hexyl-Sébaçate) et les agrégats de carbone. Les caractéristiques des aérosols tests sont présentées dans le Tableau 3.6.

Tableau 3.6 : Caractéristiques principales des aérosols tests

Nature des particules	Forme	Facteur de forme dynamique χ	Masse volumique ρ_p (kg.m ⁻³)	Générateur
DEHS	Sphère unitaire	1	912	LASKIN à 900 mbar
C	agrégat	X	2200	GFG-1000 à 270 Hz

La mise en place de ce tandem pose plusieurs difficultés expérimentales :

- Régulation du débit :

La colonne DMA Grimm ne possède pas de pompe interne, le débit étant géré et régulé par la pompe interne au CNC. C'est la raison pour laquelle, il nous incombe de réguler manuellement le débit circulant dans le DMA. Cette opération est réalisée en plaçant la pompe de l'ELPI en dépression afin d'acheminer les 0,3 L/min nécessaires. Cette opération est d'autant plus délicate que la fonction de transfert du DMA montre qu'une variation de 10% du débit circulant dans la colonne aura pour effet de sélectionner une mobilité électrique de (Z+10 %). Le débit est vérifié en début et fin de chaque point expérimental soit par la perte de charge du diaphragme soit par débitmètre à bulles.

- Concentration de l'aérosol :

L'aérosol doit être suffisamment concentré car la concentration initiale de l'aérosol diminue fortement entre l'entrée du DMA et le signal à l'ELPI. En effet, le DMA ne sélectionne au maximum que 88 % de l'aérosol correspondant à la mobilité Z sélectionnée. De surcroît, l'aérosol est ensuite dilué pour atteindre le débit de 9,5 L.min⁻¹ nécessaire au bon fonctionnement de l'ELPI. Enfin, l'aérosol doit être d'autant plus concentré que les particules analysées sont de petite taille. Ceci est dû au fait que la surface développée par une petite particule est plus faible que celle d'une de taille plus importante. Une particule de petite taille peut donc porter moins de charges à sa surface qu'une grosse particule. C'est pourquoi, elle engendrera un courant plus faible lors de son impact sur le plateau d'impaction.

En revanche, l'aérosol ne peut être trop concentré en entrée du DMA pour deux raisons. La première concerne un problème de comptage. Le SMPS est prévu pour mesurer une distribution allant au maximum à 10⁷ part.cm⁻³ par canal (avec un risque d'agglomération des particules). Au-delà de cette limite, le compteur optique est saturé et ne peut plus du tout estimer la concentration numérique de l'aérosol.

La seconde raison est liée au temps et à la taille des particules. Le DMA est équipé d'un impacteur coupant à 1 µm aérodynamique afin de ne pas affecter les mesures faites au SMPS. Cependant, si les particules supérieures à ce diamètre sont trop nombreuses, elles seront dans un premier temps arrêtées par l'impacteur mais au fur et à mesure que l'impacteur va se saturer, l'orifice d'ouverture donnant sur la colonne va se boucher. Il en

résulte alors une chute brusque du débit circulant dans le DMA faussant alors toutes les mesures voir un arrêt de l'expérience.

3.3.4.3.2 Aérosol sphérique de DEHS

Le protocole opératoire pour déterminer l'évolution de la masse volumique effective ρ_e en fonction du diamètre de mobilité d_m est le suivant :

1. Sélection d'un d_m au DMA et obtention de la granulométrie ELPI en fonction du diamètre aérodynamique d_a .
2. Traitement du signal par la modélisation. Le signal théorique émis par le modèle est ajusté pour correspondre au signal expérimental. Cette convergence se fait selon le diamètre géométrique ou le diamètre médian des granulométries.
3. Extraction de la contribution de la population monochargée (appelée population 1 dans la modélisation).
4. Extraction éventuelle de la contribution des populations multichargées si le signal est suffisamment important pour dépasser le bruit de fond de l'ELPI (> 5 - 10 fA).
5. Inversion du courant porté par la population monochargée par le logiciel ELPVI. Ce traitement d'inversion permet de reconstruire la distribution de courant de l'ELPI, passant ainsi d'une résolution de 12 classes à 200 classes.
6. Déduction du diamètre aérodynamique associé au d_m . Le diamètre retenu peut se faire selon le diamètre géométrique ou médian de la granulométrie

A la fin de ce protocole, le diamètre de mobilité électrique est modifié et la procédure est répétée. La masse volumique effective est alors calculée par l'équation (3.30) décrite au paragraphe 3.1.6.2.

La Figure 3.28 donne les résultats de l'évolution de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique obtenus sur le DEHS. Deux paramètres ont été étudiés : le diamètre (médian ou géométrique) et le traitement des particules multichargées.

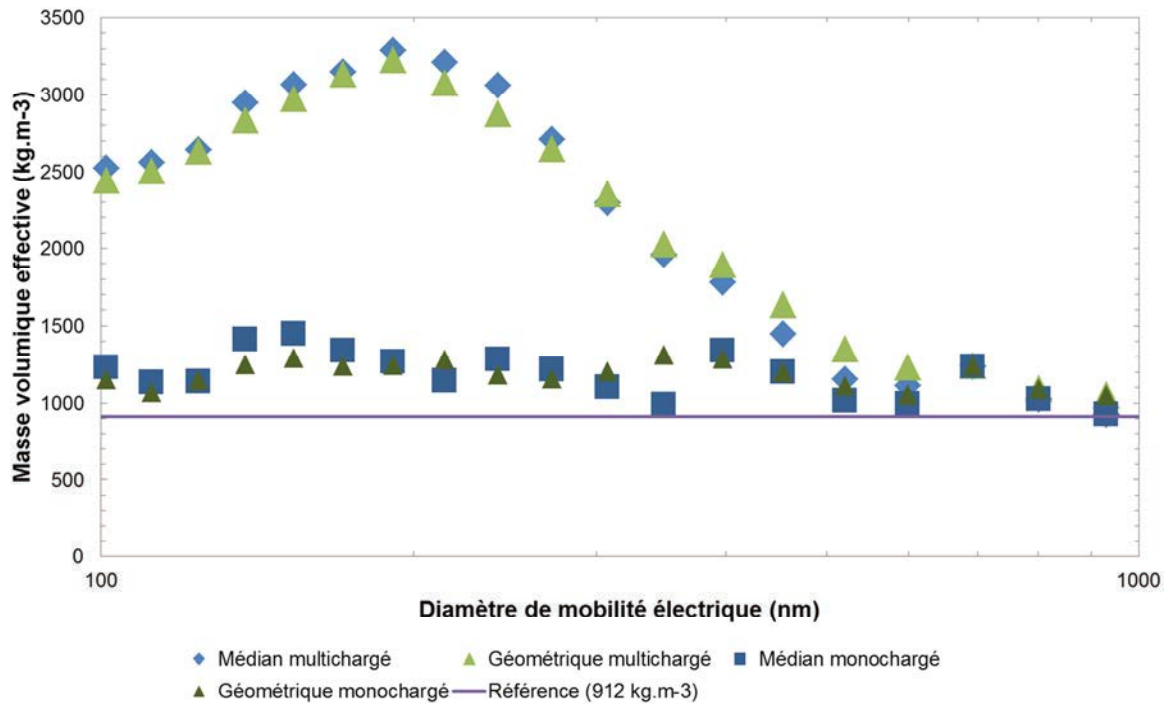


Figure 3.28 : Evolution de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique pour le DEHS.

Dans cette phase de validation, les particules sont supposées sphériques et non poreuses, la masse volumique du DEHS doit donc être indépendante du diamètre de mobilité électrique et égale à la masse volumique du matériau brut soit 912 kg.m^{-3} . Ces deux faits se retrouvent clairement sur la Figure 3.28. En revanche, nous notons que la masse volumique effective déterminée est supérieure à la masse volumique théorique de 912 kg.m^{-3} . Cette différence peut être liée à l'incertitude des débits circulants dans le DMA. Les incertitudes sur le diamètre d_m résultent de cette variation de débit laquelle influe directement sur la mobilité sélectionnée et sur la fonction de transfert du DMA et donc le d_m sortant de la colonne.

Il apparaît que, quel que soit le diamètre utilisé, l'utilisation de la granulométrie de l'ELPI sans traitement de données (granulométrie totale ou brute) donne une masse volumique effective erronée. Ceci est vrai avec les résultats expérimentaux mais également les granulométries théoriques générées par la modélisation pour lesquels la masse volumique utilisée était de 912 kg.cm^{-3} . Ce constat montre bien l'importance de traiter les données pour tenir compte des particules multichargées. A partir de ces données, la masse volumique effective moyenne du DEHS vaut

$$\rho_e = 1190 \text{ kg.m}^{-3}$$

Nous relevons que les valeurs de ρ_e se rapprochent de la valeur cible de 912 kg.cm^{-3} au-delà de 700 nm. Un calcul des diamètres des particules bichargées en fonction du diamètre des particules monochargées (Figure 3.29) montre que les particules bichargées possèdent un diamètre aérodynamique supérieur à 1100 nm lorsque les particules monochargées sélectionnées sont de diamètre 700 nm. Or, le diamètre aérodynamique des particules entrant dans la colonne du DMA est écrêté à 1083 nm. Nous en déduisons que les particules bichargées et par extension les particules multichargées sont dans ce cas majoritairement

arrêtées par l'impacteur du DMA. Le signal mesuré par l'ELPI correspond alors essentiellement au signal de la population monochargée.

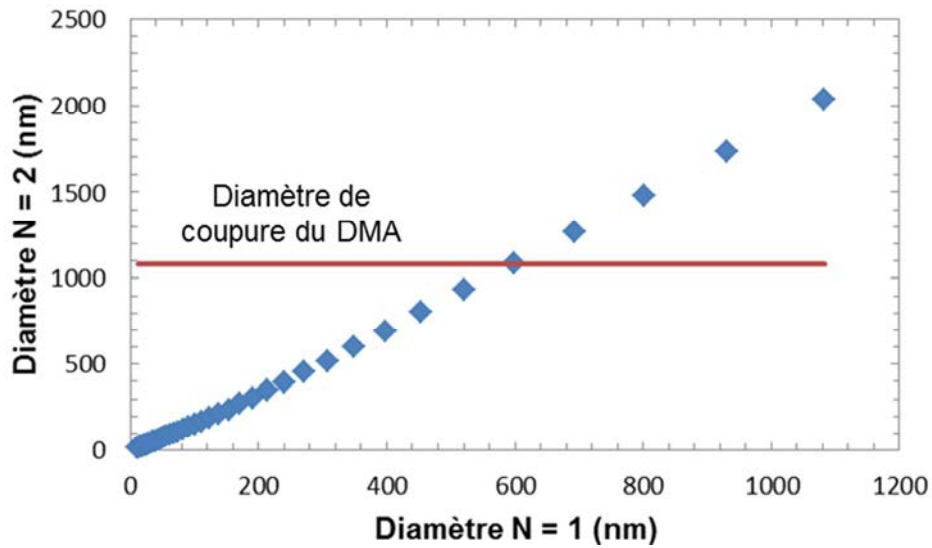


Figure 3.29 : Diamètre des particules bichargées en fonction des particules monochargées

Afin d'affiner nos mesures et de se rapprocher de la valeur de masse volumique effective réelle, nous procédons à une augmentation de la résolution du signal de 12 classes à 200 classes correspondant aux particules monochargées. L'algorithme d'inversion utilisé n'est pas donné ici (Bau & Witschger, 2011). La Figure 3.30 présente les résultats de l'inversion de données de la population monochargée.

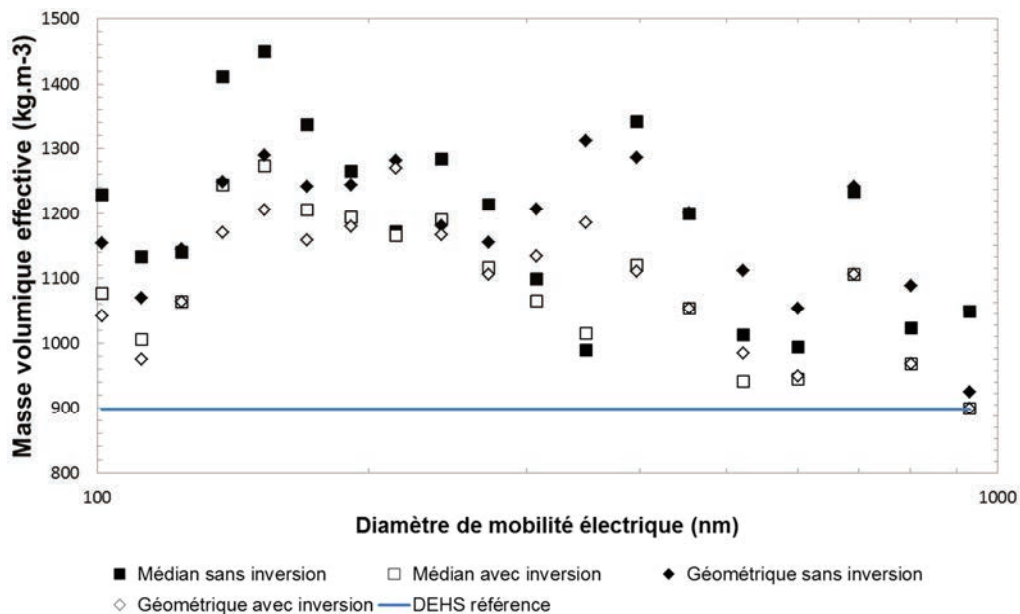


Figure 3.30 : Comparaison du traitement d'inversion avec les diamètres médian et géométrique.

L'ajout de l'inversion de données au traitement des particules multichargées améliore sensiblement le calcul de ρ_e quel que soit le diamètre utilisé. Le diamètre médian et le

diamètre géométrique donnent des valeurs de masse volumique effective très proches. La valeur moyenne de la masse volumique effective vaut pour le diamètre médian $1,09 \text{ g.cm}^{-3}$.

Nous mentionnons que :

- l'utilisation de la granulométrie « totale » en courant ou en nombre de l'ELPI ne peut être utilisée directement pour calculer la masse volumique effective ρ_e .
- La détermination de ρ_e est extrêmement sensible aux variations du débit Q_a circulant dans la colonne. Une variation de 10% suffit à doubler voire tripler sa valeur. En effet, cette variation affecte non seulement le débit et donc la dilution en amont de l'ELPI mais aussi et plus particulièrement la mobilité choisie et par conséquent la fonction de transfert. L'aérosol en sortie du DMA peut donc être totalement différent de celui attendu (donc faussé).
- Le traitement des particules multichargées est indispensable. Seul, ce traitement donne un bon ordre de grandeur de la masse volumique effective ρ_e . Utilisé comme prétraitement de l'inversion de données, il permet l'obtention de ρ_e à 20% près. Le traitement d'inversion de données seul ne permet pas d'accéder à la vraie valeur de ρ_e . Ce point appuie le fait précédent qu'il est indispensable de traiter les particules multichargées.

3.3.4.3.3 Aérosol nanostructuré de carbone

Après avoir validé notre procédure du tandem DMA-ELPI sur un aérosol sphérique et plein de DEHS, nous nous intéressons à un aérosol constitué d'agglomérats. Les agglomérats de carbone sont de nature fractale (Bau, 2008), nous pouvons donc estimer une dimension fractale D_f à partir de la Figure 3.31 selon :

$$\rho_e \propto d_m^{D_f-3} \quad (3.51)$$

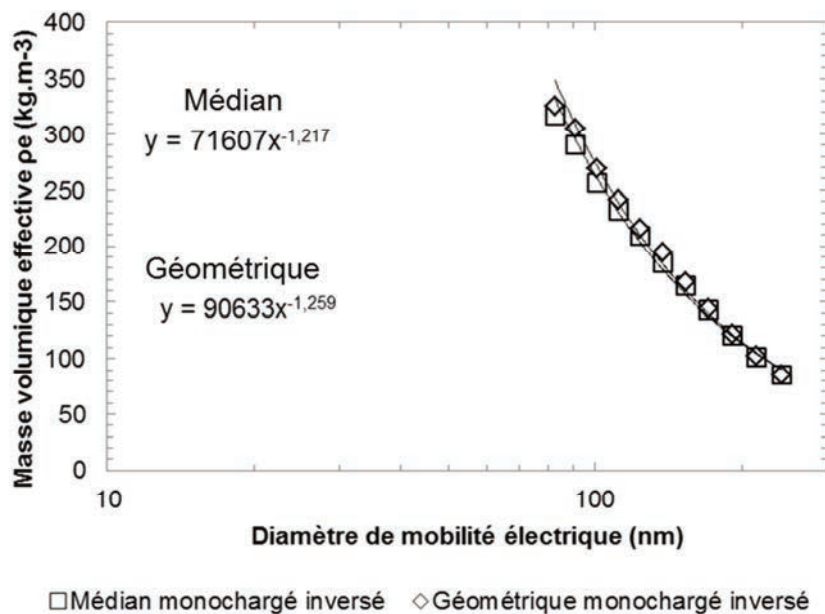


Figure 3.31 : Evolution expérimentale de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique pour des agglomérats nanostructurés de carbone.

Nous remarquons que les points expérimentaux sont parfaitement cohérents entre eux quel que soit le diamètre de détermination d_a utilisé. Ils suivent bien une loi puissance, ce qui traduit la nature fractale de l'agglomérat.

Nous notons également qu'après inversion des données, les courbes obtenues en utilisant le diamètre médian d'une part et le diamètre géométrique d'autre part sont très semblables et vont presque jusqu'à se superposer. Or le calcul du diamètre médian est plus rapide et moins contraignant que celui du diamètre géométrique. C'est pourquoi, nous utiliserons par la suite le diamètre médian.

La puissance de la régression par le diamètre médian correspond à $D_f=3$. Nous en déduisons que la dimension fractale de l'aérosol de carbone vaut 1,78. Plusieurs auteurs obtiennent dans des conditions de génération similaire une dimension fractale D_f comprise entre 1,7 et 2 (Tableau 3.7).

Tableau 3.7 : Valeurs de dimension fractale des agglomérats de carbone.

Auteur	Dimension fractale D_f	Méthode de détermination
(Naumann, 2003)	2,0	Simulation
(Wentzel et al., 2003)	2,0	Simulation
(Bau, 2008)	1,67 (2D)	Microscopie Electronique à Transmission
(Caumont-Prim et al., 2012)	1,79	Angular Light Scattering

Bau (2008) a déterminé la dimension fractale en 2D du dépôt d'un aérosol de carbone par la méthode d'analyse d'images (box counting). Ses conditions expérimentales étaient proches des nôtres et en particulier le même générateur de particules. Il trouve ainsi :

$$D_f^{2D} = 1,67$$

Lee (Lee & Kramer, 2004) propose une relation entre la dimension fractale en 2D, D_f^{2D} , et la dimension fractale « réelle » en 3D D_f^{3D} .

$$D_f^{3D} = 1,391 + 0,01 \exp(2,164 D_f^{2D}) \quad (3.52)$$

Cette corrélation est valable pour $1,3 \leq D_f^{2D} \leq 3$ et pour un nombre de particules primaires $10 \leq N_{pp} \leq 100$.

Ainsi, dans notre cas,

$$D_f^{3D} = 1,391 + 0,01 \exp(2,164 \times 1,67) = 1,76$$

Cette valeur est très proche de notre valeur et conforte nos résultats.

3.3.4.4. Application aux fumées de métallisation

3.3.4.4.1 Description du banc

Nous mettons en œuvre le même dispositif expérimental pour caractériser les fumées de métallisation que celui utilisé pour les aérosols de DEHS et de carbone (Figure 3.33 et Figure 3.32). Ce système DMA-ELPI va nous permettre de tracer l'évolution de la masse volumique effective et de déduire ainsi la dimension fractale dans la canalisation « en vol ». Le terme en vol est utilisé ici par opposition à la technique du microscope électronique à balayage où les particules sont d'abord collectées sur un filtre avant analyse. Nous appliquons donc la même méthode que celle explicitée précédemment. L'ensemble du banc est placé sous hotte aspirante pour se protéger des fuites éventuelles des fumées au cours de la manipulation.

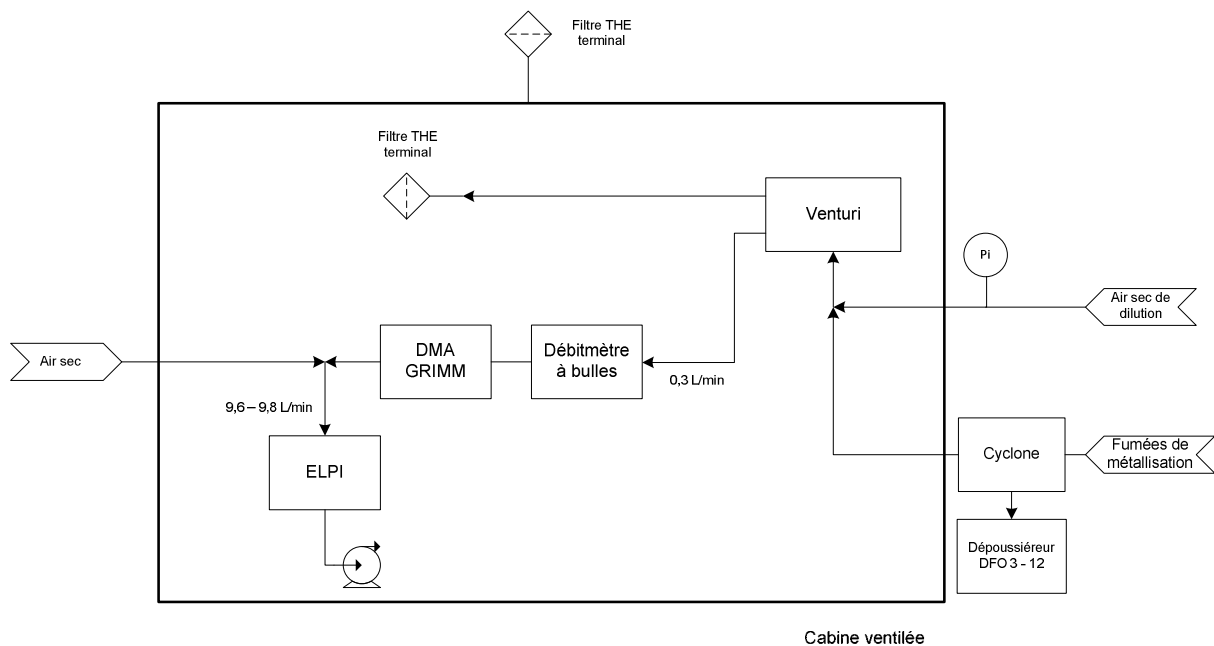


Figure 3.32 : Schéma de principe du couplage DMA-ELPI adapté au banc « Métallisation »

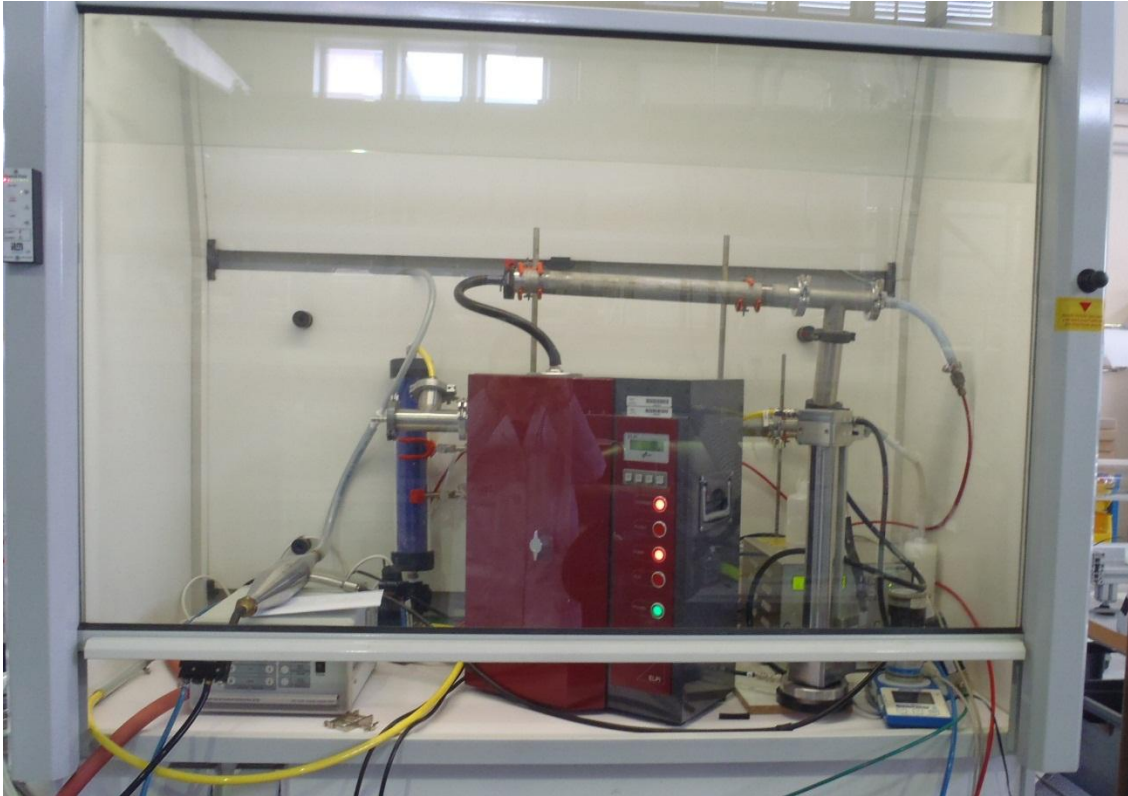


Figure 3.33 : Photo du tandem DMA-ELPI appliqué aux fumées de métallisation.

Le banc DMA-ELPI a été adapté et quelque peu modifié pour analyser les fumées de métallisation. Les fumées sont extraites en aval du cyclone afin d'analyser quasi-uniquement la partie submicronique des fumées. Le DMA ne possédant pas sa propre pompe, nous avons mis en place une pompe venturi afin de vaincre la perte de charge entre l'extraction en aval du cyclone et l'entrée dans le banc DMA-ELPI. L'aérosol est donc dilué en amont du DMA. L'aérosol passe ensuite dans un débitmètre à bulles Gilibrator. Ce débitmètre permet de s'assurer avant et après expérience que le débit en amont du DMA est bien de $0,3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$. En sortie du débitmètre, l'aérosol passe dans l'impacteur du DMA où les particules microniques restantes sont arrêtées. Le reste du banc demeure identique au dispositif précédent.

3.3.4.4.2 Détermination de la dimension fractale

La Figure 3.34 donne l'évolution de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique avec et sans correction de charge.

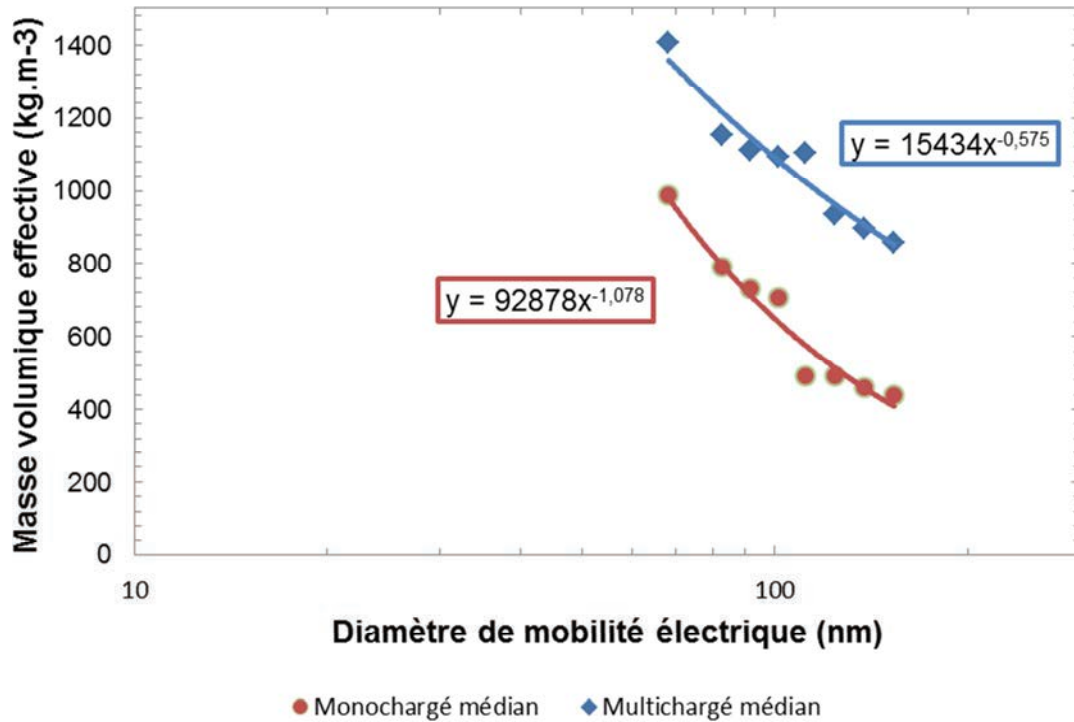


Figure 3.34 : Evolution de la masse effective en fonction du diamètre de mobilité électrique pour les fumées de métallisation.

Tout comme dans le cas des particules nanostructurées de carbone, nous retrouvons une fonction puissance caractéristique de la nature fractale des fumées. Nous obtenons ainsi une valeur de dimension fractale de l'ordre de 2 avec la population monochargée. Cette valeur est du même ordre de grandeur que celles trouvées sur les fumées de suies d'incendies avec celles trouvées dans la littérature (Tableau 3.7).

Notons que si nous ne traitons pas les particules multichargées, la valeur de dimension fractale obtenue est très différente et vaut 2,4. Il est donc important de traiter les particules multichargées.

L'évolution de la masse volumique effective ρ_e en fonction du diamètre de mobilité électrique est égale à la masse volumique du matériau tant que d_m reste inférieure ou égale à d_{pp} puis décroît selon la pente $D_f - 3$ (Figure 3.35).

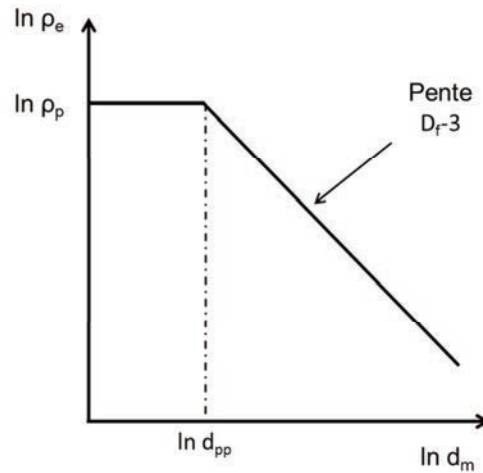


Figure 3.35 : Caractéristiques de l'évolution de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique

Il est possible d'estimer le diamètre de particule primaire à partir de la connaissance de l'évolution de la masse volumique effective et de la masse volumique du matériau. Par extrapolation de la droite de pente D_r-3 et en supposant la masse volumique du matériau égale à 5724 kg.m^{-3} (Tableau 3.4), nous obtenons :

$$d_{pp,\rho_e} = 13 \text{ nm}$$

Pour rappel, le diamètre de particule primaire en nombre obtenu par microscopie suit une loi log-normale de diamètre géométrique $9,2 \text{ nm}$. Le but de cette estimation n'est pas de prédire le diamètre des particules primaires mais de croiser les données d'évolution de la masse volumique effective avec des valeurs obtenues par ailleurs. Nous obtenons un ordre de grandeur correct.

3.3.4.4.3 Estimation du facteur de forme dynamique

Nous pouvons également estimer le facteur de forme dynamique χ à partir de la combinaison des diamètres de mobilité électrique d_m et aérodynamique d_a . En effet, ces diamètres équivalents servent à caractériser la même particule. Ils sont donc liés tous les deux au diamètre équivalent en volume d_{ev} selon les relation (3.11) et (3.14) rappelées ici (DeCarlo et al., 2004) :

$$d_m = d_{ev} \chi \frac{Cu(d_m)}{Cu(d_{ev})} \quad (3.11)$$

$$d_a = d_{ev} \sqrt{\frac{Cu(d_{ev}) \rho_p}{Cu(d_a) \rho_0 \chi}} \quad (3.14)$$

Pour résoudre ce système d'équation à deux inconnues, nous procédons par itération. Pour chaque couple (d_m, d_a) obtenu expérimentalement par le couplage DMA-ELPI, nous recherchons un couple (d_{ev}, χ) solution du système d'équation. Pour cela, nous fixons un premier d_{ev} arbitraire pour les deux équations. Nous calculons alors les facteurs dynamiques correspondant à chaque équation (χ_{dm} et χ_{da}). Nous choisissons le nouveau diamètre d_{ev} par dichotomie jusqu'à ce que χ_{dm} égale χ_{da} . Cette série de points est représentée en rouge sur la Figure 3.36.

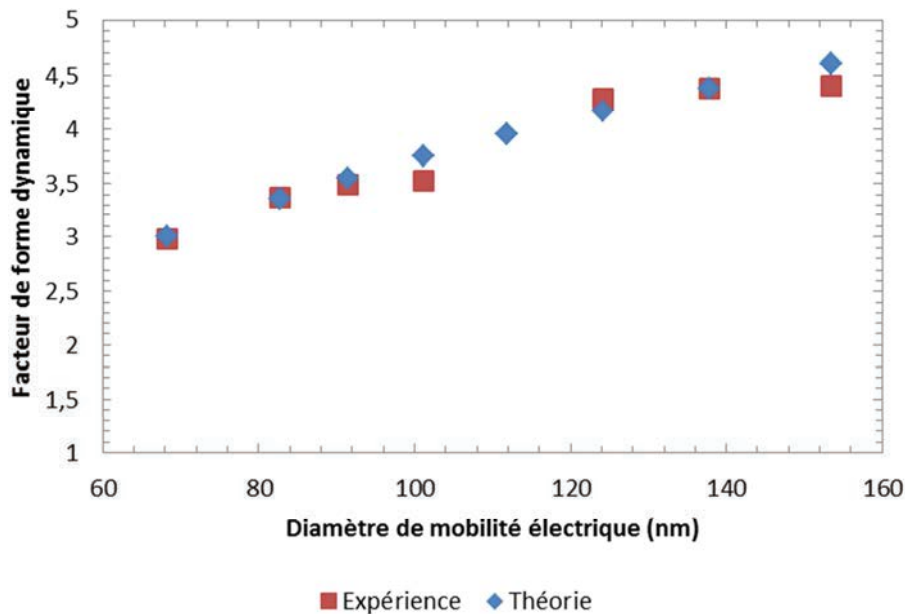


Figure 3.36 : Estimation du facteur de forme dynamique χ en fonction du diamètre en mobilité électrique d_m .

La Figure 3.36 met en évidence une évolution croissante du facteur de forme dynamique χ en fonction du diamètre de mobilité électrique d_m . En effet, bien que l'augmentation du facteur de forme dynamique n'apparaisse pas directement dans la relation (3.11), le facteur de forme dynamique est lié au nombre de particules primaires N_{pp} composant l'agglomérat (Baron & Willeke, 2001). Or, le nombre de particules primaires dépend du diamètre de mobilité électrique (Lall et al., 2008). Le nombre de particules primaires croît avec le diamètre de mobilité électrique.

Nos valeurs expérimentales sont comprises entre 3 et 4,5. Ce facteur est très au-dessus de la valeur de 1 correspondant à une sphère. Ce facteur signifie que, à même volume particulaire, les forces de frottements exercées sur l'agrégat sont trois à quatre fois plus importantes que dans le cas d'une sphère idéale. Cette conclusion recoupe les données en microscopie mettant en évidence que les particules submicroniques de l'aérosol ne sont pas sphériques et unitaires. Cette valeur est globalement très supérieure à la valeur classique entre 1 et 2 trouvées habituellement dans la littérature (Tableau 3.1).

Nous avons employé une seconde approche, plus théorique, pour déterminer l'évolution du facteur de forme dynamique χ sur une gamme plus large que celle établie pour les points expérimentaux. Pour cela, nous utilisons l'évolution de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique (Figure 3.34) et la relation entre la masse volumique effective ρ_e , le diamètre de mobilité électrique d_m et le diamètre aérodynamique d_a

(équation (3.30)). Ainsi, en reprenant le même raisonnement que pour les points expérimentaux, nous pouvons obtenir une infinité de quadruplet (d_m , d_a , d_{ev} , χ). Cette série est représentée en bleu sur la Figure 3.36. La concordance entre les points expérimentaux et théoriques justifie cette approche pour exprimer plus tard la granulométrie en nombre du SMPS en fonction du diamètre de mobilité électrique en diamètre équivalent en volume.

Une estimation grossière du facteur de forme dynamique χ selon la relation de Baron (Baron et al., 2001) par les relations (3.9) et (3.10) donne une valeur de 2,26. La valeur obtenue par ces relations est très inférieure aux nôtres. Ceci peut être dû au fait que ces relations ont été établies pour un préfacteur fractal de 1,3, ce qui n'est probablement pas notre cas. Nous aborderons la détermination de cette valeur ultérieurement.

3.4. Conclusion

Il est essentiel de connaître les caractéristiques granulométriques et morphologiques des fumées de métallisation afin de mieux comprendre leur impact sur la filtration. C'est pourquoi ce chapitre a été consacré à la détermination de la distribution granulométrique de l'aérosol ainsi qu'à l'étude structurale des agglomérats composant les fumées.

Les distributions granulométriques réalisées sur le DLPI, Marple Andersen et SMPS ont mis en évidence l'existence de deux populations distinctes au sein des fumées de métallisation. La première population est composée de particules sphériques de taille micronique de diamètre médian en masse de 9 μm . La seconde population est composée de particules de taille submicronique de diamètre médian en masse de 0,13 μm . Les analyses SMPS mettent en avant que la seconde population suit une loi log-normale de diamètre géométrique de 137 nm avec un écart-type géométrique associé de 1,5. Ces données sont conformes aux mesures de terrains, lesquelles laissaient présager déjà de la présence de particules nanométriques responsables des difficultés techniques rencontrées. Des observations au MET ont confirmé la nature nanostructurée de ces particules submicroniques composées d'agglomérat de particules primaires. Ces particules primaires suivent une loi log-normale en volume de diamètre géométrique 9 nm et d'écart-type géométrique de 1,2.

La morphologie de ces agglomérats va induire lors de leur filtration des structures de dépôt différentes de celles obtenues par de simples particules sphériques. Une meilleure connaissance de la morphologie devrait nous permettre une meilleure interprétation des interactions fluide/particules/média filtrant. Une méthode recensée dans la littérature fondée sur le couplage d'un DMA et d'un ELPI a été développée, validée et mise en œuvre sur les fumées de métallisation. Cette technique nous a permis de remonter à la masse volumique effective ρ_e en fonction du diamètre de mobilité électrique d_m des agglomérats. Cette évolution donne alors accès à la dimension fractale D_f recherchée. Elle est dans notre cas estimée à 1,9.

La détermination de la masse volumique effective présente également l'avantage de déterminer, pour un diamètre de mobilité d_m donné, le quadruplet (d_m, d_a, d_{ev}, χ). Nos calculs estiment la valeur du facteur de forme dynamique χ entre 3 et 4,5. Ce quadruplet permet de passer d'un diamètre équivalent à un autre et ainsi de convertir une granulométrie obtenue par SMPS ou ELPI en fonction d'un autre diamètre équivalent. Cette transformation s'avère très utile pour comparer différentes granulométries en fonction du même diamètre équivalent.

Cependant, bien que la technique du tandem DMA-ELPI permette de caractériser la dimension fractale d'un agglomérat en 3D et non en 2D comme pour l'analyse de clichés (diamètre de giration, box counting), sa mise en œuvre reste très délicate pour plusieurs raisons :

- Difficultés techniques :

Les deux appareils DMA et ELPI ne fonctionnent pas aux mêmes débits : l'un à $0,3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ et l'autre à $10 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$. Ce problème n'est jamais abordé dans la littérature alors qu'une telle différence de débit est susceptible d'avoir un impact sur la granulométrie et la coagulation de l'aérosol. De plus, la régulation précise de $0,3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ reste difficile. Une imprécision de ce débit entraîne une mauvaise sélection du diamètre de mobilité électrique et donc un résultat faussé. Pour remédier à ces difficultés, nous contrôlons en permanence le débit à l'entrée du DMA.

- Particules multichargées et agglomérats

Ce point a fait l'objet de la création d'une modélisation permettant de reproduire le comportement du tandem DMA-ELPI dans son ensemble. La modélisation se base sur les équations de la littérature établies pour des particules sphériques ou cubiques. Une étude récente dans ce domaine remet en cause ces relations dans le cas d'agglomérats fractals. De plus, le diamètre en mobilité électrique d'un agglomérat diffère de celui d'une sphère. Nous n'avons pas tenu compte de ce fait, ce qui pourrait influencer sur nos mesures. Une amélioration de la modélisation serait donc possible en étalonnant la sélection du DMA et la loi de charge de l'ELPI sur des agglomérats fractals.

Enfin, il faut garder à l'esprit que nous ne pouvons confronter la valeur de dimension fractale obtenue ici avec aucune donnée de la littérature. Une détermination complémentaire par analyse de clichés permettrait d'obtenir une valeur comparative et donc de critiquer notre résultat.

3.4 - Conclusion

Les caractéristiques obtenues à travers ce chapitre sont rassemblées dans le tableau synthèse (Tableau 3.8).

Tableau 3.8 : Synthèse de la caractérisation des fumées de métallisation produites par le banc

Domaine	Propriété	Résultat
Totalité des fumées	distribution	bimodale
	concentration massique	9 μm et 0,13 μm en masse 170 mg.m^{-3}
	composition chimique	répartition massique Zn/Al = 85/15
	masse volumique	estimée à 5724 kg.m^{-3}
Population submicronique	distribution des agglomérats	loi log-normale $d_{\text{géo}} = 137 \text{ nm}$ $\sigma_{\text{géo}} = 1,5$
	structure	nanostructurée
	particules primaires (volume)	loi log-normale $d_{\text{géo}} = 9 \text{ nm}$ $\sigma_{\text{géo}} = 1,2$
	Dimension fractale	1,9
	Facteur de forme dynamique	entre 3 et 4,5 pour $60 < d_m < 160 \text{ nm}$

Chapitre 4

Caractérisation du dépôt

Le chapitre 2 a mis en évidence que le banc de métallisation permet de générer des fumées dont les caractéristiques sont proches des fumées de métallisation « industrielles ». Ces fumées ont pu être caractérisées, en particulier, par un certain nombre de grandeurs liées à la distribution granulométrique ou à la structure des agglomérats. Il nous reste à étudier les dépôts obtenus par filtration de ces fumées sur des médias filtrants en vue d'élaborer un modèle de perte de charge prédictif, ce qui est l'objet de ce présent chapitre.

Dans un premier temps, nous présenterons très brièvement une étude bibliographique sur l'évolution du colmatage d'un filtre à fibres avant de lister les différents modèles de pertes de charge recensés dans la littérature. Notons la faible abondance de références sur la perte de charge de particules nanostructurées. Dans un second temps, nous caractériserons le dépôt obtenu avec les fumées de métallisation en termes de porosité. Une détermination théorique de la porosité du dépôt sera tentée à partir des caractéristiques des aérosols de métallisation, notamment la dimension fractale, en s'appuyant sur diverses relations de la littérature. Enfin les différents modèles de perte de charge seront comparés à nos valeurs expérimentales afin de sélectionner le meilleur modèle.

4.1. Bibliographie

La filtration d'un aérosol de particules solides au travers d'un média filtrant conduit à la formation d'un dépôt à la surface de ce dernier de sorte que la perte de charge du filtre va augmenter au cours du temps. Perte de charge et efficacité de filtration sont des données très importantes pour le dimensionnement des installations d'épuration particulaire. Différentes études sur les particules submicroniques voire nanométriques ont toutes mis en évidence que, en dessous du MPPS (Most Penetrating Particle Size), l'efficacité de filtration est d'autant plus grande que la taille des particules est faible (Penicot, 1998; Mouret, 2008). Ces mêmes études ont recensé et testé différents modèles d'efficacité. C'est la raison pour laquelle nous nous focaliserons uniquement sur les modèles de perte de charge d'une couche de particules. Par ailleurs peu d'études sur les particules nanostructurées n'ont pu être recensées dans la littérature.

4.1.1. Perte de charge

Elle représente le coût énergétique à fournir pour faire passer le flux d'air à travers le média. La perte de charge est définie comme la différence de pression statique entre l'amont P_{amont} et l'aval du filtre P_{aval} .

$$\Delta P = P_{\text{amont}} - P_{\text{aval}} \quad (4.1)$$

La perte de charge traduit donc une résistance à l'écoulement de l'air. Il va s'en dire que plus le média est colmaté, plus le passage du flux d'air s'avère difficile. Cette difficulté se traduit par une augmentation de la perte de charge et donc un coût énergétique supplémentaire pour les installations à maintenir leur débit de filtration nominal.

4.1.1.1. Média neuf

Dans le domaine de la filtration, les vitesses de filtration rencontrées sont comprises entre 1 et 10 cm.s^{-1} . Dans cette gamme de vitesse, le régime d'écoulement est laminaire. La perte de charge d'un média vierge dans un tel régime se calcule par la loi de Darcy.

$$\Delta P_f = \mu_g R_f U_f \quad (4.2)$$

avec μ_g la viscosité dynamique (Pa.s), U_f , la vitesse de filtration (m.s^{-1}) et R_f , la résistance du filtre (à fibres) à l'écoulement (m^{-1})

Davies (Davies, 1973) propose la relation empirique suivante pour décrire la perte de charge d'un média neuf. Cette relation est valable pour une compacité (Volume des fibres/Volume du filtre) comprise entre 0,005 et 0,4 (gamme habituellement utilisée en dépolluierage industriel).

$$\Delta P_f = 64 \mu_g Z_f \frac{\alpha_f^{3/2} (1 + 56 \alpha_f^3)}{d_f^2} U_f \quad (4.3)$$

avec Z_f , l'épaisseur du média (m), α_f la compacité du média (-) et d_f , le diamètre moyen des fibres (m). Cette relation est largement répandue dans le domaine de filtration des aérosols par médias fibreux sous le nom de loi de Davies.

4.1.1.2. Evolution de la perte de charge

Au cours de l'étape de filtration ou du colmatage, la perte de charge va progressivement augmenter (Figure 4.1). Cette évolution observée par plusieurs auteurs (Japuntich et al.,

1994, 1997; Walsh et al., 1996; Penicot, 1998) se décompose en trois phases pour les médias plans et quatre pour les médias plissés :

1. Filtration en profondeur
2. Transition
3. Filtration en surface
4. Réduction de surface par bouchage des plis, spécifique aux médias plissés

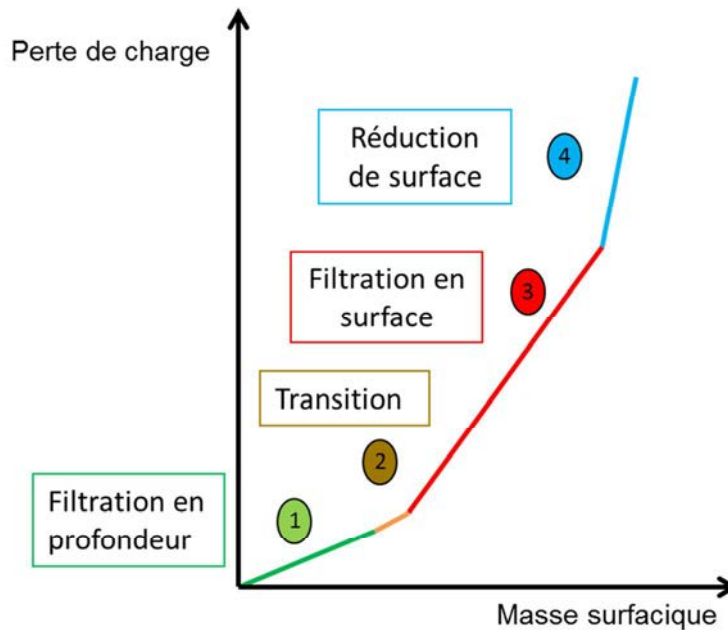


Figure 4.1 : Illustration des différentes phases de colmatages.

Plusieurs auteurs décrivent les phases de filtration rencontrées sur les médias fibreux.

Dans la phase de filtration en profondeur, les particules pénètrent à l'intérieur du média jusqu'à environ 100 μm pour les médias Très Haute Efficacité (THE) et sont collectées par les fibres constituant le média. Cette phase est caractérisée par un accroissement lent de la perte de charge et linéaire.

La seconde phase appelée transition correspond à la fin de la phase de filtration en profondeur et le début de la formation d'un dépôt sur la surface de filtration du média. Son évolution suit typiquement une courbe exponentielle.

A la fin de la phase de transition, la surface de filtration du média est recouverte d'une fine couche de particule qui est suffisamment efficace pour collecter les particules incidentes. A partir de ce point, la filtration n'est plus effectuée par les fibres du média mais par les particules préalablement collectées à la surface du filtre. Ces dernières forment alors un préfiltre en amont du média. Ce phénomène, appelé auto-filtration, permet d'augmenter l'efficacité globale du filtre. En revanche, cette hausse d'efficacité a un prix énergétique. Au fur et à mesure de la filtration, l'épaisseur du préfiltre augmente et par conséquent la

résistance aéraulique du filtre global aussi. Il en résulte un accroissement de la perte de charge linéaire plus important que celui vu en phase de profondeur.

La dernière phase ne concerne que les médias plissés en raison de leur forme particulière. En effet, les plis des médias plissés se bouchent au fur et à mesure que le gâteau se forme. Del Fabbro (Del Fabbro, 2001) a été parmi les premières à s'intéresser à la modélisation des médias plissés. Elle a en outre observé une influence de la vitesse sur la manière dont va se boucher le pli (Figure 4.2). A faible vitesse, les particules se déposent sur l'ensemble de la surface de filtration disponible. Le mécanisme de dépôt par diffusion brownienne est prépondérant. A forte vitesse, le mécanisme de dépôt par inertie est favorisé. Les particules se déposent en majorité sur le fond du pli.

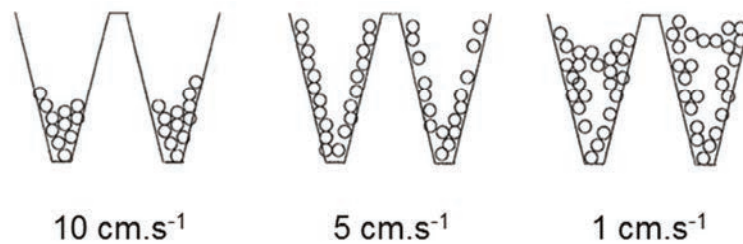


Figure 4.2 : Illustration du bouchage des plis selon différentes vitesses.

Des travaux numériques (Fotovati et al., 2011) montrent qu'une hauteur de pli élevée permettrait d'augmenter la vitesse de filtration à l'intérieur du pli. Cette vitesse favorise l'inertie des particules et donc une occupation privilégiée sur le fond du pli. Ce résultat varie selon la forme triangulaire ou rectangulaire du pli. Il est plus marqué pour un pli rectangulaire.

4.1.2. Données disponibles sur le colmatage

La plupart des informations disponibles sur le colmatage des filtres à fibres proviennent des études sur médias plans ou sur des manches filtrantes. Il existe cependant quelques publications spécifiques au colmatage de média plissé. Les informations sur les filtres plans restent intéressantes car ceux-ci peuvent être perçus comme un cas particulier de filtres plissés dont le rapport hauteur de pli/largeur de pli tend vers zéro.

4.1.2.1. Colmatage

Le paramètre présenté comme étant déterminant pour le colmatage de particules nanostructurées est la taille de la particule primaire (Kim, Wang, Emery, et al., 2009; Mocho & Ouf, 2011). Ce paramètre peut être déterminé avec de simples analyses microscopiques.

Del Fabbro (Del Fabbro, 2001) montre d'une part que le colmatage d'un filtre plissé est dépendant de la structure du pli ainsi que la vitesse de filtration et, d'autre part, que ces

différents paramètres semblent couplés. Il est donc très difficile de travailler en isolant un paramètre particulier.

Mocho (Mocho & Ouf, 2011) a récemment travaillé sur le colmatage de médias plissés HEPA utilisés dans le milieu nucléaire par un aérosol de polyméthyl méthacrylate (PMMA). Cet aérosol est composé d'agglomérats fractals de 232 nm (en volume équivalent) structurés par des particules primaires de 51 nm. La dimension fractale de l'agglomérat est estimée à 1,74. Il montre alors une influence de la vitesse de filtration sur la résistance aéraulique pendant la phase de filtration en surface. L'accroissement de la perte de charge est plus rapide lorsque la vitesse de filtration augmente. Ce résultat est contraire à ce qui est observé classiquement sur les médias fibreux plans pour des particules de géométrie simple (sphère ou cube) (Novick et al., 1992; Penicot et al., 1999; Thomas et al., 2001). De plus, Del Fabbro (Del Fabbro, 2001; Del Fabbro et al., 2002) a mis en évidence une augmentation de la perte de charge à faible vitesse de filtration sur les filtres plissés. Elle explique cette réduction de surface par la répartition homogène des particules sur la surface de filtration disponible.

Le taux d'humidité est un autre paramètre à prendre en compte pour modéliser le colmatage d'un filtre plissé. En effet, le taux l'humidité de l'aérosol influence la montée en perte de charge que ce soit pour un média plissé ou plan. Dans les deux cas, une augmentation du taux d'humidité pendant la phase de filtration en surface diminue la résistance aéraulique du gâteau et donc la perte de charge (Gupta et al., 1993; Joubert et al., 2008, 2009). En revanche, une augmentation du taux d'humidité pendant la phase de réduction de surface, propre au filtre plissé, augmente considérablement l'accroissement de la perte de charge que ce soit pour des particules non-hygroscopiques et hygroscopiques en dessous de leur point de déliquescence³ (Joubert et al., 2008, 2009).

4.1.2.2. Structure du média

La structure de pli différenciant un filtre plissé d'un filtre plan modifie l'écoulement de l'air par rapport à un filtre plan. Cette différence d'écoulement modifie la perte de charge du média. La structure de pli est caractérisée par une hauteur de pli H sur la largeur du pli, appelé pas de plissage, Chen (Chen et al., 1995) montre que pour une hauteur de pli fixe, il existe un nombre de pli optimal N_{op} permettant de minimiser la perte de charge d'un filtre plissé vierge (Figure 4.3).

³ Propriété d'un solide à absorber l'humidité de l'air et à passer ensuite à l'état liquide ou semi-liquide.

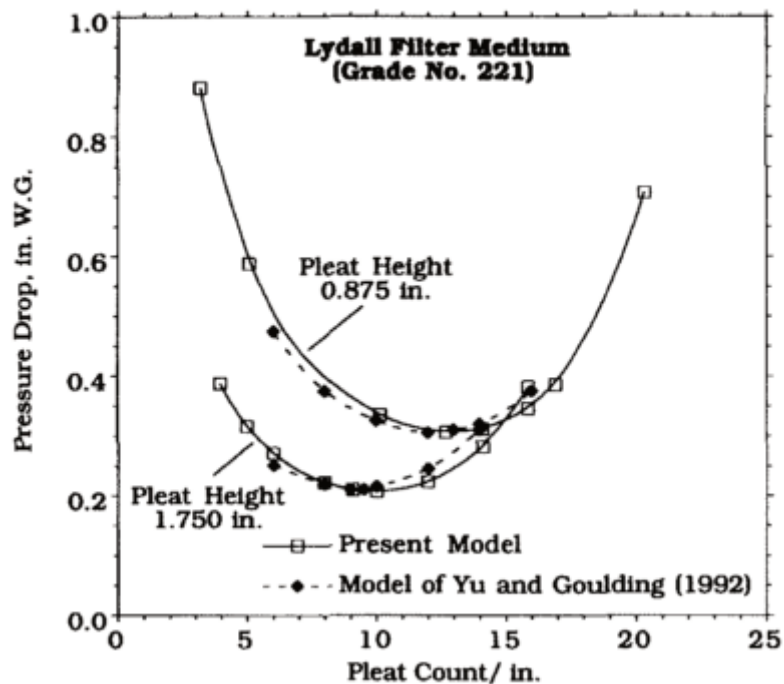


Figure 4.3 : Evolution de la perte de charge d'un média plissé selon le nombre de pli. 1 inch = 25,4 mm. 1 W.G = 0,249066 kPa. (Chen et al., 1995)

En effet, si le nombre de pli N est inférieur à N_{op} alors la surface de filtration disponible diminue. Il en résulte une augmentation de la vitesse de filtration et un accroissement de la perte de charge. Dans le cas contraire où le nombre de pli N est supérieur à N_{op} alors la surface de filtration est augmentée mais les forces de frottements également. Ces forces de frottements vont engendrer une perte de charge supplémentaire et donc augmenter la perte de charge globale du filtre. Ce nombre de plis optimal N_{op} ne semble pas être dépendant de l'orientation des fibres du média filtrant (Fotovati et al., 2011).

Del Fabbro montre que le nombre de pli optimal dépend de la hauteur du pli (Del Fabbro, 2001). Ainsi, une augmentation de la hauteur du pli a pour effet d'augmenter la surface de filtration et donc de déplacer le nombre de pli optimal vers des plus petites valeurs. La perte de charge minimal du pli est alors diminuée (Chen et al., 1995; Del Fabbro, 2001). Cependant, il convient de prendre en compte qu'une augmentation trop importante du pli implique des plis plus facilement déformables et par voie de conséquence une durée de vie des filtres réduites.

Fotovati (Fotovati et al., 2011, 2012) a simulé récemment l'efficacité de collecte de filtres plissés. Il constate qu'une augmentation du nombre de pli conduit à une diminution de la concentration particulaire par unité de surface de filtration et donc une diminution de l'augmentation de la perte de charge (à même surfacique collectée). Fotovati n'observe pas l'existence d'un pli optimal où la perte de charge du filtre est minimale. Ceci peut paraître en contradiction avec les travaux de Chen mais il est possible que Fotovati n'ait pas dépassé le nombre de pli optimal, ce qui expliquerait sa conclusion.

4.1.2.3. Porosité /Structure du dépôt

La forme de la particule est un paramètre à prendre en compte dans la prédiction de la perte de charge. Park (Park et al., 2006) montre pour des médias plans que la résistance aéroulque et donc l'augmentation de la perte de charge sont accrues lorsque la taille de l'agglomérat diminue. Des résultats similaires sont observés pour une baisse de la dimension fractale de l'agglomérat. Payatakes (Payatakes & Gradoń, 1980) avait déjà montré dans les années 80 que les particules microniques se déposant sous forme de dendrites présentaient une résistance aéroulque plus importante que des sphérules. Kanaoka (Kanaoka, 1986) met en évidence l'influence du nombre de Péclet (rapport du taux de transport par diffusion au taux de transport par convection), du nombre de Stokes et du nombre d'interception sur la collecte de la particule submicronique par la fibre. Un faible nombre de Péclet signifiera un mécanisme de diffusion prépondérant. Plusieurs auteurs (Mädler, Roessler, et al., 2006; Elmøe et al., 2009) montrent qu'un nombre de Péclet petit conditionnera un dépôt de structure dendritique.

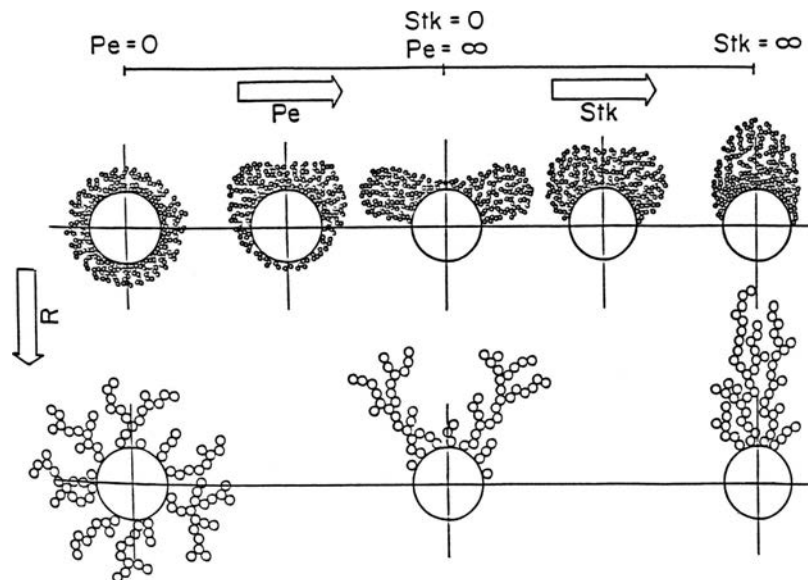


Figure 4.4 : Relation schématique entre la structure du dépôt et les conditions de filtration en fonction du nombre de Péclet Pe , de Stokes St et du nombre d'interception (Kanaoka, 1986).

Wang (Wang et al., 2011) a simulé la collecte de particules par des fibres et la structure en résultant. Il apparaît que la structure fractale du dépôt est liée au nombre de particules capturées par la fibre. Ainsi, si ce nombre est inférieur à 400, le dépôt présentera une structure ouverte de dimension fractale (en 2D) comprise entre 1 et 1,25. Si le nombre de particules est supérieur à 400, la prédiction de la structure du dépôt est plus ardue et dépendra du mécanisme de collecte dominant (diffusion brownienne, interception ou inertie). En outre, Wang observe que dans tous les cas, la porosité du dépôt n'est pas homogène. La porosité de la couche la plus récente est plus élevée que celles se situant en dessous laissant supposer un effet de compression. De plus, la capacité d'une particule à être compactée dépend de la taille de la particule, de sa forme, de sa surface, de la taille de l'agglomérat et de sa porosité (Levitas et al., 2007).

4.1 - Bibliographie

Plus récemment, Elmøe (Elmøe et al., 2009) a simulé la porosité du dépôt formé par des nanoparticules en régime laminaire, il estime la porosité du gâteau à plus de 98%. Le Tableau 4.1 récapitule les différentes porosités obtenues concernant le domaine des nanoparticules.

Tableau 4.1 : Valeurs de porosité dans la littérature.

Auteur	Particule	Diamètre	Porosité	Commentaire
Rembor (2001) cité par Kasper (Kasper et al., 2010) (Lehmann, 2005)	Sphères polystyrène (PSL)	$d_p = 1,3 \mu\text{m}$	$0,8 \pm 0,1$	$U_f = 1-2 \text{ m.s}^{-1}$
	PSL	$d_p = 3,1 \mu\text{m}$	0,83	$U_f = 0,5 \text{ m.s}^{-1}$
	PSL	$d_p = 3,1 \mu\text{m}$	0,76	$U_f = 0,76 \text{ m.s}^{-1}$
(Song et al., 2006)	PSL	0,2-2 μm	0,76	$U_f < 0,4 \text{ m.s}^{-1}$
(Endo et al., 1998a)	Alumine	$d_p = 0,7 \mu\text{m}$ $d_{pp} = 0,2 \mu\text{m}$	0,8 - 0,94	Effet de compression
(Choi et al., 2004)	Cendre	$d_p = 1,2 - 3,6 \mu\text{m}$	0,9 - 0,95 première couche 0,82-0,88 en profondeur	Effet de compression
(Mädler, Lall, et al., 2006)	Simulation	$d_p = 30 \text{ nm}$ $N_{pp} = 20$ Distribution log-normale	0,96	$D_f = 1,8$
(Kim, Wang, Shin, et al., 2009)	Suie	$d_m = 120 \text{ nm}$ $\sigma = 1,26$ $d_{pp} = 28 \text{ nm}$	0,94 - 0,96	$U_f = 10 \text{ cm.s}^{-1}$ $D_f = 1,9 \pm 0,1$
(Elmøe et al., 2009)	Simulation	$d_p = 50 \text{ nm}$	0,98	$0,01 < Pe < 1$
(Andersen et al., 2002)	alumine	$d_p = 30 - 100 \text{ nm}$ $\sigma = 1,7- 1,8$ $d_{pp} = 4 - 8 \text{ nm}$	0,9	Particules primaires partiellement fusionnées $D_f < 2$
Yu (2003) Milewski (1987) cité par Yu (Yu et al., 1997)	Recueil de simulation et d'expérience	$d_p = 20 - 30 \text{ nm}$	0,98 - 0,99	
(Mizuno et al., 1991; Yu et al., 2003)		$d_p = 70 - 100 \text{ nm}$	0,92	
		$d_p = 300 - 500 \text{ nm}$	0,85	

Notons que les agglomérats de particules sont très difficiles à distinguer sur des clichés microscopiques une fois déposés sur le gâteau en raison de leurs superpositions (Kim et al., 2007; Wang et al., 2007; Shin et al., 2008).

Park (Park et al., 2006) a montré que pour un dépôt formé sur une membrane plane, la porosité inter-agrégat des particules influençait davantage la chute du gâteau que la porosité intra-agrégat.

Différents modèles de la littérature décrivent l'évolution de la perte de charge d'un média plan au cours de la phase de colmatage avec des particules submicroniques non nanostructurées (Payatakes, 1976; Payatakes & Tien, 1976; Bergman, 1978; Letourneau et al., 1987, 1990; Thomas et al., 2001). En revanche, aucun modèle éprouvé n'existe encore pour prédire spécifiquement l'évolution de la perte de charge d'une cartouche plissée.

4.1.3. Modèles de perte de charge du dépôt

Le colmatage d'un filtre correspond à la phase de filtration en surface décrite précédemment. Le dépôt de particules formé à la surface du filtre est appelé gâteau de filtration. Cet état est très rapidement atteint en conditions industrielles. Il entraîne des modifications d'efficacité et de perte de charge comme vu précédemment. Ces variations influent considérablement sur le choix, l'utilisation et la durée de vie des filtres.

Au-delà d'une certaine perte de charge limite, le débit de filtration ne peut plus être maintenu. De plus, les contraintes mécaniques de filtration exercées de part et d'autre du filtre peuvent détériorer ce dernier de façon irréversible. Il est donc très important de connaître et d'anticiper l'évolution de la perte de charge au cours du colmatage avant d'atteindre de telles conditions. Le gâteau conditionne majoritairement l'évolution de la perte de charge engendrée.

4.1.3.1. Modèle de Novick

La perte de charge en régime laminaire est proportionnelle à la vitesse de filtration utilisée. La perte de charge de l'ensemble {média + gâteau} ΔP est communément nommée perte de charge du filtre. Elle est égale à la somme de la perte de charge du média vierge ΔP_f et de la perte de charge engendrée par le gâteau ΔP_g (Novick et al., 1990, 1992).

$$\Delta P = \Delta P_f + \Delta P_g \quad (4.4)$$

où la perte de charge du gâteau ΔP_g est calculée selon la loi de Kozeny-Carman régissant la perte de charge dans un milieu poreux constitué de granules. En exprimant l'épaisseur du gâteau e_g (m) en fonction de la masse surfacique des particules collectées m_g/S_f ($g.m^{-2}$) (équation (4.5)), il vient

$$e_g = \frac{m_g / S_f}{\rho_p \alpha_g} \quad (4.5)$$

avec m_g , masse du gâteau (kg), S_f la surface de filtration (m^2), ρ_p la masse volumique des particules ($kg.m^{-3}$) et α_g , la compacité du gâteau (-).

La loi de Kozeny-Carman peut alors s'exprimer selon l'équation (4.6).

$$\Delta P_g = \frac{h_k a_{gp}^2 \alpha_g \mu_g}{Cu (1 - \alpha_g)^3 \rho_p} U_f \left(\frac{m_g}{S_f} \right) \quad (4.6)$$

où

$$\alpha_{gp} = \frac{6}{d_{ev}} \quad (4.7)$$

avec h_k , le coefficient de Kozeny (-), Cu , le coefficient de Cunningham (-) et a_{gp} , la surface spécifique des particules (m^{-1}). Cette équation est valable pour une compacité de gâteau α_g inférieure à 0,2 (ou pour une porosité de gâteau ε_g supérieure à 0,8). Le coefficient de Cunningham permet de tenir compte de la non continuité du milieu lorsque le libre parcours moyen λ_g est du même ordre de grandeur que la taille des particules.

Le coefficient de Kozeny h_k établit un lien entre la porosité d'un milieu et sa tortuosité. Ces deux derniers paramètres varient selon la géométrie des particules, et plus particulièrement dans le cas d'un empilement de particules non sphériques (Comiti & Renaud, 1989). Par conséquent, le coefficient de Kozeny varie également. Il existe de nombreuses expressions du coefficient de Kozeny. Carroll (1996) cité par Renoux (Renoux & Boulaud, 1998) propose l'expression suivante.

$$h_k = 5 + \exp[14(\varepsilon - 0,8)] = 5 + \exp[14(0,2 - \alpha)] \quad (4.8)$$

Ce modèle est très utilisé et approuvé par les nombreuses expériences de colmatages par des particules microniques très proches de grains. Cependant, il n'a pas été confronté au domaine des nanoparticules présentes dans les fumées de métallisation. De plus, il ne considère qu'un aérosol monodispersé, ce qui n'est jamais le cas en milieu industriel.

4.1.3.2. Modèle d'Endo

Le modèle d'Endo (Endo et al., 1998a) vise à exprimer la perte de charge en régime laminaire d'un aérosol polydispersé suivant une loi log-normale. En effet, la très grande majorité des aérosols suit ce type de loi. Les hypothèses de ce modèle sont :

- une distribution des particules log-normale
- une distribution unimodale.
- une forme des particules régulières
- un gâteau homogène
- un régime continu autour de la particule

Un facteur de forme dynamique χ joue le rôle de correction dans le cas de particules non sphériques. La difficulté de ce modèle est d'estimer la porosité et le facteur de forme dans le cas de particules non sphériques.

Par ce modèle, la perte de charge du gâteau s'écrit :

$$\Delta P_g = 18\mu_g U_f \frac{\chi}{\rho_p d_{g,ev}^2 \exp(4 \ln^2 \sigma_g)} \frac{v(\varepsilon_g) m_g}{\varepsilon_g^2 S_f} \quad (4.9)$$

avec $d_{g,ev}$, le diamètre géométrique de la distribution en volume log-normale (m), σ_g , écart-type géométrique de la distribution log-normale, ε_g , la porosité du gâteau (-), U_f , la vitesse de filtration ($m.s^{-1}$), ρ_p , la masse volumique de particules ($kg.m^{-3}$) et m_g/S_f la masse surfacique du gâteau ($g.m^{-2}$).

Endo définit en 2001 la fonction de vide $v(\varepsilon)$ (Endo & Alonso, 2001) :

$$v(\varepsilon_g) = \frac{10(1 - \varepsilon_g)}{\varepsilon_g} \quad (4.10)$$

avec $0,3 \leq \varepsilon_g \leq 0,6$.

Kim (Kim, Wang, Shin, et al., 2009) a montré que cette relation était également valable pour ε_g supérieur à 0,9.

La perte de charge du gâteau s'écrit finalement :

$$\Delta P_g = 18\mu_g U_f \frac{\chi}{\rho_p d_{g,ev}^2 \exp(4 \ln^2 \sigma_g)} \frac{10 (1 - \varepsilon_g) m_g}{\varepsilon_g^3 S_f} \quad (4.11)$$

4.1.3.3. Modèle d'Endo-Cunningham

Un des inconvénients du modèle d'Endo explicité ci-dessus est qu'il ne tient pas compte de la non-continuité du milieu. Cette dernière est négligeable pour des grosses particules mais devient prépondérante lorsque la taille des particules est du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen λ_g .

Ainsi, pour tenir compte de cette non-continuité, nous introduisons le coefficient de Cunningham Cu . En tenant compte de ce coefficient, le modèle d'Endo devient le modèle d'Endo-Cunningham et s'écrit :

$$\Delta P_g = 18 \mu_g U_f \frac{\chi}{\rho_p Cu(d_{g,ve}) d_{g,ve}^2 \exp(4 \ln^2 \sigma_g)} \frac{10(1 - \varepsilon_g) m_g}{\varepsilon_g^3 S_f} \quad (4.12)$$

La démonstration est disponible en Annexe 4.

4.1.3.4. Modèle de Thomas

Plus récemment, Thomas (Thomas et al., 2011) s'est attaché à décrire le dépôt en rendant compte de la structure dendritique formé par les particules. Pour cela, il se base sur la loi de Davies et considère le dépôt comme un matelas de chaînette de particules primaires. La perte de charge du gâteau s'écrit alors :

$$\Delta P_g = \frac{64 \alpha_g^{1/2} (1 + 56 \alpha_g^3)}{Cu(\langle d_{g,ev} \rangle) \langle d_{g,ev} \rangle^2 \rho_p} F_c \mu_g \frac{m_g}{S_f} U_f \quad (4.13)$$

avec

$$\langle d_{g,ev} \rangle = d_{g,ev} \exp\left(\frac{1}{2} (\ln \sigma_g)^2\right) \quad (4.14)$$

et F_c , le facteur correctif (-). Ce facteur est le rapport entre la surface spécifique développée pour une fibre parfaitement lisse a_{gf} et la surface spécifique développée par la juxtaposition des particules primaires a_{gc} .

$$F_c = \frac{a_{gc}}{a_{gf}} \quad (4.15)$$

Le facteur correctif F_c peut être déterminé selon deux approches.

1. Juxtaposition sans fusion

Dans ce premier cas, le dépôt est supposé composé d'une juxtaposition de particules primaires de diamètre d_{pp} formant des chaînettes assimilables à des fibres. Cette approche correspond à des agglomérats parfaitement linéaires.

Le facteur correctif s'écrit :

$$F_c = \frac{a_{gc}}{a_{gf}} = \frac{6}{d_{pp}} \frac{d_{pp}}{4} = 1,5 \quad (4.16)$$

2. Fusion partielle

Lorsque les particules primaires s'assemblent par des liaisons fortes de type liaison covalente, elles forment alors des agrégats. La surface de l'agrégat est alors inférieure à la somme des surfaces des particules primaires isolées. La surface spécifique est donc modifiée. Pour tenir compte de cette fusion est introduit le facteur de recouvrement C_0 . Il permet de considérer la distance entre les centres de deux particules primaires séparées par une distance d .

$$C_0 = \frac{d_{pp} - d}{d_{pp}} \quad (4.17)$$

Il vient,

$$F_c = \frac{a_{gc}}{a_{gf}} = \frac{1 - C_0 \sqrt{1 - (1 - C_0)^2}}{\frac{2}{3} - C_0^2 \left(1 - \frac{C_0}{3}\right)} \quad (4.18)$$

Nous remarquons que, quel que soit le modèle utilisé, la perte de charge dépend d'une part des paramètres de l'aérosol tels que la taille de la particule et plus particulièrement celle des particules primaires et, d'autre part, des caractéristiques du dépôt, c'est-à-dire la façon dont vont se déposer les particules sur la surface filtrante. En effet, le facteur de porosité ε_g intervient dans tous ces modèles et de surcroît est associé à une puissance de 2 ou 3. Il est donc crucial de déterminer ce paramètre par une étude sur un filtre plan.

4.2. Etude du colmatage de filtre plan

Un paramètre clé dans une installation de dépoussiérage est la perte de charge engendrée par le dépôt de particules collectées au sein et à la surface du média filtrant. Une forte perte de charge peut entraîner une chute du débit de captage de la source polluante. Il est donc nécessaire de régénérer périodiquement le média filtrant par un décolmatage généralement par à-coups d'air comprimé. Dans un premier temps, nous allons nous intéresser à caractériser le dépôt formé à la surface du media filtrant en termes d'évolution de la perte de charge en fonction de la masse surfacique collectée et de la porosité. La porosité est un paramètre critique dans l'écoulement du flux d'air. Il joue donc un rôle déterminant dans la perte de charge engendrée. Nous allons donc déterminer la porosité de deux manières distinctes : expérimentale et théorique via diverses considérations. Ces éléments devraient aider à l'établissement d'une relation permettant l'estimation de la perte de charge d'un dépôt de particules nanostructurées.

4.2.1. Matériel et méthodes

La ligne de prélèvement 4 est dédiée à l'étude du colmatage par la partie submicronique des fumées de métallisation (Figure 4.5) et à l'estimation de la contribution des agglomérats nanostructurés à la perte de charge globale. En effet, une particule possède une surface spécifique d'autant plus importante que sa taille est petite. Une grande surface spécifique implique des forces de frottements plus importantes donc une augmentation de perte de charge. Ainsi, l'aérosol nanostructuré constituant la population submicronique des fumées est responsable de la quasi-totalité de la perte de charge du média filtrant. Nous ne travaillerons qu'avec cette partie.

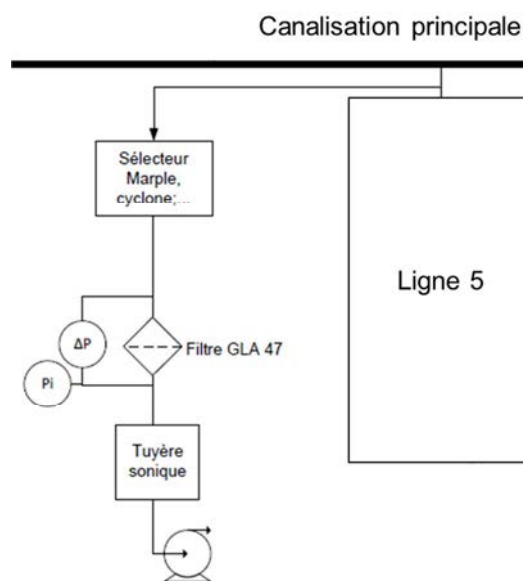


Figure 4.5 : Schéma détaillé de la ligne 4.

Le colmatage est réalisé sur un filtre membranaire Pall GLA-5000 de diamètre 47 mm au moyen d'une pompe située à l'aval du filtre.

Ce filtre a été choisi pour deux raisons :

- Le dépôt en profondeur d'un filtre membranaire est très faible et nous nous baserons sur l'hypothèse que la totalité des particules collectées est située en surface du filtre. La masse de particule collectée correspond alors à la masse du gâteau.
- Il est nécessaire d'avoir une surface plane pour mesurer une épaisseur de filtre afin d'accéder à la porosité du dépôt.

Les caractéristiques du filtre GLA sont indiquées dans le Tableau 4.2.

Tableau 4.2 : Propriétés à l'état neuf du filtre GLA-5000

Désignation	GLA-5000
Type de média	Membrane plane
Composition	PVC
Efficacité	0,9994 à 0,3 μm
Grammage (g.m^{-2})	13,67
Epaisseur (mm)	Environ 0,1
Taille des pores (μm)	5

Le colmatage s'effectue avec épuration préalable des particules microniques. Cette opération est assurée par un impacteur en cascade situé immédiatement en amont du média filtrant sur lequel ont été retirés des étages. Deux impacteurs ont été utilisés : Andersen Marple 298 et Andersen 1 ACFM (Figure 4.6).

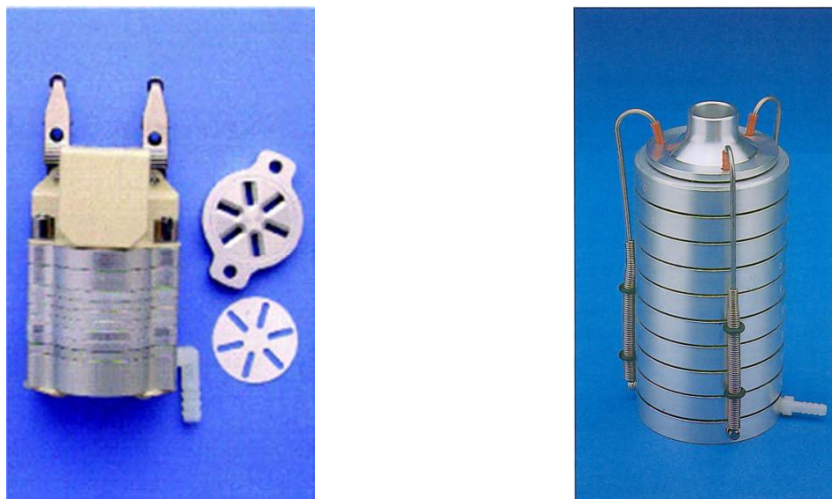


Figure 4.6 : Photo des impacteurs en cascade Andersen 1 ACFM (à gauche) et Andersen Marple 298 (à droite)

Le diamètre de coupure retenu est de l'ordre de 2,3 μm aérodynamique. Quatre vitesses de filtration ont été testées au cours des colmatages. Les impacteurs utilisés pour les différentes vitesses sont récapitulées dans le Tableau 4.3. Les vitesses de filtration sont choisies en

4.2 - Etude du colmatage de filtre plan

fonction du nombre d'étages de telle façon que le diamètre aérodynamique de coupure reste de l'ordre de 2,3 μm .

Tableau 4.3 : Conditions de colmatages submicronique sur filtre plan

Vitesse de filtration moyenne ($\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$)	Variation de vitesse entre le début et la fin de l'expérience	Impacteur	Nombre d'étages
1,56	3%	Marple Andersen 298	6
7,8	11%	Marple Andersen 298	5
18,8	35%	Marple Andersen 298	3
32,1	38%	Andersen 1 ACFM	4

La perte de charge du filtre est suivie en temps réel par un capteur de pression différentielle. Le débit de filtration est déduit par mesure de la perte de charge d'une tuyère en aval du filtre. Au sein d'un essai, la vitesse de filtration est variable dans le sens où le débit filtré est obtenu par aspiration par une pompe sans régulation. La vitesse de filtration diminue donc au cours du temps. La vitesse présentée pour chaque essai correspond à la vitesse moyenne sur l'essai.

4.2.2. Influence de la vitesse

L'objectif est de mettre en évidence ou non l'influence de la vitesse de filtration sur la structure du dépôt. L'évolution du rapport perte de charge sur vitesse de filtration en fonction de la masse surfacique des particules collectées reste un indicateur simple pour observer une modification de structure (Figure 4.7). Les colmatages à faibles vitesses ont été réalisés en gardant une masse surfacique faible. En effet, le temps de génération des fumées est limité à 1h pour des contraintes techniques liées à la chauffe du pistolet ou à l'irrégularité de la génération passé ce délai.

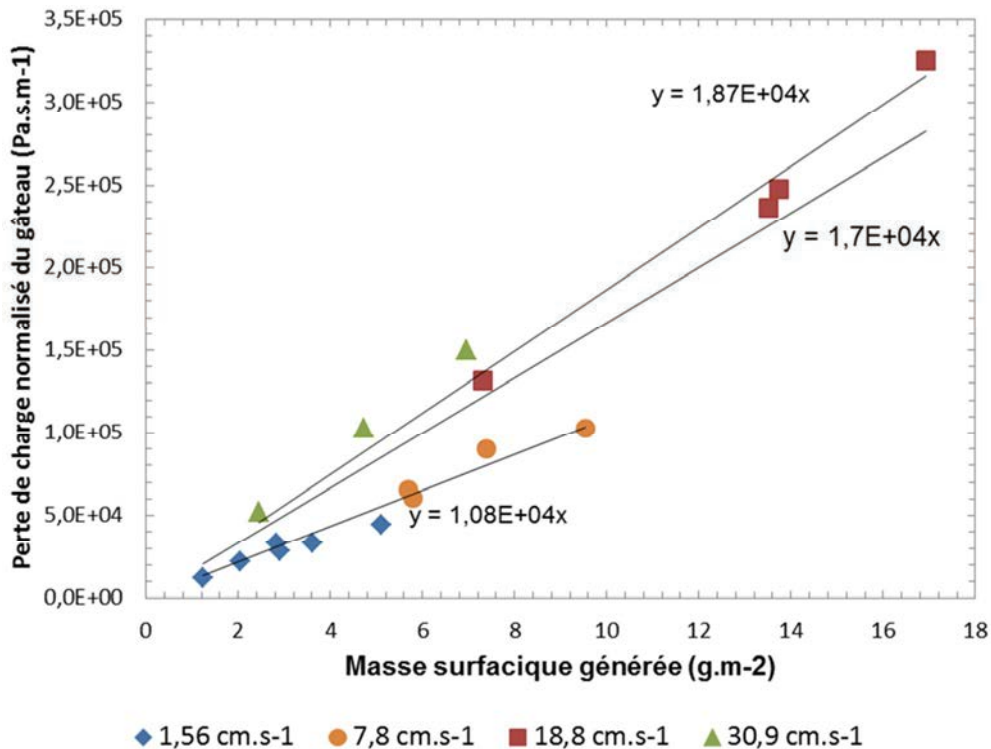


Figure 4.7 : Evolution de la perte de charge du dépôt en fonction de la masse surfacique déposée pour différentes vitesses moyennes de filtration

Tout d'abord, les différents essais réalisés à même vitesse sont cohérents, ce qui signifie que les essais sont fiables et reproductibles. L'ensemble des points est caractérisé par une pente globale de $1,7 \cdot 10^4 \text{ Pa.s.m.g}^{-1}$. Nous discernons toutefois deux séries avec les vitesses expérimentales de 1,56 et 7,8 cm.s^{-1} (première série) d'une part et 18,8 et 32,1 cm.s^{-1} (seconde série) d'autre part. Ainsi, la perte de charge à même masse surfacique est plus importante pour la seconde série que pour la première.

Ces différences de pente peuvent être attribuées à différents paramètres :

1. Diamètre de coupure variable.

Les vitesses utilisées lors des essais ont été choisies de telle façon à ce que le diamètre supérieur de l'aérosol soit en moyenne d'environ 2,3 μm . Néanmoins, comme nous l'avons expliqué plus haut, la vitesse de filtration varie au cours de l'essai en raison de l'absence de système de régulation. La distribution de l'aérosol varie donc sensiblement pendant le colmatage malgré toutes nos précautions.

2. Concentration de l'aérosol variable

Certains de nos essais peuvent s'étaler sur une heure. Sur un laps de temps aussi long, une variation de la génération est envisageable. Nous tenons compte du débit de filtration dans nos essais mais une variation de concentration est également théoriquement possible. Malgré tout, aucun changement significatif de distribution (diamètre géométrique, concentration) n'a été observé au cours de nos expériences de caractérisation des fumées générées. De plus, Thomas (Thomas et al., 2001) a montré par ailleurs que dans le cas de particules submicroniques, la concentration de l'aérosol n'avait aucun effet sur la perte de charge engendrée.

3. Compression du gâteau

Dans le cas d'une influence de la vitesse de filtration, nous aurions vu apparaître un effet de compression pour des vitesses plus importantes sur les courbes de colmatage (perte de charge en fonction du temps de filtration ou de la masse surfacique collectée). En effet, la compression d'un gâteau s'effectue de manière progressive, de sorte que l'évolution de la perte de charge en fonction de la masse surfacique collectée (ou du temps) serait de type exponentiel et non linéaire comme cela est observé. Un effet de compression est donc écarté.

L'écart entre les deux séries est donc très vraisemblablement dû à des variations expérimentales. Pour conforter l'absence de compression, nous allons déterminer expérimentalement la porosité globale du gâteau.

4.2.3. Mesure de la porosité

La détermination de la porosité nécessite la détermination de l'épaisseur du dépôt et de la masse de particules collectées à la surface du filtre. La mesure de l'épaisseur du dépôt a été réalisée par interférométrie (Figure 4.8). Cette technique est destinée à mesurer de faibles épaisseurs de l'ordre de quelques nanomètres à la centaine de micromètres (Ferrier, 2005). L'interférométrie se base sur la technologie laser, laquelle présente une grande cohérence (le laser se disperse peu) et une forte intensité. L'interférométrie exploite les interférences entre plusieurs ondes cohérentes pour déduire des informations sur la distance parcourue. Le laser utilisé doit donc être stable, monochromatique et parallèle.

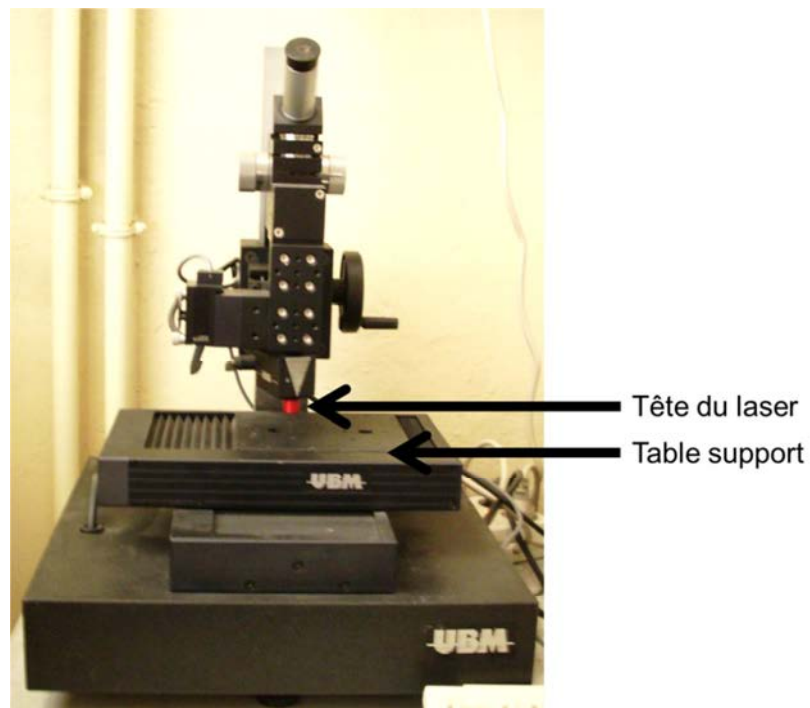


Figure 4.8 : Vue de l'interféromètre

Le filtre plan est placé sur une table mobile permettant le déplacement en X et Y de cette dernière sous le laser (Figure 4.9). Le bord de l'échantillon non colmaté est utilisé en tant que blanc de notre mesure.

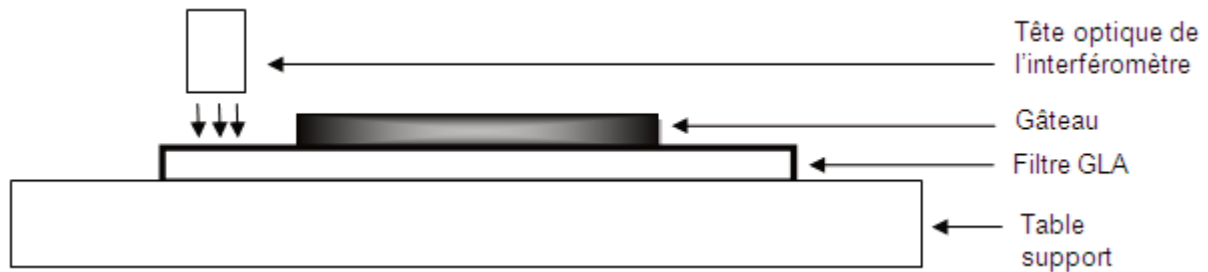


Figure 4.9: Schéma de principe des mesures par interférométrie

Une difficulté majeure dans la mesure d'épaisseur lors de l'utilisation d'un microscope est la nécessité de compresser l'échantillon lors de sa préparation. Cette préparation induit donc une part d'erreur importante. Ce point disparaît avec l'utilisation de l'interférométrie. Malgré tout, si cette technique de mesure d'épaisseur semble de prime abord intéressante, nous nous sommes heurtés à deux autres problèmes.

- Support non plan : Ce point est propre au filtre utilisé. Le filtre colmaté (support en excluant le gâteau) n'est jamais parfaitement plan ce qui rend difficile l'établissement de la ligne de base (zéro). Ce point est corrigé partiellement en combinant la nature électrostatique du filtre avec une plaque de plexiglas préalablement chargée d'électricité statique.
- Déviaton du signal : Ceci est un défaut propre à l'instrumentation. Au cours d'une mesure, le signal peut rester très stable ou au contraire dévier progressivement. Pour diminuer cet effet, nous utilisons au moins deux profils pour chaque filtre et traitons le signal lors de l'exploitation des courbes de profils obtenues. La Figure 4.10 illustre cet effet de déviation ainsi que sa correction a posteriori.

La correction (courbe rouge) consiste à aligner les zéros aux deux extrémités du filtre de façon à corriger le phénomène de déviation du signal. Les pics présents en début et fin de signal correspondent à un dépôt plus important dû au rebord du porte-filtre. Seule la partie stable est utilisée pour la détermination de l'épaisseur.

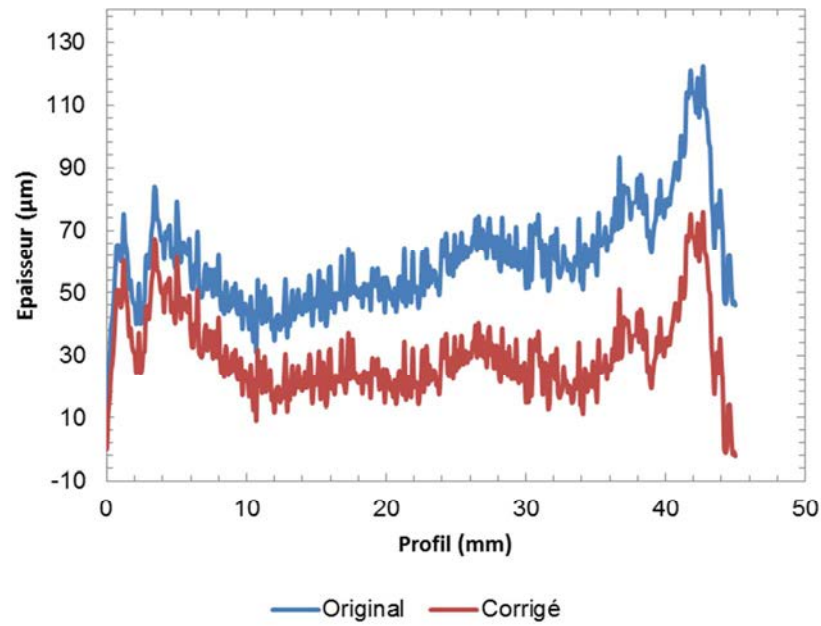


Figure 4.10 : Exemple de déviation du signal dans l'interférométrie

Les mesures d'épaisseur du dépôt en fonction de la masse surfacique collectée sont présentées sur la Figure 4.11. Les épaisseurs de gâteaux étant trop faibles pour être quantifiées à la vitesse moyenne de $1,56 \text{ cm.s}^{-1}$, cette vitesse n'est pas représentée sur le graphe.

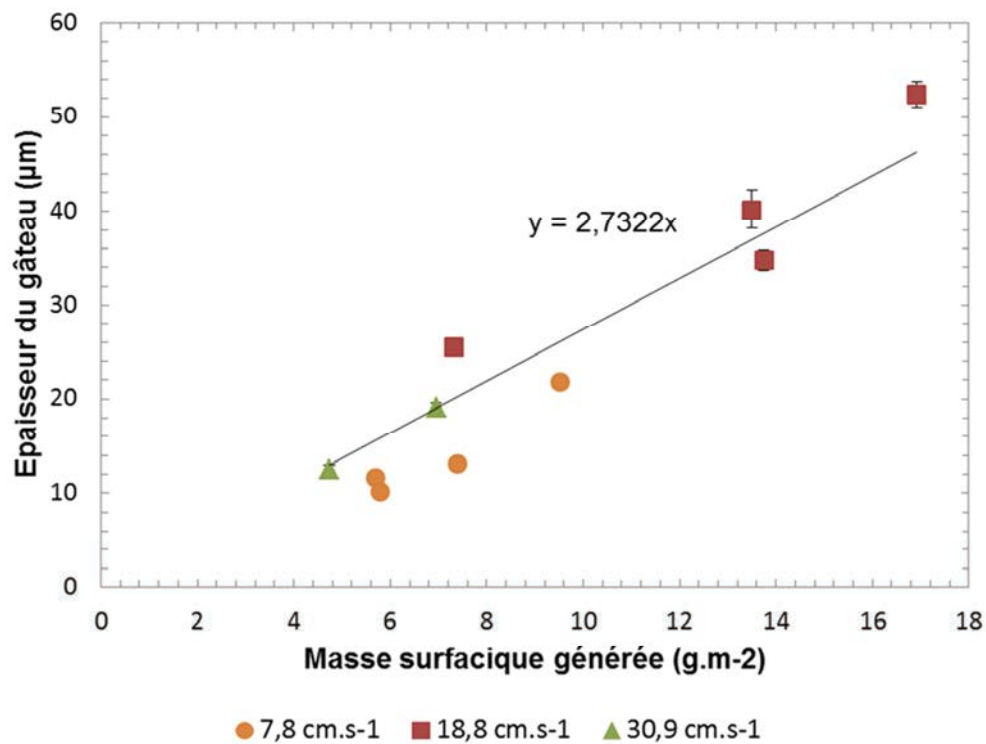


Figure 4.11 : Evolution de l'épaisseur du dépôt en fonction de la masse surfacique déposée pour différentes vitesses moyennes de filtration

A partir de la masse du dépôt et de son épaisseur il est possible de déterminer la porosité du dépôt par la relation (4.19).

$$\varepsilon_g = 1 - \frac{m_g/S_f}{\rho_p e_g} \quad (4.19)$$

avec ε_g la porosité du gâteau (-), m_g/S_f la masse surfacique du gâteau (g.m^{-2}), ρ_p la masse volumique des particules (kg.m^{-3}) et e_g l'épaisseur du dépôt (m). Les résultats sont synthétisés dans le Tableau 4.4.

Tableau 4.4 : Porosité du dépôt pour différentes vitesses moyennes de filtration de 7,8, 18,8 et 30,9 cm.s^{-1}

U_f	Diamètre de coupe moyen	Masse gâteau	Epaisseur		Porosité	
			Moyenne	Incertitude	Moyenne	Incertitude
cm.s^{-1}	μm	g.m^{-2}	μm	μm	-	-
7,5	2,32	5,69	11,7	0,3	0,91	0,03
7,6	2,29	9,53	21,7	0,7	0,92	0,03
7,8	2,26	7,4	13	0,7	0,90	0,05
8,2	2,22	5,8	10,1	0,4	0,90	0,03
16,9	2,64	16,93	52,4	1,4	0,94	0,02
18,8	2,51	13,75	34,8	1,1	0,93	0,03
18,9	2,5	13,5	40,2	2,1	0,94	0,05
20,8	2,38	7,32	25,5	0,9	0,95	0,03
29,8	2,62	6,96	19,1	0,5	0,94	0,03
31,9	2,53	4,73	12,5	0,4	0,93	0,03

L'évolution de la porosité en fonction de la masse surfacique et selon les trois groupes de vitesses testées est présentée Figure 4.12.

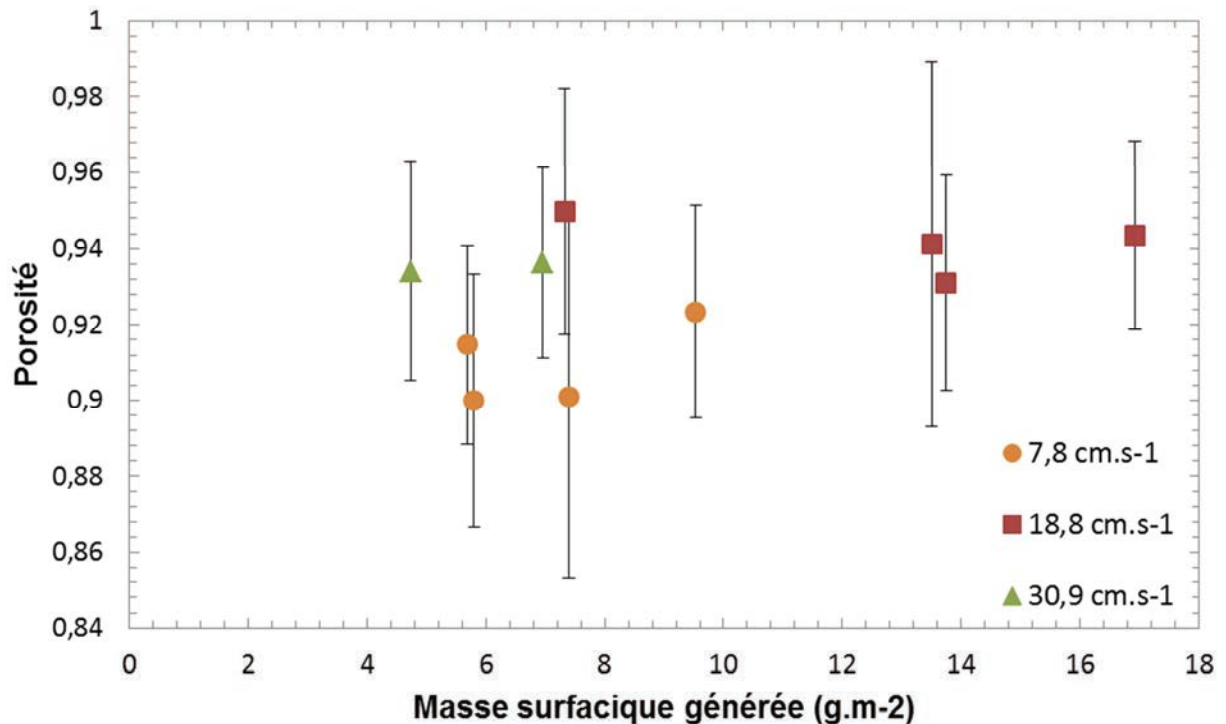


Figure 4.12 : Evolution de la porosité du dépôt en fonction de la masse surfacique déposée pour différentes vitesses moyennes de filtration

La porosité moyenne varie peu sur l'ensemble de nos mesures. La porosité moyenne, tous essais confondus, vaut

$$\varepsilon_g = 93 \pm 3 \%$$

Notons que la porosité du gâteau obtenue est très élevée. Elle est cependant du même ordre de grandeur de celles trouvées dans la littérature (Tableau 4.1) : 94% - 96% pour des nanoparticules de suie (Kim, Wang, Shin, et al., 2009), de 80% à 94% pour des particules d'alumine de 0,2 μm (Endo et al., 1998a), de 90% pour des particules d'alumine de 4 - 8 nm (Andersen et al., 2002). Le gâteau de filtration est donc majoritairement composé de vide.

La Figure 4.13 met clairement en évidence l'absence de corrélation entre la porosité et la vitesse moyenne de filtration. En d'autres termes, la vitesse de filtration n'influe pas sur le dépôt pour la gamme de vitesses testées. Nous en concluons qu'il n'y pas d'effet de compression du gâteau sur cette gamme. Cette observation confirme que les deux séries *a priori* dissociées Figure 4.7 ne forment qu'une. L'uniformité du gâteau est concordante avec les résultats de Kim (Kim, Wang, Shin, et al., 2009) qui a travaillé avec des agglomérats de suies de 120 nm et Mädler (Mädler, Lall, et al., 2006).

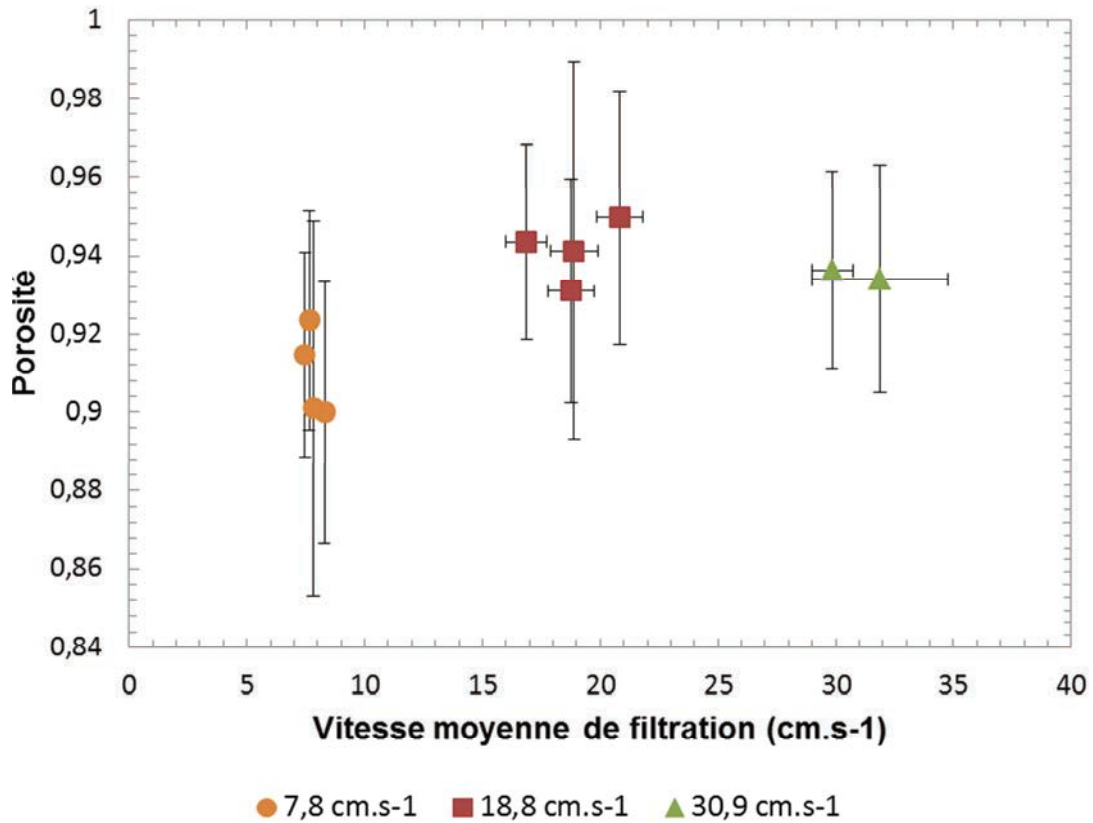


Figure 4.13 : Evolution de la porosité du dépôt en fonction de la vitesse moyenne de filtration

4.3. Estimation de la porosité globale théorique

Nous venons de déterminer expérimentalement la porosité du dépôt formé au cours du colmatage d'un filtre plan par des fumées de métallisation. Cette détermination est cruciale pour l'utilisation des modèles de pertes de charge mais présente l'inconvénient d'être longue dans sa mise en œuvre. Nous allons à présent tenter de retrouver cette valeur expérimentale par des calculs en considérant la structure agglomérat de la particule. La porosité globale du gâteau est alors une combinaison de la porosité inter-agrégat ϵ_{inter} et de la porosité intra-agrégat ϵ_{intra} du gâteau (Figure 4.14).

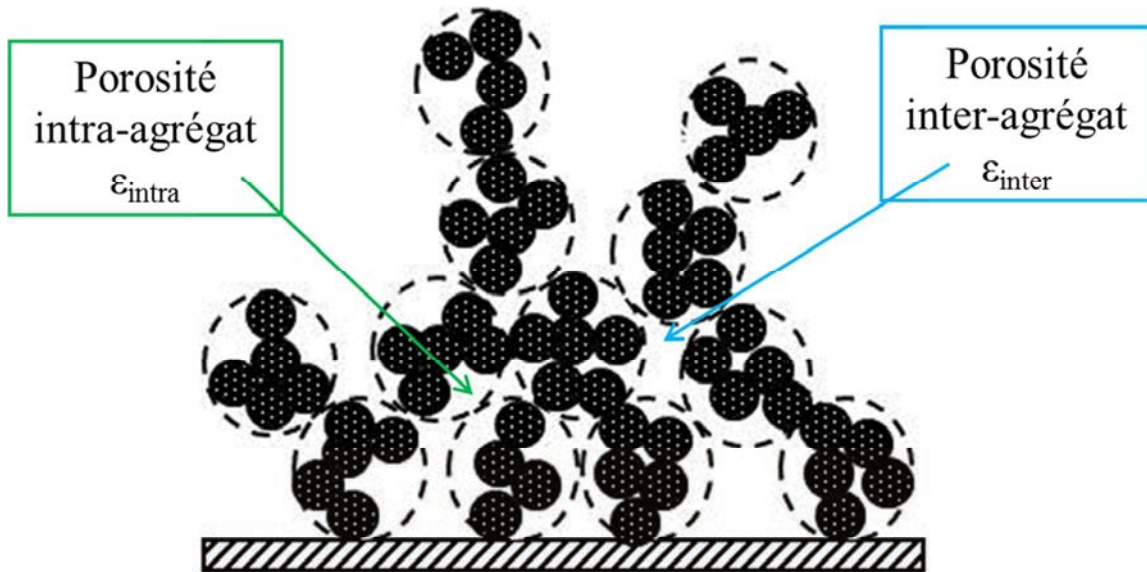


Figure 4.14 : Schéma des porosités inter et intra-agrégat.

avec

$$\varepsilon_{inter} = 1 - \frac{\text{Volume agrégats}}{\text{Volume total}} \quad (4.20)$$

et

$$\varepsilon_{intra} = 1 - \frac{\text{Volume de particules primaires}}{\text{Volume agrégats}} \quad (4.21)$$

Le volume de solide constituant le gâteau s'écrit :

$$\frac{\text{Volume solide}}{\text{Volume total}} = \frac{\text{Volume de particules primaires}}{\text{Volume total}} \quad (4.22)$$

$$\frac{\text{Volume solide}}{\text{Volume total}} = \left(\frac{\text{Volume de particules primaires}}{\text{Volume agrégats}} \right) \left(\frac{\text{Volume agrégats}}{\text{Volume total}} \right) \quad (4.23)$$

$$1 - \varepsilon_g = (1 - \varepsilon_{intra})(1 - \varepsilon_{inter}) \quad (4.24)$$

D'où

$$\varepsilon_g = \varepsilon_{inter} + (1 - \varepsilon_{inter}) \varepsilon_{intra} \quad (4.25)$$

4.3.1.1. Porosité intra-agrégat

4.3.1.1.1 Définition

La porosité intra-agrégat ε_{intra} s'écrit :

$$\varepsilon_{intra} = 1 - \frac{V_{pp}}{V_{ag}} = 1 - \frac{\rho_p}{\rho_m} \quad (4.26)$$

avec V_{pp} , le volume de la particule primaire, V_{ag} celui de l'agrégat et ρ_m , la masse volumique du matériau.

Le volume de la particule primaire s'écrit

$$V_{pp} = \frac{m_{ag}}{N_{pp} \rho_m} \quad (4.27)$$

Un agrégat peut être caractérisé entre autres par sa porosité intra ε_{intra} , son diamètre de giration d_g ou la longueur maximale projetée L . Ces paramètres sont illustrés sur la Figure 4.15.

- La porosité intra-agrégat ε_{intra} est définie comme le rapport entre le volume de vide au sein de l'agrégat sur le volume de l'agrégat. Elle dépend de sa structure spatiale.
- La longueur maximale projetée est le diamètre minimum de la sphère enveloppant la totalité de l'agrégat.
- Le diamètre de giration d_g caractérise d'une façon globale la position des particules primaires par rapport au centre de masse de l'agrégat. Il renseigne sur la répartition des particules primaires dans l'agrégat ou l'agglomérat. Il est défini comme étant la moyenne des carrés des distances (d_i) entre les particules primaires et le centre de gravité de l'agrégat :

$$d_g^2 = \frac{4}{N_{pp}} \sum_i d_i^2 \quad (4.28)$$

Il est généralement déterminé par analyse de clichés de microscopie électronique.

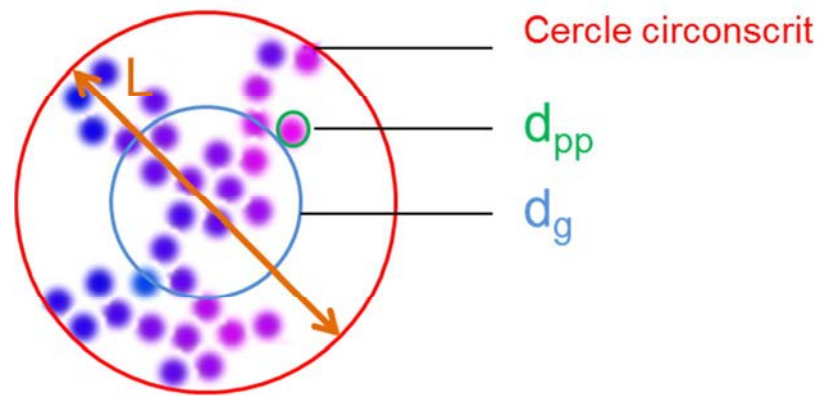


Figure 4.15 : Illustration de la longueur maximale projetée L et du diamètre de giration d_g .

Le diamètre de giration et le nombre de particule primaire sont liés à la nature fractale de l'agrégat par la relation (Bonczyk & Hall, 1991) :

$$N_{pp} = k_G \left(\frac{d_g}{d_{pp}} \right)^{D_f} \quad (4.29)$$

ou k_G est appelé préfacteur fractal.

D'où

$$d_g = d_{pp} \left(\frac{N_{pp}}{k_G} \right)^{1/D_f} \quad (4.30)$$

Or la longueur maximale projetée L est proportionnelle au diamètre de giration (Samson et al., 1987; Köylü, Faeth, et al., 1995; Oh & Sorensen, 1997; Brasil et al., 1999) :

$$L = \sqrt{\frac{D_f + 2}{D_f}} d_g \quad (4.31)$$

En injectant l'équation (4.30), il vient,

$$L = \sqrt{\frac{D_f + 2}{D_f}} d_{pp} \left(\frac{N_{pp}}{k_f} \right)^{1/D_f} \quad (4.32)$$

Le volume de l'agglomérat exprimé en fonction de la longueur maximale projetée L est :

$$V_{ag} = \frac{\pi}{6} L^3 \quad (4.33)$$

Donc la masse volumique de l'agglomérat vaut

$$\rho_p = \frac{m_{agg}}{V_{ag}} \quad (4.34)$$

$$\rho_p = \frac{m_{ag}}{\frac{\pi}{6} L^3} = \frac{m_{agg}}{\frac{\pi}{6} \left(\frac{D_f+2}{D_f}\right)^{3/2} d_{pp}^3 \left(\frac{N_{pp}}{k_G}\right)^{3/D_f}} \quad (4.35)$$

Finalement,

$$\varepsilon_{intra} = 1 - \frac{\rho_p}{\rho_m} \quad (4.36)$$

En remplaçant les expressions respectives de ρ_p et ρ_m , il vient

$$\varepsilon_{intra} = 1 - \frac{\frac{\pi}{6} d_{pp}^3 N_{pp}}{\frac{\pi}{6} \left(\frac{D_f+2}{D_f}\right)^{3/2} d_{pp}^3 \left(\frac{N_{pp}}{k_G}\right)^{3/D_f}} \quad (4.37)$$

$$\varepsilon_{intra} = 1 - N_{pp} \left(\frac{D_f+2}{D_f}\right)^{-3/2} \left(\frac{N_{pp}}{k_G}\right)^{-3/D_f} \quad (4.38)$$

Nous obtenons alors l'expression de la porosité intra ε_{intra} .

$$\varepsilon_{intra} = 1 - k_G^{\frac{3}{D_f}} N_{pp}^{\frac{D_f-3}{D_f}} \left(\frac{D_f}{D_f+2}\right)^{3/2} \quad (4.39)$$

Il est également possible d'estimer la porosité intra-agrégat en fonction du diamètre de giration. Selon cette approche,

$$\varepsilon_{intra,dg} = 1 - k_G \left(\frac{d}{D_{pp}}\right)^{D_f-3} = 1 - k_G^{\frac{3}{D_f}} (N_{pp})^{\frac{D_f-3}{D_f}} \quad (4.40)$$

Au cours de ses travaux, Vibhavata (Vibhavata, 2009) a montré que l'utilisation de la longueur maximale projetée L était plus adaptée que le diamètre de giration d_g pour le calcul de la porosité intra-agrégat. C'est pourquoi, nous utiliserons cette expression par la suite.

4.3.1.1.2 Nombre de particules primaires N_{pp}

La détermination du nombre de particules primaires est une étape difficile dans la caractérisation d'un agrégat. En effet, le diamètre géométrique des particules primaires est de l'ordre de 9 nm. Sa détermination nécessite donc un microscope à grande résolution.

Cependant, il existe une relation explicitée par Lall & Friedlander (Lall & Friedlander, 2006) entre le nombre de particules primaires N_{pp} et le diamètre de mobilité électrique d_m de la particule.

$$\frac{d_m}{Cu(d_m)} = \frac{F^* N_{pp} d_{pp}^2}{12 \pi \lambda_g} \quad (4.41)$$

ou encore

$$N_{pp} = \frac{12 \pi d_m \lambda_g}{Cu(d_m) F^* d_{pp}^2} \quad (4.42)$$

avec $F^* = 9,17$ pour des agglomérats orientés aléatoirement et dans des conditions de réflexion spéculaire de 7% et de réflexion diffuse de 93% (Dahneke, 1982). La réflexion est dite diffuse lorsque la lumière incidente est réfléchiée dans toutes les directions. La réflexion est spéculaire lorsque le rayon réfléchi est unique.

Cette relation est valable tant que D_f est inférieur à 2 et que les particules ont toutes la même taille et sont indéformables. Les clichés pris au Microscope Electronique à Transmission montrent que les particules primaires sont sphériques. Nous approximations la distribution log-normale des particules primaires à des sphères uniques de diamètre égale au diamètre géométrique de la distribution.

Le tracé de l'équation (4.42) est présenté sur la Figure 4.16.

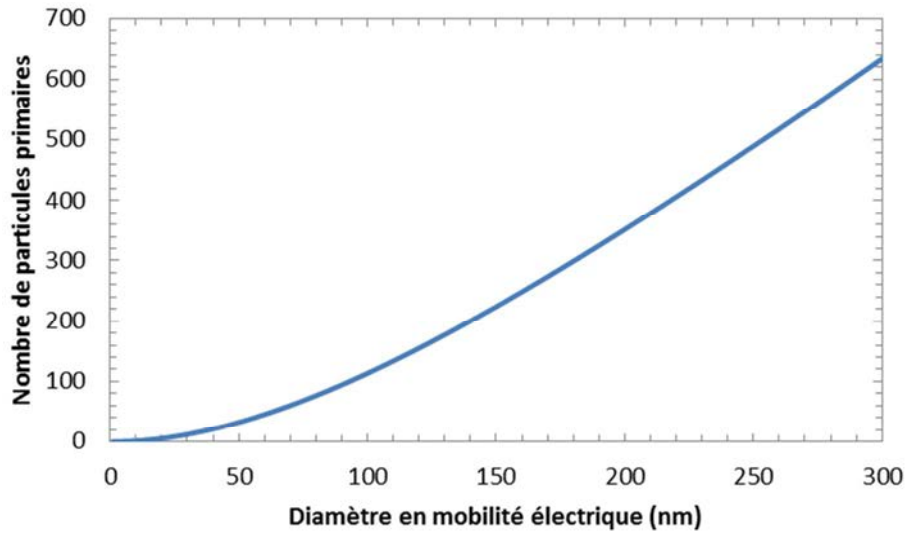


Figure 4.16 : Evolution du nombre de particules primaires constituant un agrégat selon le diamètre en mobilité électrique

La distribution submicronique de l'aérosol en fonction du diamètre de mobilité électrique suit une loi log-normale centrée sur 140 nm (§3.3.2). Pour ce diamètre, nous obtenons une valeur de :

$$N_{pp} \cong 200$$

Le paramètre de préfacteur fractal sera estimé après la détermination de la dimension fractale D_f .

4.3.1.2. Porosité inter-agrégat

La porosité inter-agrégat ε_{inter} est calculée selon la relation proposée par Yu (Yu et al., 2003) qui considère l'effet de la taille de particule sur la porosité du gâteau formé

$$\varepsilon_{inter} = 0,4 + 0,6 \exp\left(-0,145 \left(\frac{\rho_p}{A}\right)^{0,156} D_{ev}^{0,552}\right) \quad (4.43)$$

avec A, la constante de Hamaker. Chuarev (Churaev & Galwey, 2000) a estimé l'ordre de grandeur des constantes d'Hamaker dans l'air pour plusieurs systèmes fibre/particule (Tableau 4.5).

Tableau 4.5 : Estimation de la constante de Hamaker selon le système fibres/particules.

Système fibre-particule considéré	Constante d'Hamaker dans l'air (J)
métal-métal	$4,0 \cdot 10^{-19}$
métal-quartz	$2,6 \cdot 10^{-19}$
quartz-quartz	$7,9 \cdot 10^{-20}$
polymère-polymère	$6,4 \cdot 10^{-20}$

Au cours de la filtration en surface, nous faisons l'hypothèse que toutes les particules sont arrêtées par le préfiltre formé par les anciennes particules collectées. Nous pouvons estimer la constante d'Hamaker dans notre cas égale à $4 \cdot 10^{-19}$ J.

Nous pouvons donc estimer une porosité inter-agrégat ε_{inter} de

$$\varepsilon_{inter} = 97,5 \%$$

Avant d'être en mesure de pouvoir calculer la porosité intra-agrégat, la détermination du préfacteur fractal k_G est nécessaire. Cette détermination nous permettra de déterminer une porosité globale tenant compte de la structure agrégat du dépôt et *in fine* de mettre en place un nouveau modèle.

4.3.1.3. Estimation du préfacteur fractal

Avant de pouvoir apprécier la porosité inter-agrégat, il est nécessaire d'évaluer le préfacteur fractal entrant en jeu dans l'équation (4.29) rappelée ici.

$$N_{pp} = k_G \left(\frac{d_g}{d_{pp}} \right)^{D_f} \quad (4.29)$$

Ce facteur est généralement estimé en traçant l'évolution du nombre de particules primaires par agrégat en fonction du rapport du diamètre de giration obtenue par cliché de microscopie sur diamètre de particule primaire. Ouf (Ouf, 2006) a ainsi estimé pour des suies d'incendie une dimension fractale de 1,85 associée à un préfacteur fractal de 2,31. Cependant, cette technique est très coûteuse en temps d'analyse puisqu'il faut analyser chaque particule sur chaque cliché. En outre, l'échantillon doit être préalablement prélevé sur une grille plane. Ceci signifie que la mesure est faite sur un support plan et non dans le milieu de génération. De nombreux auteurs ont travaillé sur les différents couples préfacteur-dimension fractale (Lapuerta et al., 2010) (Tableau 4.6).

Tableau 4.6 : Comparaison des couples préfacteur/dimension fractale disponibles dans la littérature.

Auteurs	Particules/technique	Préfacteur fractal k_G	Dimension fractale D_f
(Meakin, 1984)	Simulation	1,05	1,74
(Samson et al., 1987)	Suies d'acétylène	3,49	1,40
		2,67	1,47
(Mountain & Mulholland, 1988)	Simulation sur des suies	5,80	1,90
		1,37	1,82
(Megaridis & Dobbins, 1990)	Suies issu de combustion d'éthylène	2,18	1,62
		1,80	1,74
(Köylü, Xing, et al., 1995)	Suies de combustion	2,4	1,70
		1,37 avec $N_{pp}=5-200$	1,82
(Wu & Friedlander, 1993)	Simulation en régime moléculaire	1,30 avec $N_{pp}=10-200$	1,74
		1,30 avec $N_{pp}=10-500$	1,91
		1,43 avec $N_{pp}=50-350$	1,83
		9,00	1,74
(Puri et al., 1993)	Suies de combustion d'éthane	3,50	1,40
		1,23	1,74
(Cai et al., 1995)	Suies de combustion de méthane	2,45	1,74
		8,50	1,82
(Köylü, Faeth, et al., 1995)	Angular Light scattering	2,25	1,86
		2,78	1,75
		2,71	1,65
		2,39	1,67
		2,35	1,66
		2,17	1,73
		2,18	1,54
(Sorensen & Roberts, 1997)	Simulation sur des suies	1,19	1,82
		1,23	1,74
(Brasil et al., 2000)	Simulation sur des suies	1,27	1,82
(Lee et al., 2002)	Suies de diesel	4,95	1,83
(Gmachowski, 2002)	Simulation	0-2,15	1-3
(Park, Kittelson, & McMurry, 2004)	Suies de diesel	1,91	1,75
(Hu & Koylu, 2004)	Suies de combustion d'acétylène	1,90	1,82
(Neer & Koylu, 2006)	Suies de diesel	1,90	1,77
(Ouf et al., 2008)	Suies de combustion d'acétylène, toluène et polyméthyl de méthacrylate	2,44	1,78
		2,2	1,79
(Chakrabarty et al., 2007)	Suies de combustion d'éthylène	2,2	1,79
(Caumont-Prim et al., 2012)	Agglomérats de carbone (Palas FGF-1000)	2,63	1,70

Nous constatons que la dimension fractale vaut très généralement 1,6 - 1,9. Le préfacteur fractal associé oscille entre 1,2 et 3,5.

Gmachowski (Gmachowski, 2002) propose la relation suivante obtenue à partir de simulations d'agglomérats pour estimer le préfacteur mais sans en préciser le domaine de validité.

$$k_G = \left[\sqrt{1,56 - \left(1,728 - \frac{D_f}{2}\right)^2} - 0,228 \right]^{D_f} \left(\frac{2 + D_f}{D_f} \right)^{D_f/2} \quad (4.29)$$

Dans notre cas, en utilisant la valeur de dimension fractale de 1,92 déterminée précédemment, nous obtenons un préfacteur fractal de 1,16.

Oh (Oh & Sorensen, 1997) s'est intéressé à l'incidence du recouvrement partiel δ des particules primaires sur les paramètres morphologiques de la particule tel que le diamètre de giration, la dimension fractale ou encore le préfacteur fractal (Figure 4.17). Le facteur de recouvrement partiel est défini comme le rapport du diamètre de la particule primaire sur la distance d séparant le centre des deux particules.

$$\delta = \frac{d_{pp}}{d} \quad (4.29)$$

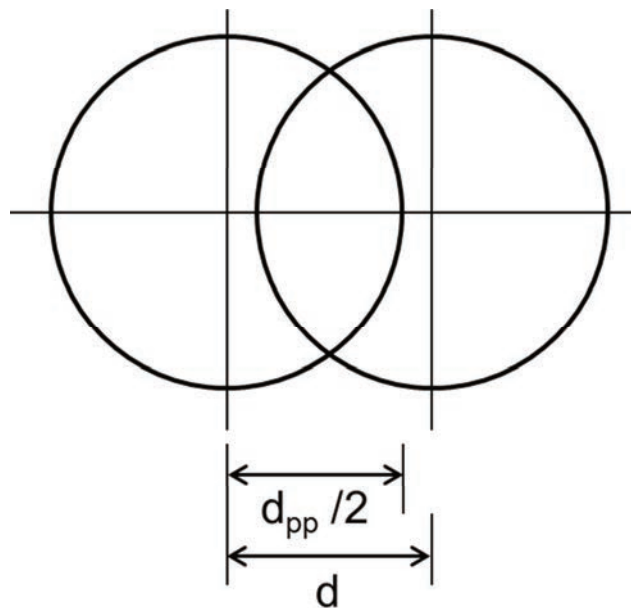


Figure 4.17 : Illustration du facteur de recouvrement

Oh et Sorensen (1997) montrent dans leurs simulations que prendre en compte le facteur de recouvrement amène à dénombrer davantage de particules primaires par agglomérats et donc des agglomérats plus denses. Il en résulte une dimension fractale et un préfacteur fractal plus élevé. Il trouve ainsi le couple $D_f = 2,01$ et $k_G = 3,0$ en tenant compte du recouvrement et $D_f = 1,80$ et $k_G = 1,30$ sans en tenir compte.

La Figure 4.18 extraite de leurs travaux permet d'estimer le préfacteur fractal à partir de la dimension fractal.

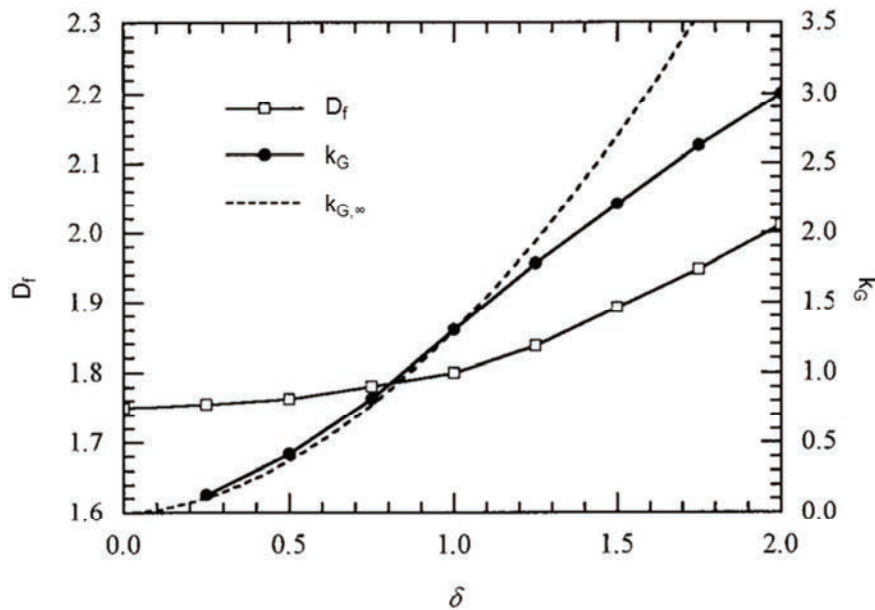


Figure 4.18 : Evolution de la dimension fractale D_f et du préfacteur fractal k_G pour de particules simulées en fonction du paramètre de recouvrement δ . $k_{G, \infty}$ est la valeur lorsque N_{pp} tend vers l'infini (Oh & Sorensen, 1997)

Ouf (Ouf, 2006) a déterminé pour des particules de suies une dimension fractale de 1,85 associée à un préfacteur fractal de 2,31. A partir de la Figure 4.18, nous pouvons estimer, pour cette valeur de dimension fractale de 1,85, un préfacteur fractal associé de 1,95 ou 2,2 lorsque N_{pp} tend vers l'infini. En effet, Oh (Oh & Sorensen, 1997) explique que la dimension fractale devient indépendante du facteur de recouvrement δ lorsque le nombre de particule primaire N_{pp} tend vers l'infini. La valeur obtenue par le graphe est donc cohérente avec celle trouvée par Ouf.

Dans notre cas, nous avons préalablement déterminé une dimension fractale de $D_f = 1,92$ par la combinaison en série d'un DMA et d'un ELPI. Pour cette valeur, le facteur de recouvrement vaut à 1,6. Cette valeur signifie que les particules primaires fusionnent partiellement entre elles. Par voie de conséquence, elles sont fortement liées. Ceci qui est dû au mode de génération de type nucléation mis en œuvre.

D'après la définition de ce facteur, la distance d entre les centres de deux particules primaires est :

$$d = 5,7 \text{ nm}$$

Le préfacteur fractal équivaut à :

$$k_G = 2,4$$

Notons que cette valeur est tout à fait cohérente avec les valeurs citées plus haut. Nous conserverons donc cette valeur pour le calcul de la porosité inter-agrégat

4.3.1.4. Calcul de la porosité globale

La porosité globale ε_g se calcule selon (4.25)

$$\varepsilon_g = \varepsilon_{inter} + (1 - \varepsilon_{inter}) \varepsilon_{intra} \quad (4.25)$$

La Figure 4.19 présente l'évolution de la porosité globale ε_g en fonction du préfacteur fractal k_G et N_{pp} .

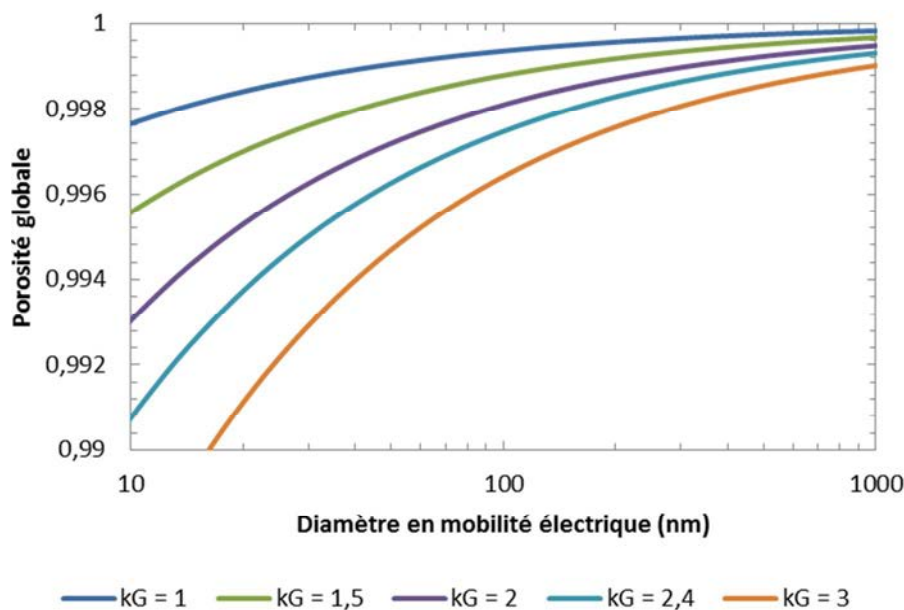


Figure 4.19 : Evolution de la porosité globale en fonction du préfacteur fractal et du nombre de particules primaires.

La Figure 4.19 met en évidence que pour un nombre de particules primaires très grand, la valeur du préfacteur fractal k_G devient moins significative. Ainsi, bien que nous ne sommes pas certains de la détermination de k_G , N_{pp} , nous pouvons prévoir une porosité globale ε_g

$$\varepsilon_g = 99,6 \% \pm 0,3 \%$$

Nous relevons des valeurs théoriques de porosité inter-agrégat et intra-agrégat respectives de 97,5% et 90,6% soit une porosité globale de 99,6%. Nous devons rester cependant attentifs au paramètre de la dimension fractale. Nous avons en effet déterminé la porosité du dépôt en s'attachant à utiliser les paramètres morphologiques et structurels de la particule. La Figure 4.20 met en avant le lien fort entre la structure fractale de la particule et la porosité globale théorique. Cette observation est un argument pour considérer la nature nanostructurée des particules dans la prédiction de la perte de charge.

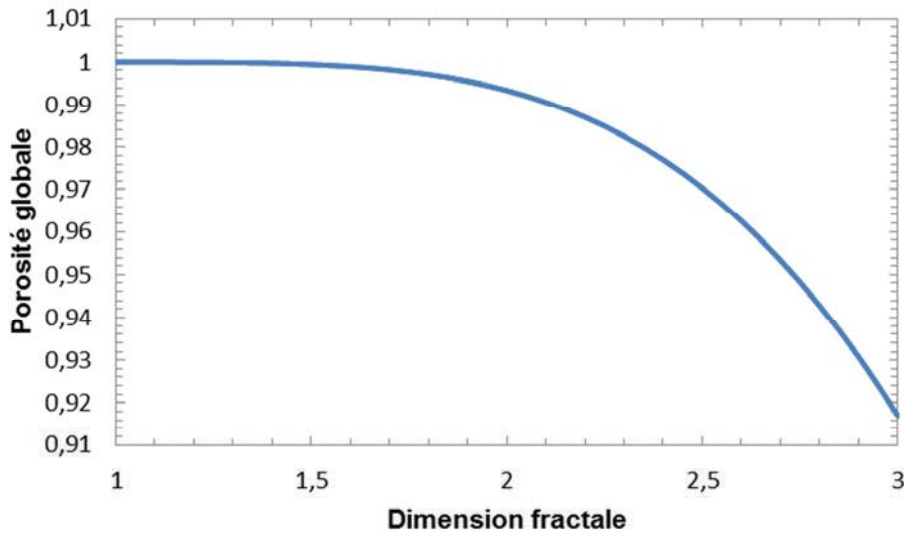


Figure 4.20: Evolution de la porosité globale en fonction de la dimension fractale D_f . Les paramètres k_G et N_{pp} sont gardés constants et valent respectivement 2,4 et 200.

Nous ne sommes donc pas en mesure d'estimer précisément une porosité globale théorique précise malgré nos connaissances sur les particules des fumées de métallisation. Il faut néanmoins garder à l'esprit que notre évaluation de la porosité globale se base sur l'estimation de nombreux paramètres. Le Tableau 4.7 récapitule les paramètres utilisés au cours de nos calculs ainsi que la manière dont ils ont été déterminés.

Tableau 4.7 : Synthèse de l'estimation des paramètres pour le calcul théorique de la porosité globale

Paramètre	Détermination		
Préfacteur fractal	k_G	calcul	(Oh & Sorensen, 1997)
Dimension fractale	D_f	expérimental	Tandem DMA-ELPI
Nombre de particules primaires	N_{pp}	calcul	(Lall & Friedlander, 2006)
Constante de Hamaker	A	calcul	(Churaev & Galwey, 2000)
Masse volumique de la particule	ρ_p	expérimental	EDS

Les nombreux paramètres estimés expliquent que notre évaluation théorique ne peut être précise malgré un attachement particulier pour se rapprocher des valeurs disponibles de la littérature. Notons que les relations utilisées ne sont valables que pour un aérosol monodispersé, ce qui n'est pas notre cas. Cette hypothèse simplificatrice fausse notre évaluation.

Pour affiner cette évaluation, il faudrait pouvoir étendre les relations utilisées à un aérosol polydispersé. Il nous faudrait également déterminer expérimentalement l'ensemble des paramètres intervenant dans les calculs. Par exemple, le nombre de particules primaires par agglomérat et le préfacteur fractal peuvent être déterminés par analyse de clichés. Ces

clichés permettraient également une autre détermination de la dimension fractale D_f et donc de confirmer notre valeur. Nous nous baserons par la suite sur la porosité globale du dépôt déterminé expérimentalement à savoir 92,8 %.

4.4. Choix du modèle de perte de charge

Nous scindons ce choix selon deux approches : approche particules primaires d'une part et approche agglomérat d'autre part.

4.4.1. Approche particules primaires

La connaissance des caractéristiques de l'aérosol nanostructuré et du dépôt devrait nous permettre de modéliser l'augmentation de la perte de charge en cours de filtration. L'objectif est de déterminer quelle est la meilleure relation de perte de charge (recensée dans la littérature) permettant de traduire l'évolution de cette dernière au cours du colmatage.

Les Figure 4.21 à 4.24 présentent les modèles de Novick, Endo, Endo-Cunningham et Thomas en utilisant la porosité expérimentale obtenue précédemment. Les points expérimentaux correspondent à ceux réalisés dans l'étude du colmatage de filtre plan. L'aérosol est assimilé à une population de particules primaires sphériques et unitaires. Cette hypothèse est utilisée dans la littérature notamment par Kim (Kim, Wang, Shin, et al., 2009). Elle présente l'avantage de s'affranchir de la forme et de la structure spatiale de la particule. Ainsi, il n'y a pas de facteur de forme dynamique ou de dimension fractale à estimer. Les valeurs des paramètres utilisés sont :

- Diamètre de particule d_p égal au diamètre des particules primaires : $d_p = d_{pp} = 9$ nm
- Ecart-type géométrique : $\sigma_g = 1,2$
- Facteur de forme dynamique : $\chi = 1$
- Masse volumique du matériau : $\rho_p = 5724 \text{ kg.m}^{-3}$

Concernant le modèle de Thomas, nous avons utilisé son approche la plus simple consistant à considérer les agglomérats comme une juxtaposition de particules primaires. Pour chaque graphe, les points expérimentaux sont représentés en bleu et le modèle en rouge. Les incertitudes de porosité ont été utilisées pour déterminer la sensibilité du modèle : la valeur moyenne de 92,8 % est représentée en trait plein et les valeurs minimales (89,5 %) et maximales (96,0 %) en trait pointillé.

La perte de charge étant engendrée majoritairement par la population submicronique des fumées de métallisation en raison de leur grande surface spécifique, nous ne travaillons qu'avec cette population.

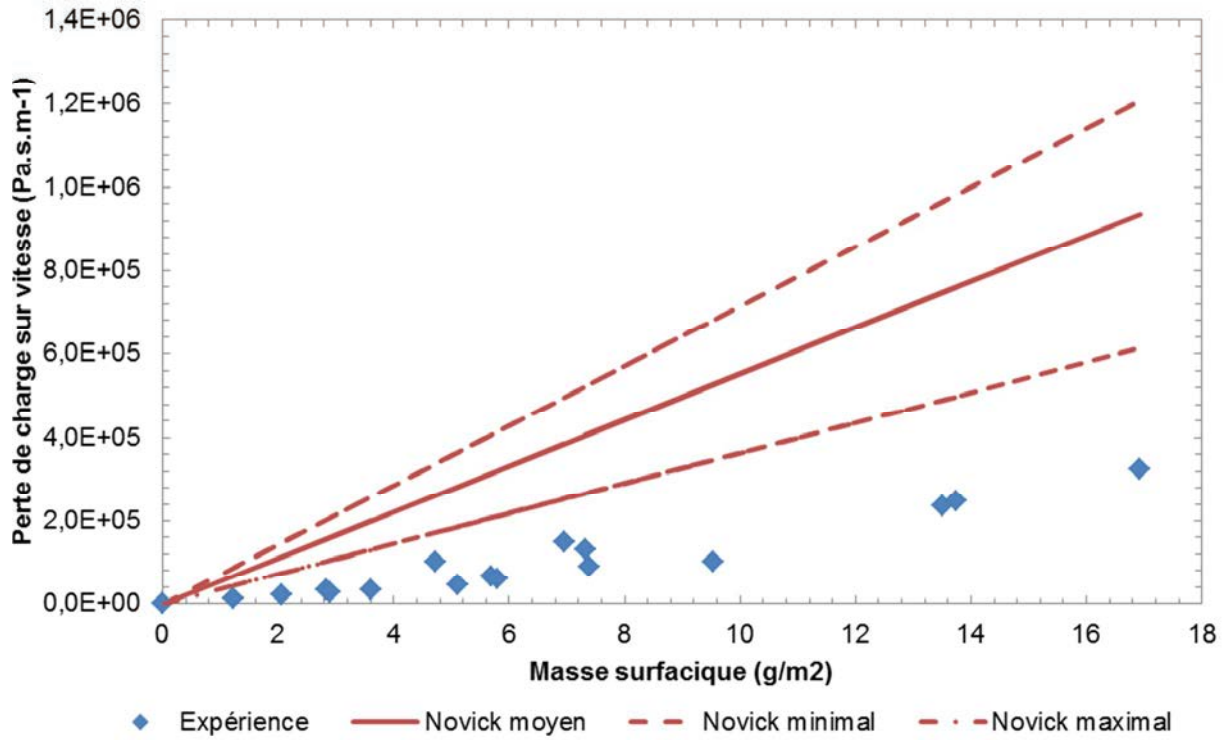


Figure 4.21 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle de Novick. Particules primaires

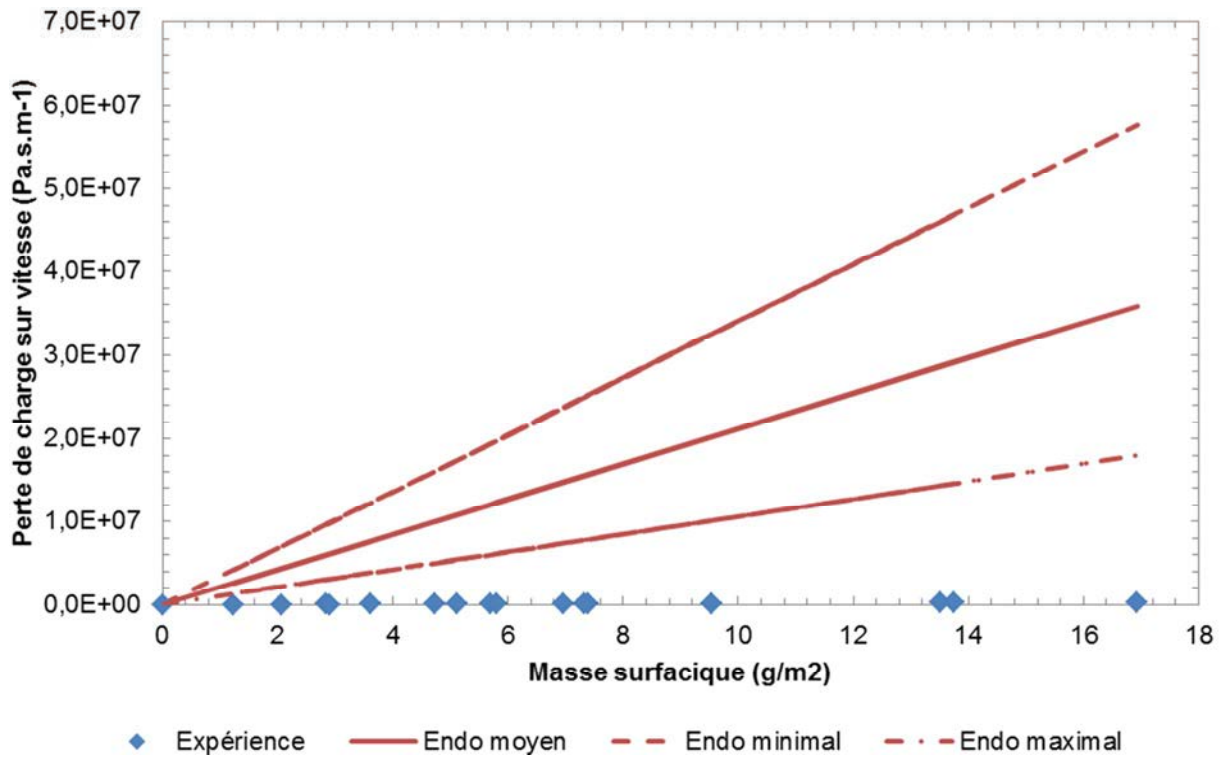


Figure 4.22 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle d'Endo. Particules primaires

4.4 - Choix du modèle de perte de charge

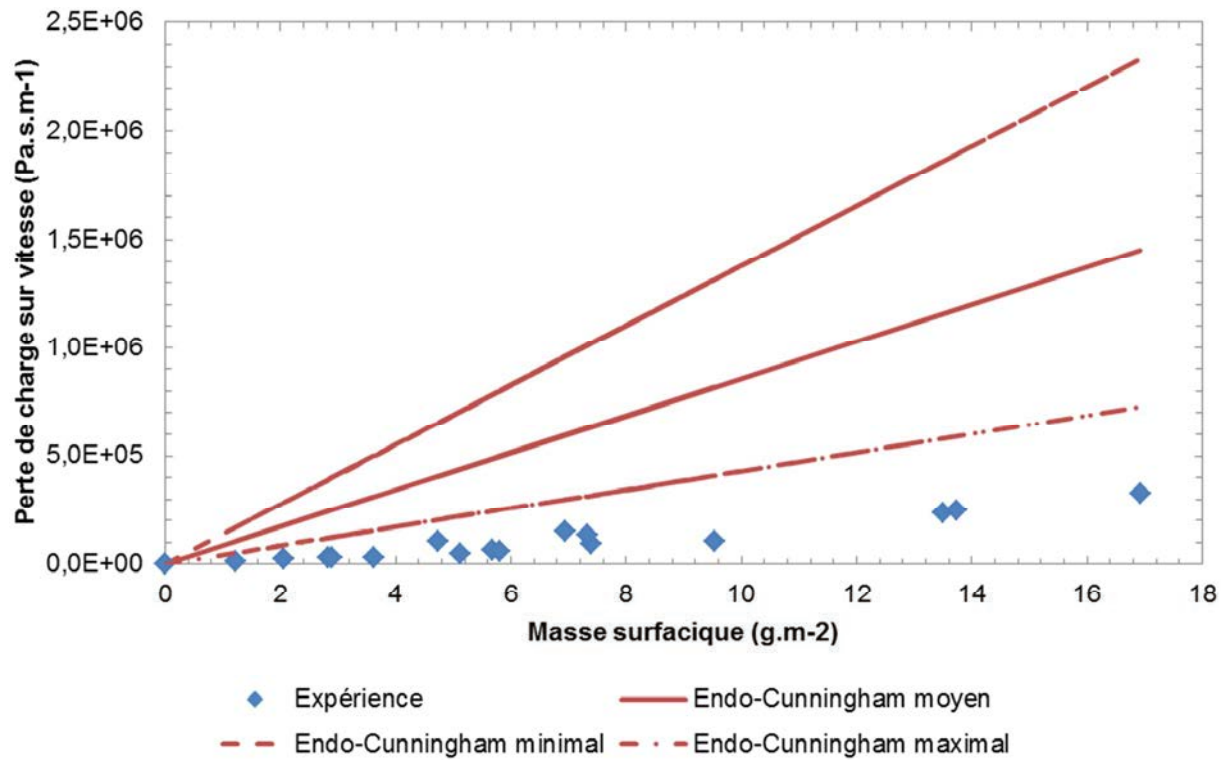


Figure 4.23 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle d'Endo-Cunningham. Particules primaires

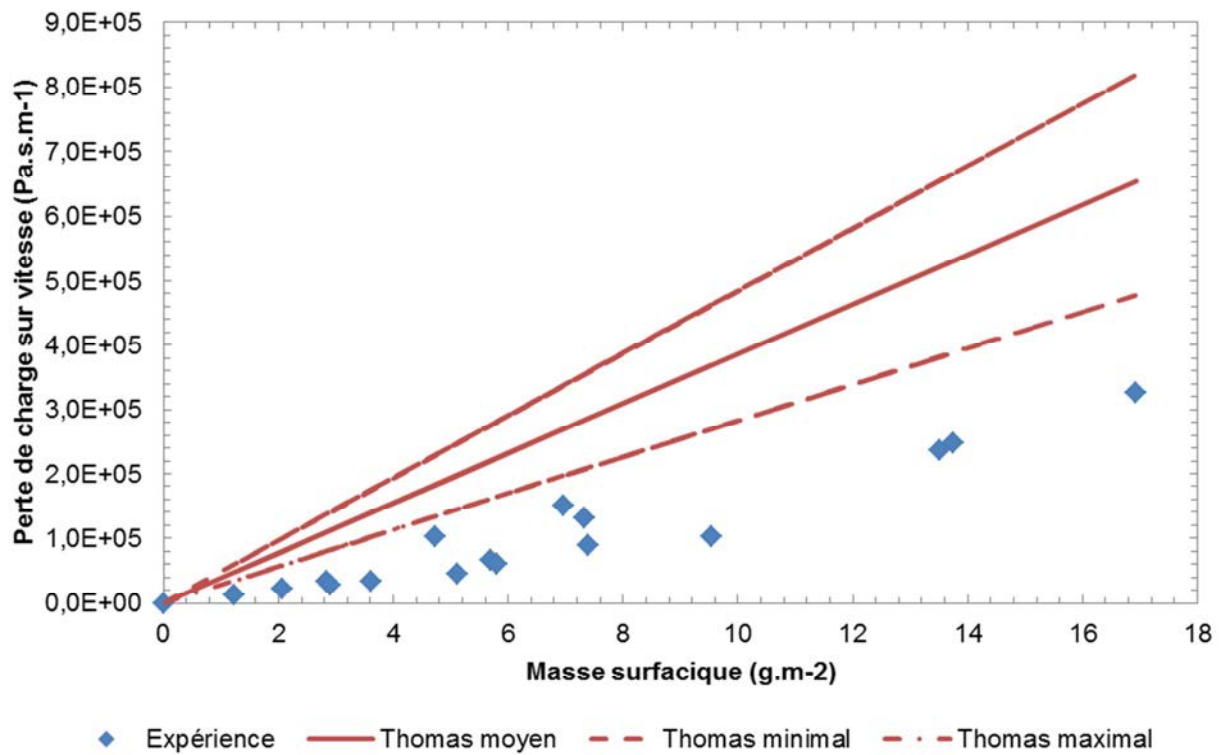


Figure 4.24 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle de Thomas (pas de fusion). Particules primaires

Notons tout d'abord la sensibilité des modèles à la valeur de la porosité. Une variation de 3,2%, incertitude sur notre mesure de la porosité expérimentale du dépôt, suffit à changer considérablement la prédiction de la perte de charge.

Aucun des modèles testés ne parvient à modéliser l'évolution de la perte de charge expérimentale. Une détermination indirecte de la porosité par ces modèles, c'est-à-dire en utilisant la porosité comme paramètre d'ajustement, donne des valeurs respectivement de 99,9, 98,3, 98,4 et 98,5 % pour les modèles de Endo, Endo-Cunningham, Novick et Thomas. La différence entre ces valeurs avec notre valeur expérimentale explique le comportement éloigné des modèles. Les modèles sont très proches entre eux. Seul le modèle d'Endo fait exception. Cette différence de comportement est très certainement liée au fait qu'il soit le seul à ne pas tenir compte du facteur de Cunningham. A ce stade, le modèle de perte de charge se rapprochant au plus près de nos valeurs expérimentales est le modèle d'Endo-Cunningham.

Le modèle de Thomas est le seul à pouvoir faire intervenir la notion de fusion partielle entre deux particules primaires. Nous avons précédemment estimé la distance entre les centres de deux particules primaires à 5,7 nm (§4.3.1.3). La Figure 4.25 présente le modèle de Thomas selon cette approche.

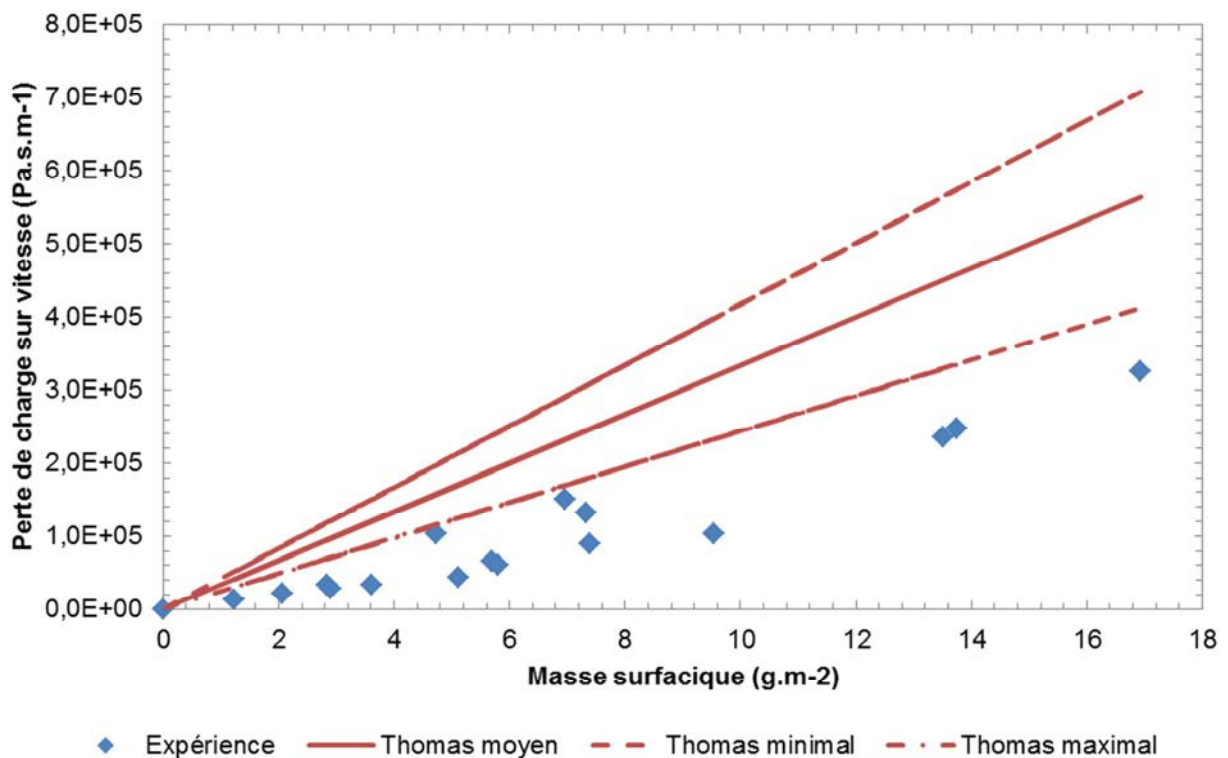


Figure 4.25 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle de Thomas (fusion partielle). Particules primaires

Nous ne notons pas de changement notable entre le modèle de Thomas avec et sans fusion partielle. La fusion partielle entre deux particules primaires ne semble pas influencer le modèle. Une détermination indirecte de la porosité par ce modèle renvoie une valeur sensiblement inférieure à l'approche sans fusion de 97,3 %.

Rappelons toutefois que la distance utilisée entre les centres de deux particules primaires a été estimée à partir de la littérature et non déterminée expérimentalement. La recherche mathématique du coefficient de recouvrement C_0 optimal montre que cette valeur est supérieure à 1, ce qui est physiquement impossible. Ainsi, même si la distance a été mal évaluée, nous pouvons conclure que ce modèle ne peut prédire correctement l'évolution de la perte de charge. L'incertitude sur la distance ne nous permet pas de pouvoir affirmer ce modèle comme étant le meilleur parmi ceux que nous avons testés.

L'approximation consistant à assimiler l'aérosol à un ensemble de particules primaires ne semble pas valide dans notre cas. Il nous faut donc tenir compte de la morphologie de la particule dans son ensemble et pas seulement de la particule primaire. Ceci passe par le volume de la particule occupée à savoir le diamètre équivalent en volume mais également la porosité de la particule.

4.4.2. Approche agglomérat

L'ensemble des modèles décrits précédemment présente l'inconvénient de devoir déterminer les paramètres de filtration et de dépôt tels que la porosité. De surcroît, ils ne tiennent que partiellement compte de la morphologie de l'aérosol. Nous allons donc à présent utiliser un modèle dans lequel rentre en jeu la morphologie sous la forme du facteur de forme dynamique de l'agglomérat.

La détermination de l'évolution du diamètre aérodynamique d_a fonction du diamètre de mobilité électrique d_m nous permet d'accéder aux informations morphologiques portées par la dimension fractale et l'évolution de la masse volumique effective ρ_e . Nous avons ainsi pu estimer le facteur de forme dynamique et le facteur de recouvrement entre deux particules primaires.

L'ensemble de ces paramètres nous permet de convertir la distribution en nombre par rapport au diamètre de mobilité électrique du SMPS en fonction du diamètre équivalent en volume par la relation (3.15) rappelée ici. Le facteur de forme dynamique χ est calculé selon la méthode exposée au §.3.3.4.4.3.

$$d_m = \frac{Cu(d_m)}{Cu(d_{ev})} \chi d_{ev} \quad (3.15)$$

La population submicronique en nombre en fonction du diamètre équivalent en volume suit une distribution log-normale de diamètre géométrique 65,9 nm et d'écart-type géométrique 1,44 (Figure 4.26).

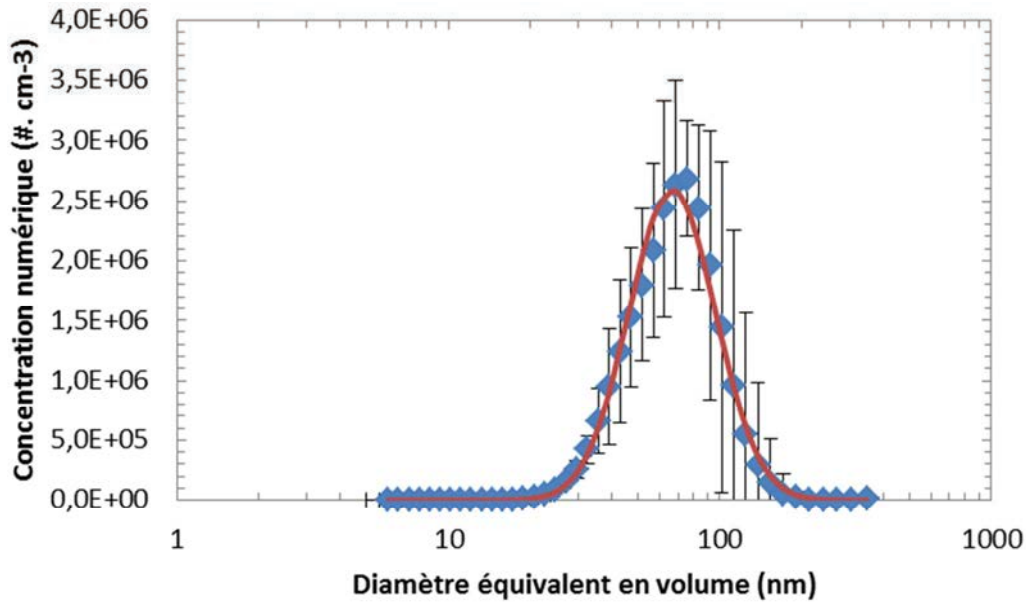


Figure 4.26 : Distribution de la population submicronique en nombre en fonction du diamètre équivalent en volume

A présent que nous disposons de la granulométrie en fonction du diamètre équivalent en volume, nous pouvons tester les différents modèles décrits précédemment en considérant la distribution granulométrique des agrégats et non celle des particules primaires sphériques et unitaires. Les figures 4.27 à 4.29 présentent les modèles de Novick, Endo et Endo-Cunningham et en utilisant la porosité expérimentale de 92,8 %. Le modèle de Thomas n'est prévu que pour les particules primaires. Il n'est donc pas utilisé ici.

De même que précédemment, les points expérimentaux sont représentés en bleu et le modèle en rouge. Les incertitudes de porosité ont été utilisées pour déterminer la sensibilité du modèle : la valeur moyenne est représentée en trait plein et les valeurs minimales et maximales en trait pointillé. Seule la population submicronique est considérée ici.

4.4 - Choix du modèle de perte de charge

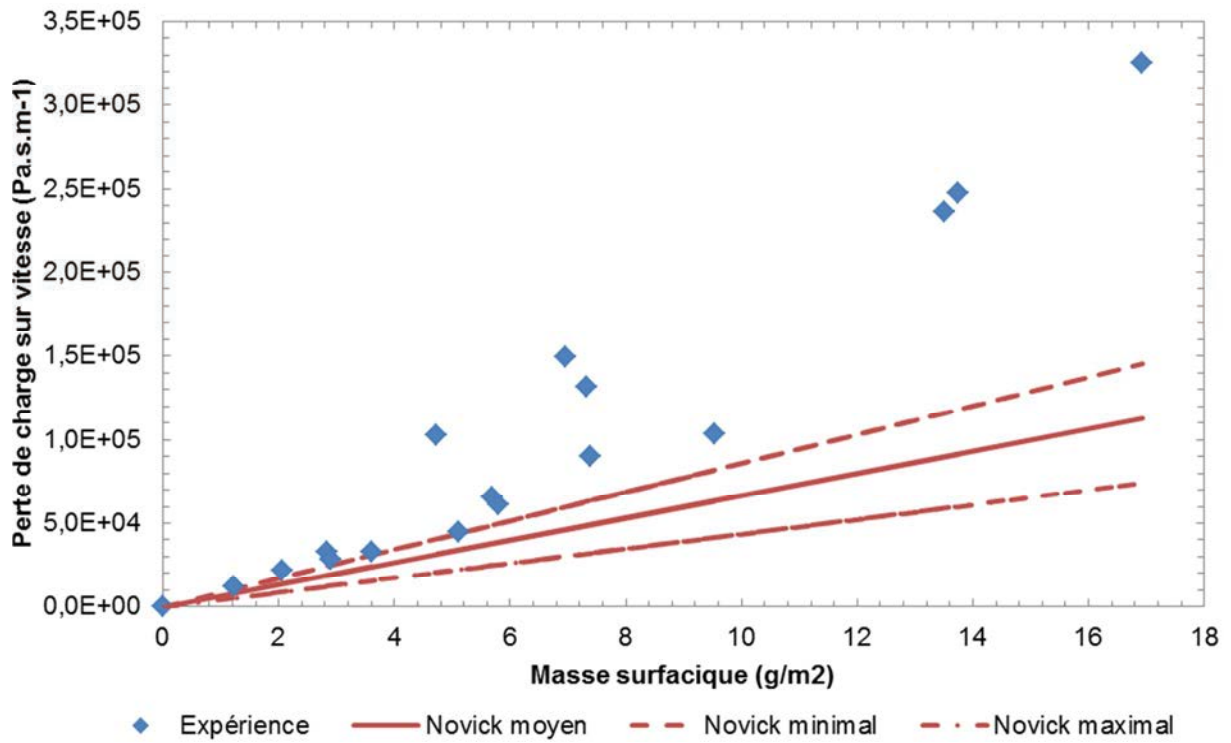


Figure 4.27 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle de Novick. Agglomérat

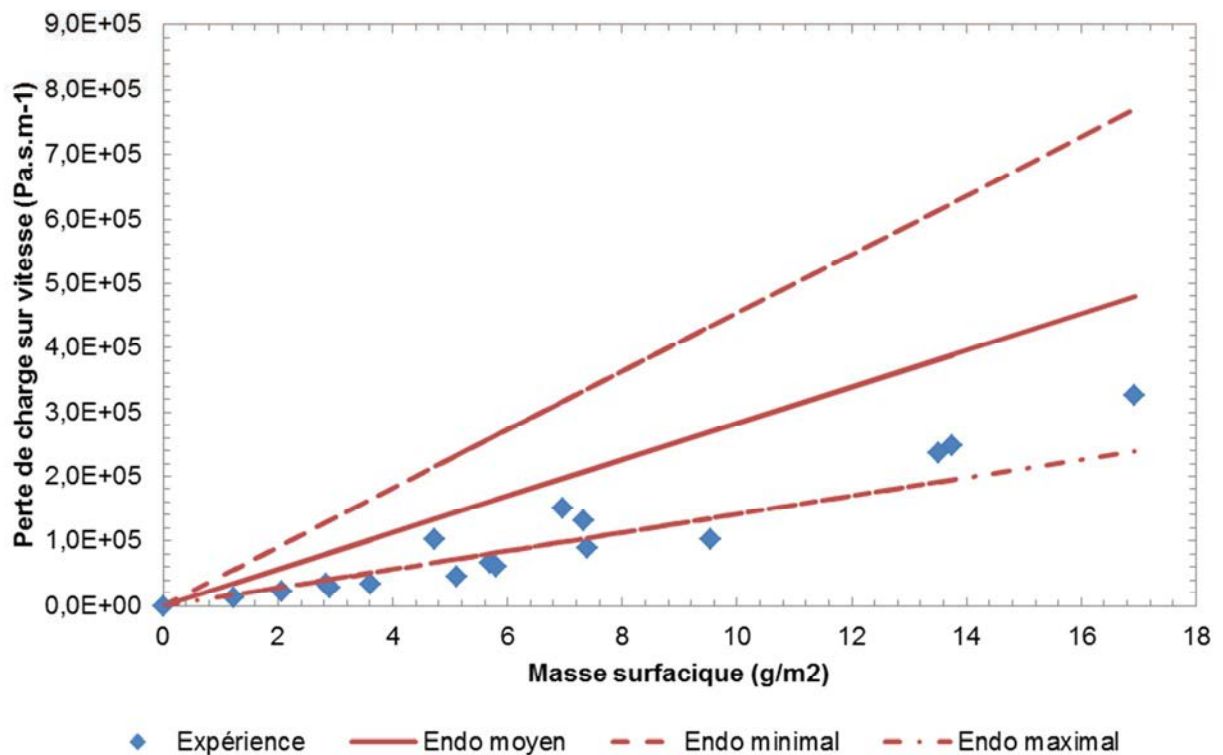


Figure 4.28 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle d'Endo. Agglomérat

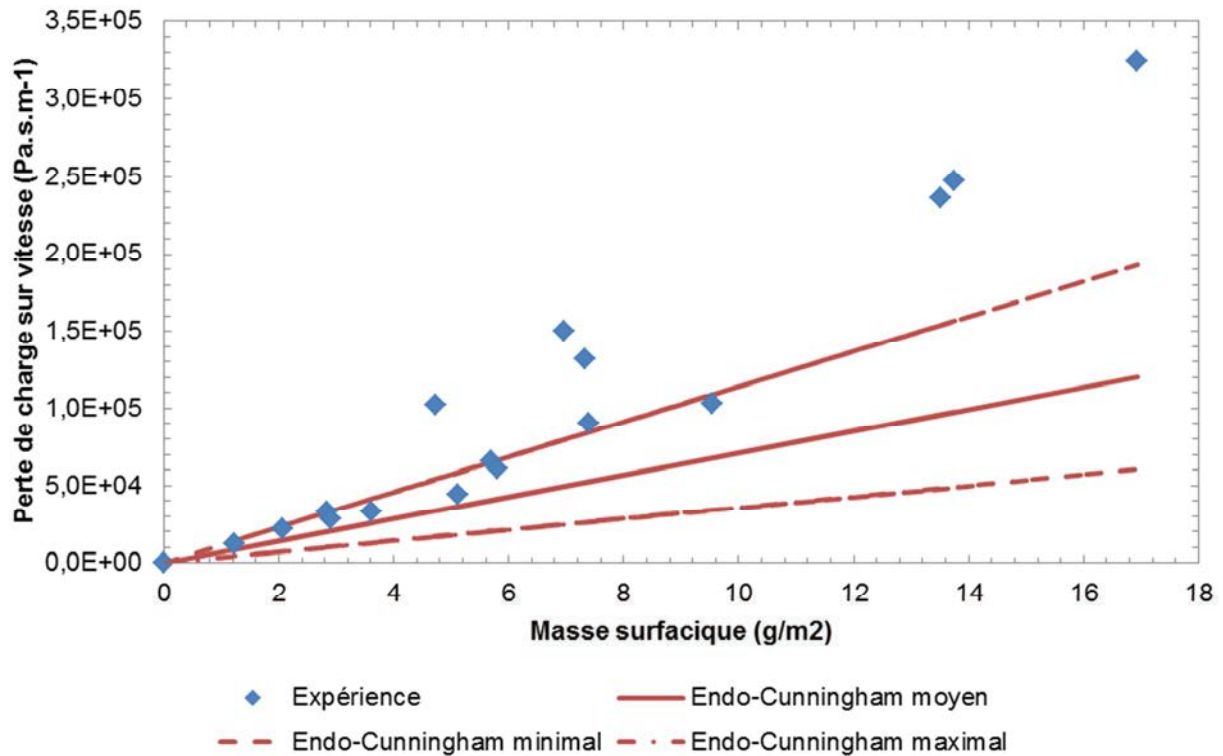


Figure 4.29 : Evolution de la perte de charge du media plan GLA lors du colmatage par la population submicronique des fumées de métallisation en fonction de la masse surfacique selon le modèle d'Endo-Cunningham. Agglomérat

Nous avons précédemment testé la prédiction des modèles de perte de charge en considérant l'aérosol comme un ensemble de particules primaires (§4.4). Il ressortait que les modèles n'étaient pas aptes à prédire correctement la perte de charge par cette approche. Il n'est donc pas envisageable dans notre cas de se limiter à cette approche. Les porosités indirectes obtenues étaient alors de l'ordre de 98 %.

Nous constatons de nouveau la sensibilité des modèles à la valeur de la porosité. Nous remarquons que l'ensemble des modèles est beaucoup plus proche de l'expérience en utilisant l'approche d'agglomérat ici plutôt que l'approche des particules primaires isolées (§4.4). Une détermination indirecte de la porosité par ces modèles donne des valeurs très différentes respectivement de 79,0, 95,4 et 86,3% pour les modèles de Novick, Endo et Endo-Cunningham. Le modèle d'Endo est très proche de la valeur de porosité expérimentale.

Grâce à la détermination des paramètres morphologiques des particules et notamment ceux concernant la structure spatiale, nous avons pu passer d'une distribution en nombre en fonction du diamètre en mobilité électrique à une distribution en fonction du diamètre équivalent en volume. Ce changement de point de vue permet d'appliquer les différents modèles en tenant compte de la particule dans son ensemble et non plus uniquement de ses particules primaires. Il en ressort une meilleure adéquation entre la théorie et l'expérience quel que soit le modèle utilisé. Le modèle de perte de charge d'Endo semble être le plus apte à prédire les valeurs expérimentales avec une bonne cohérence. De plus, la porosité indirecte obtenue par ce modèle se trouve dans les incertitudes de la porosité expérimentale que nous avons déterminé. Ce constat est surprenant car le modèle d'Endo est le seul parmi

les trois testés à ne pas tenir compte de la correction de la force de traînée réalisée par le coefficient de Cunningham.

En conclusion, il est possible de prédire la montée en perte de charge des médias plans filtrant les fumées de métallisation avec le modèle d'Endo issu de la littérature. Cependant, il est indispensable d'utiliser la distribution selon le diamètre équivalent en volume pour obtenir une prédiction correcte.

4.5. Conclusion

Ce chapitre était dédié à la caractérisation du dépôt et à la prédiction de la perte de charge dans le colmatage d'un filtre par les particules submicroniques contenues dans les fumées de métallisation. En effet, la perte de charge dépend à la fois des caractéristiques de l'aérosol que nous avons précédemment déterminé et également des caractéristiques du dépôt. Parmi les caractéristiques du dépôt, citons la porosité qui est un paramètre primordial dans l'écoulement du flux d'air et est donc déterminante dans la perte de charge engendrée.

Notre étude sur filtre plan membranaire nous a permis de déterminer une porosité expérimentale de 93 % avec une incertitude de 3 %. De plus, cette étude a mis en lumière deux faits. En premier lieu, la surface du dépôt est homogène. Il n'y a donc pas de passages préférentiels dans la filtration. En second lieu, nous avons montré l'absence de corrélation entre la porosité du dépôt et la vitesse de filtration entre 1,56 et 30,9 cm.s⁻¹. Ceci démontre d'une part qu'il est inutile de redéterminer la porosité du dépôt si la vitesse de filtration est modifiée et d'autre part, que le dépôt est incompressible à ce stade de filtration. Ce fait est cohérent avec la forte porosité expérimentale relevée et la structure ouverte des agglomérats. Endo (Endo et al., 1998a) a par ailleurs montré qu'un gâteau formé de particules de faible taille est difficilement compressible.

Nous avons tenté de retrouver cette valeur de porosité expérimentale par des calculs grâce à une approche de double porosité inter-agrégat/intra-agrégat. La porosité expérimentale demande en effet beaucoup de mesures coûteuses en temps. Cette estimation théorique s'est révélée difficile et imprécise. Elle nécessite en effet la connaissance ou l'estimation de nombreux paramètres intermédiaires tels que le nombre de particules primaires par agglomérat ou encore le préfacteur fractal. De plus, ces calculs se basent sur l'hypothèse d'une distribution monodispersée, ce qui ne reflète pas notre granulométrie. Malgré ces inconvénients inévitables, nous sommes parvenus à évaluer un ordre de grandeur de la porosité théorique de 99%. Cette valeur reste dans l'ordre de grandeur de la porosité expérimentale mais elle reste trop importante pour pouvoir la considérer comme exacte. Il ne semble donc pas possible en l'état actuel de nos connaissances sur les fumées de métallisation de prédire la porosité du dépôt.

Le Tableau 4.8 récapitule les différents paramètres caractérisant le dépôt des particules sur le média filtrant.

Tableau 4.8 : Synthèse des résultats relatifs au dépôt

Porosité expérimentale	93 ± 3 %
Porosité théorique (approche double porosité §4.3)	99,6 ± 0,3 %
Préfacteur fractal	2,4

La détermination de la porosité est une étape indispensable pour prédire l'évolution de la perte de charge d'un média filtrant en filtration. Quatre modèles de perte de charge issus de la littérature ont été testés selon deux approches dans le but de choisir le modèle le plus apte à prédire la perte de charge du média filtrant. Il ressort de ce travail d'une part, que quel que soit le modèle mis en œuvre, l'approche simpliste qui consiste à assimiler l'aérosol à un ensemble de particules primaires sans prendre en compte la structure des liants sous-estime la perte de charge. Il est donc nécessaire de considérer la nature agglomérat de la particule. D'autre part, nos comparaisons montrent que le modèle d'Endo-Cunningham semble être le plus apte à prévoir la perte de charge expérimentale dans l'approche particule primaire. Dans l'approche agglomérat, le modèle d'Endo est en bonne adéquation avec les points expérimentaux.

En conclusion de cette partie, notre travail sur le colmatage des particules submicroniques contenues dans les fumées de métallisation sur filtre plan a permis de déterminer expérimentalement la porosité expérimentale. Cette porosité n'a pu être retrouvée par des calculs. Grâce à ce paramètre essentiel, nous avons pu tester quatre modèles de perte de charge de la littérature selon deux approches. Il ressort que le modèle d'Endo-Cunningham a été retenu comme le meilleur modèle dans l'approche particules primaires et le modèle d'Endo pour l'approche agglomérat.

Chapitre 5

Cycles colmatage/décolmatage des médias plissés et plans

Le chapitre 4 nous a apporté des connaissances supplémentaires sur le colmatage des médias plissés par les fumées de métallisation. Nous avons notamment pu estimer divers paramètres dont entre autres la porosité et le facteur de forme dynamique. L'approche la plus adaptée à la prédiction de la perte de charge a également été déterminée. Si nous avons connaissance de nombreux paramètres conditionnant le colmatage d'un filtre, nous ne sommes pas encore attachés à la partie de régénération du média filtrant, c'est-à-dire le décolmatage.

Dans cette partie, nous aborderons la phase de décolmatage qui consiste à régénérer le filtre en retirant le dépôt formé au cours de la phase de filtration et aux cycles dans leur ensemble à savoir le colmatage et le décolmatage. Le but de ce chapitre est de rechercher un moyen d'améliorer le décolmatage des médias plissés afin d'obtenir une perte de charge résiduelle faible et par voie de conséquence prolonger la durée de vie des filtres.

Pour ce faire, nous procéderons en quatre temps. Nous présenterons dans un premier temps les différentes connaissances relatives à ce sujet disponibles dans la littérature et plus particulièrement la description des cycles de colmatage/décolmatage ainsi que les décolmatages utilisés classiquement et leur efficacité associée. Nous testerons plusieurs types de décolmatages : avec et sans filtration pendant l'opération de décolmatage. Ces décolmatages sont dits « on-line » et « off-line ». Nous axerons notre recherche sur la compréhension du décolmatage partiel observé en industrie. Cet axe nous amènera à étudier le décolmatage de fumées de métallisation sur un filtre plan pour rechercher l'existence d'une possible masse critique surfacique entraînant un décolmatage efficace. Enfin, pour clore ce chapitre, nous mettrons en œuvre une technique alternative.

5.1. Bibliographie

5.1.1. Décolmatage

5.1.1.1. Introduction

La perte de charge d'un l'élément filtrant est le paramètre majeur utilisé dans la description du fonctionnement. C'est pourquoi, lorsque la perte de charge devient trop importante, l'installation ne peut plus assurer le débit de filtration. Il en résulte alors une chute du débit de filtration et donc une baisse de l'efficacité de captage. Avant d'atteindre cet état critique, le média doit être nettoyé. Cette opération, appelée décolmatage, consiste à créer des forces de cisaillement au sein du gâteau. Si ces forces sont supérieures aux forces d'adhésion liant le gâteau au support filtrant, le gâteau se détachera pour terminer son mouvement. Le décolmatage sera alors efficace.

Trois types de décolmatage existent :

1. Ultrasons

Ce type de décolmatage n'est pratiquement plus utilisé aujourd'hui à cause de ses performances insuffisantes par rapport aux autres techniques disponibles. En effet, son utilisation ne peut se faire qu'en mode off-line c'est-à-dire avec filtration coupée. En plus des gênes sonores, ce décolmatage remet beaucoup de poussières en suspension trop légères pour tomber dans la trémie par inertie et laisse une couche résiduelle trop faible pour avoir une efficacité de filtration efficace à la reprise de la filtration.

2. Mécanique

Ce décolmatage peut être manuel ou automatique. Il consiste à décrocher le gâteau par des vibrations mécaniques de secouage. Si ce type de décolmatage était à peu près efficace pour les aérosols grossiers, il est totalement inefficace pour des particules fines dont les forces d'adhésion sont beaucoup plus importantes.

3. Contre-courant

Deux types de contre-courant sont rencontrés en milieu industriel. Soit l'injection d'un grand volume d'air à contre-courant sous faible pression, soit l'injection d'un petit volume d'air à contre-courant sous haute pression. Le dernier décolmatage est appelé décolmatage par pulse d'air (pulse-jet) ou décolmatage pneumatique. Il est le plus utilisé pour son efficacité et est très populaire pour sa facilité de mise en œuvre, son déclenchement automatique ainsi que son efficacité vis-à-vis des poussières. Il consiste à envoyer à contre-courant, c'est-à-dire sur la surface propre du filtre, un volume d'air faible sous une forte pression (2-6 bars) et pendant un très court laps de temps (100 ms le plus généralement). Le pulse d'air permet d'inverser le sens de l'écoulement du flux pendant un court instant. L'écoulement se fait donc alors du côté propre du filtre vers le côté colmaté. Le média va alors se déformer et se

tendre brusquement sous l'effet de l'à-coup d'air. Lorsque le média est tendu au maximum, des forces de cisaillement s'exercent sur le gâteau. A la fin du pulse d'air, le média revient brusquement à sa place initiale. Le gâteau ne peut suivre ce mouvement à cause de son inertie et tombe.

Les paramètres ajustables dans ce type de décolmatage sont :

1. La pression de décolmatage.
Plus la pression sera forte, meilleur sera le décolmatage. En revanche, le média, support mécanique du gâteau, doit supporter ce choc. Un choc trop important résulterait à un vieillissement prématuré du filtre et donc une diminution de la durée de vie du filtre.
2. Le temps d'ouverture de la vanne.
Ce temps doit être de l'ordre d'au moins une centaine de millisecondes pour assurer un choc suffisamment important et long. Si ce temps est trop long, il sera difficile de maintenir une forte pression. De plus, le décolmatage n'en serait pas beaucoup amélioré.

Le décolmatage pneumatique peut être utilisé lorsque la filtration de l'aérosol est en cours (mode « on-line ») ou lorsque la filtration est arrêtée (mode « off-line »). Le mode on-line est souvent utilisé car il permet de maintenir constamment la filtration. Il est cependant moins efficace que le mode off-line car la vitesse de décolmatage est diminuée par le flux d'air de filtration. Le gâteau aura plus de facilité à rester plaqué à la surface du média. Le choix du mode dépend donc de la facilité à décolmater le gâteau. Dans le cas d'un gâteau facilement décolmatable tel que des poussières microniques de bois, le décolmatage on-line sera préférable. Cependant, si celui-ci ne donne pas de performance satisfaisante, le décolmatage off-line permettra d'améliorer l'efficacité de décolmatage.

5.1.1.2. Mécanisme de décolmatage

Le décolmatage pneumatique peut être dissocié en deux phases : accélération puis décélération du média. Bien que beaucoup d'auteurs s'accordent pour définir la pression de décolmatage comme un paramètre déterminant, la part d'efficacité du décolmatage pneumatique est encore mal attribuée. Ainsi, pour certains auteurs, le décolmatage est une association du choc du média dû au pulse couplée à une perméation d'air à contre-courant (Dennis et al., 1975; Sievert & Loeffler, 1987; Lu & Tsai, 1999, 2003). Pour d'autres auteurs (Ellenbecker & Leith, 1979; Humphries & Madden, 1983), le décolmatage pneumatique peut se réduire à l'accélération due au choc brutal. La majorité des données disponibles sur le décolmatage provient de l'étude des filtres à manches. Le mécanisme de décolmatage d'une manche est décrit dans la littérature par Allen (Allen et al., 1999) en quatre phases.

1. De l'immobilité à l'arrivée du pulse d'air

Au départ, le filtre est soit en filtration (mode de décolmatage on-line) soit au repos (mode de décolmatage off-line). Le passage du flux d'air s'effectue de l'amont vers l'aval, c'est-à-dire de l'extérieur de la manche vers l'intérieur. La pression à l'intérieure de la manche est inférieure à la pression extérieure. La manche est donc serrée contre sa cage support (Figure 5.1 extraite de la thèse de Simon (Simon, 2005)).

2. De l'arrivée du pulse d'air au début du mouvement du média

La vague provoquée par le pulse d'air arrive sur la surface intérieure du média. Il en résulte une augmentation de la pression intérieure et donc une réduction du flux de filtration à travers le média. Le mouvement du média vers l'extérieur ne peut se faire que lorsque la pression intérieure égale puis surpasse la pression extérieure. Ainsi, tant que la pression intérieure est inférieure à la pression extérieure, le média est immobile. Le mouvement du média débute dans le cas de forces de cohésion du gâteau négligeable lorsque la pression intérieure dépasse la pression extérieure.

3. Du début du mouvement du média à l'apparition de forces de détachement

La forte pression intérieure de la manche par rapport à la pression extérieur déplace le filtre. Le média quitte le contact de sa cage support et la manche se gonfle. Il n'y a pas encore de résistance au mouvement du média vers l'extérieur à ce moment car celui-ci est très souple. Ce déplacement crée une accélération du média et par conséquent du dépôt adhérent à la surface du média. Le dépôt est ainsi plaqué contre le média. Au fur et à mesure du gonflement de la manche, le média se tend de plus en plus : des contraintes mécaniques due au média lui-même apparaissent et ralentissent l'expansion du média. Ces tensions mécaniques responsables de la décélération du média sont à l'origine des forces de détachement.

4. De l'apparition des forces de détachement au déplacement maximal

Le média continue son déplacement sous l'effet de la pression intérieure bien que ralenti par des contraintes mécaniques. Ces contraintes deviennent de plus en plus importantes avec le déplacement du média. Lorsque la manche atteint son amplitude maximale autorisée par les contraintes mécaniques du média, le média subit une brusque décélération. Il s'exerce sur le dépôt des forces d'adhésion, de cohésion et de détachement. Les forces d'adhésion ont tendance à maintenir le dépôt contre la surface du média alors qu'il est simultanément entraîné vers l'extérieur sous l'effet de sa masse (inertie). Ceci entraîne l'apparition des forces de détachement entre le dépôt et la surface du média. Si ces forces de détachement sont plus importantes que les forces d'adhésion liant le dépôt à la surface du média, alors le gâteau se détachera du média pour continuer son mouvement vers l'extérieur. Le média continue son mouvement vers l'intérieur jusqu'à se replacer sur la cage support. Le média

oscille alors sous l'effet de son élasticité et de son inertie jusqu'à ce que l'énergie des oscillations soit totalement dissipée. Le média retourne alors à sa première phase d'immobilité.

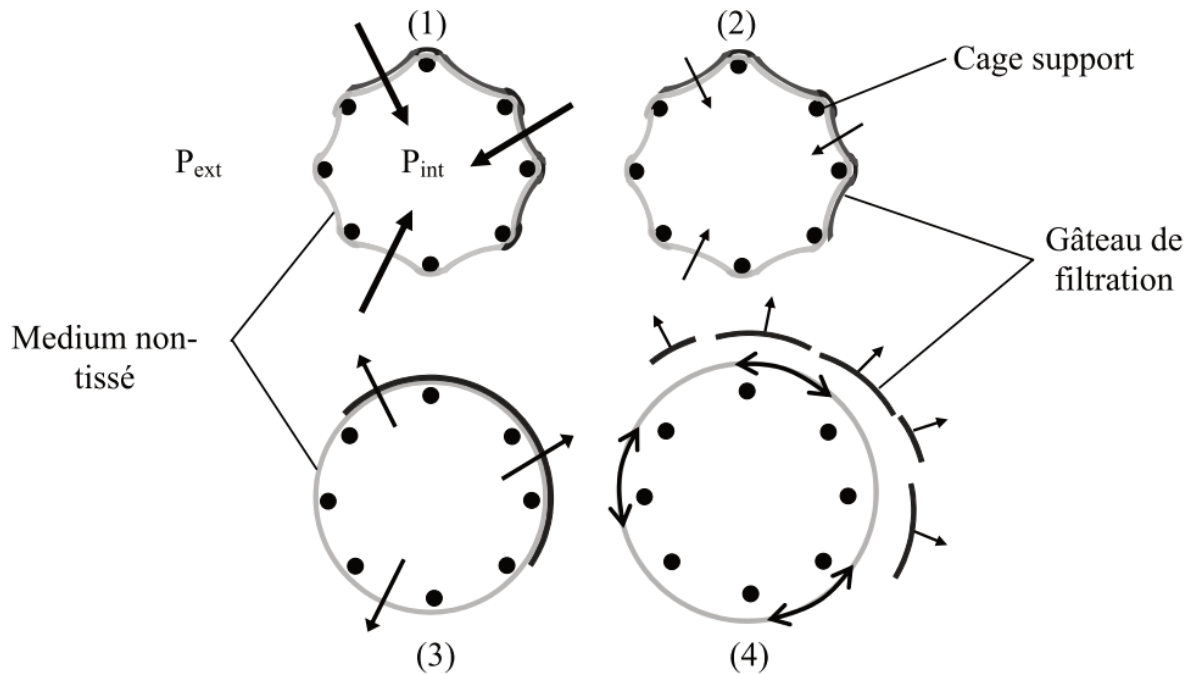


Figure 5.1 : Schémas des différentes étapes du mouvement d'une manche lors d'un décolmatage pneumatique. P_{int} : pression intérieure, P_{ext} , pression extérieure (Simon, 2005)

5.1.1.3. Efficacité du décolmatage

5.1.1.3.1 Pression de décolmatage

Plusieurs études montrent que le facteur déterminant pour un décolmatage efficace est la surpression ΔP_{over} appliquée sur le filtre (Dennis et al., 1981; Humphries & Madden, 1983; De Ravin et al., 1988; Sievert & Löffler, 1989; Rothwell, 1990; Lu & Tsai, 1996, 1999; Lo, Chen, et al., 2010). La surpression ΔP_{over} correspond à la différence entre la perte de charge maximale P_S pendant le décolmatage et la perte de charge du filtre ΔP avant décolmatage (éq (5.1)).

$$\Delta P_{over} = P_S - \Delta P \quad (5.1)$$

Cette grandeur est illustrée sur la Figure 5.2

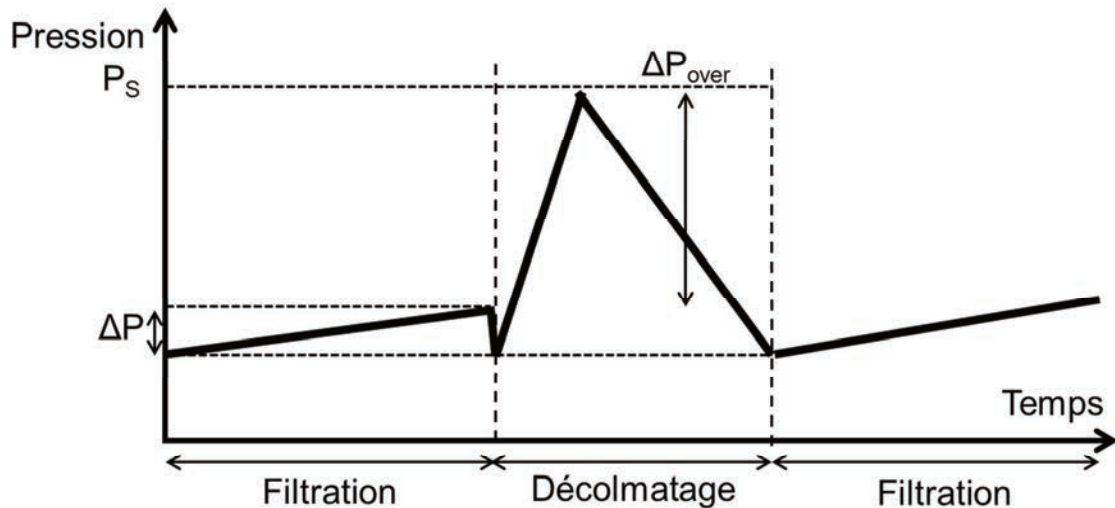


Figure 5.2 : Illustration de la surpression ΔP_{over} du décolmatage (Lo, Chen, et al., 2010)

De nombreuses études se sont intéressées au décolmatage des dépoussiéreurs à manches (Leith & First, 1977; Leith et al., 1977; Leith & Ellenbecker, 1980; Smith et al., 1998). Il a en outre été montré que la pénétration des particules était indépendante de leur taille pour une gamme de particules comprises entre 0,3 et 4 μm mais dépendant de la vitesse de filtration. Une vitesse de filtration élevée favoriserait la pénétration. Kim (Kim, Wang, Emery, et al., 2009) a également constaté que la pénétration d'un agglomérat est moins importante que celle d'une particule sphérique. Ceci s'explique par une longueur d'interception différente.

Diverses études sur les filtres à manches (Lu & Tsai, 1996, 1998, 1999; Ju et al., 2001) identifient les paramètres déterminants dans le décolmatage : la pression de décolmatage, le diamètre d'orifice, la distance entre ce dernier et le média filtrant et la durée du pulse. Nous retrouvons à nouveau la pression de décolmatage comme paramètre déterminant du décolmatage d'un filtre. Ces études mettent également en lumière l'existence d'une surpression critique pour laquelle le décolmatage est efficace bien que le terme de pression critique soit utilisé. Ils ajoutent que le décolmatage n'est que faiblement amélioré pour une pression supérieure à la pression critique. Ces conclusions concordent avec les travaux de Humphries (Humphries, 1981; Humphries & Madden, 1983) qui notent un décolmatage hétérogène pour une pression faible (inférieure à la pression critique).

5.1.1.3.2 Mode opératoire

Peu d'auteurs se sont intéressés à l'influence du mode opératoire de décolmatage. A notre connaissance, Hindy (Hindy, 1986) a étudié l'influence de trois modes opératoires de décolmatage pneumatique sur la perte de charge. Ces modes sont un décolmatage déclenché pour une perte de charge fixe de 1500 Pa ou 2500 Pa. Ces types de décolmatage sont qualifiés de « clean-on-demand » (Lo, Chen, et al., 2010). Le dernier mode opératoire testé est fixé toutes les minutes. Il est appelé « clean-on-time » par Lo. Son étude met en évidence une différence d'évolution de la perte de charge selon le mode « clean-on

demand » ou « clean-on-time » utilisé. Il observe ainsi une évolution presque deux fois plus rapide pour le mode « clean-on-time » que pour le mode « clean-on-demand » après 70 h de fonctionnement. Le meilleur mode opératoire semble celui déclenché pour la plus grande perte de charge (2500 Pa) et permet de minimiser la résistance du filtre et de réduire la consommation énergétique du filtre (Hindy, 1986).

Lo et al (Lo, Chen, et al., 2010; Lo, Hu, et al., 2010) se sont basés sur les études des filtres à manches de la littérature et celle de Hindy pour étudier le mode opératoire de décolmatage de filtres plissés. Les modes opératoires utilisés sont les mêmes que ceux de Hindy, à la différence que les médias sont plissés. Ils confirment certaines données de la littérature, à savoir que le décolmatage est efficace que si la pression de décolmatage est supérieure à la pression critique et l'importance du traitement de surface du média. Un média traité bénéficiera de forces d'adhésion liant le dépôt à sa surface plus faible. Il en résulte un décolmatage plus efficace et donc une pression résiduelle plus faible et par voie de conséquence une augmentation du temps de vie du filtre. Ils montrent également qu'il existe une pression critique de décolmatage quel que soit le mode opératoire de décolmatage utilisé. Leurs travaux appuient le fait que le pulse d'air doit durer un certain temps pour être efficace et que au-delà de ce laps de temps, la durée n'a qu'une faible influence. De plus, une augmentation de la durée du pulse améliore le décolmatage que si la pression de décolmatage est suffisante. Toutefois, cette amélioration reste faible.

Il apparaît dans leurs publications qu'un mode de décolmatage n'est pas à privilégier par rapport à un autre. En effet, l'efficacité du mode est lié à la structure plissée du filtre et notamment le rapport de plissage β . Ce rapport, défini comme le ratio de la hauteur du pli sur le pas de plissage (Figure 5.3), détermine le mode de nettoyage optimal. La géométrie du filtre conditionne l'écoulement pendant le décolmatage et donc la répartition de la pression statique sur la surface du média.

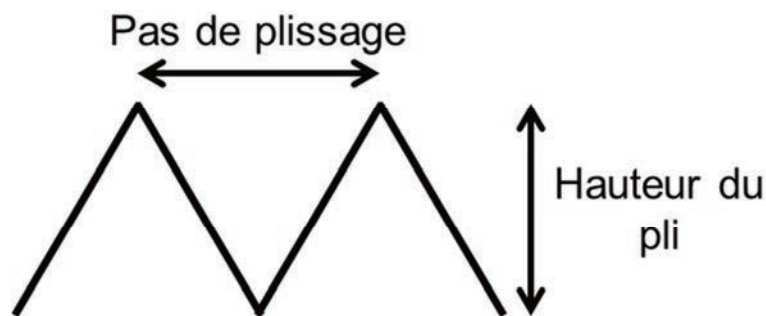


Figure 5.3 : Illustration du pas de plissage et de la hauteur d'un filtre plissé.

Le comportement du décolmatage semble changer pour un rapport β de 4. Ainsi, les auteurs préconisent un mode de décolmatage déclenché par une perte de charge limite (« clean-on-demand ») pour un rapport β inférieur à 4 et déclenché après une période fixe (« clean-on-time ») pour les filtres possédant un β supérieur à 4. Notons que Fotovati (Fotovati et al., 2011) n'a pas observé de valeur charnière entraînant un brusque changement de comportement.

L'étude complémentaire numérique de Lo (Lo, Hu, et al., 2010) permet de tracer le profil de la pression statique sur la surface du filtre dans des conditions de décolmatages données

(Figure 5.4 extraite de la publication de Lo). Cette étude montre que la pression statique surfacique due au pulse de décolmatage est faible en haut du filtre et augmente pour devenir maximal en bas du filtre. C'est pourquoi, la partie haute de la cartouche est difficile à régénérer.

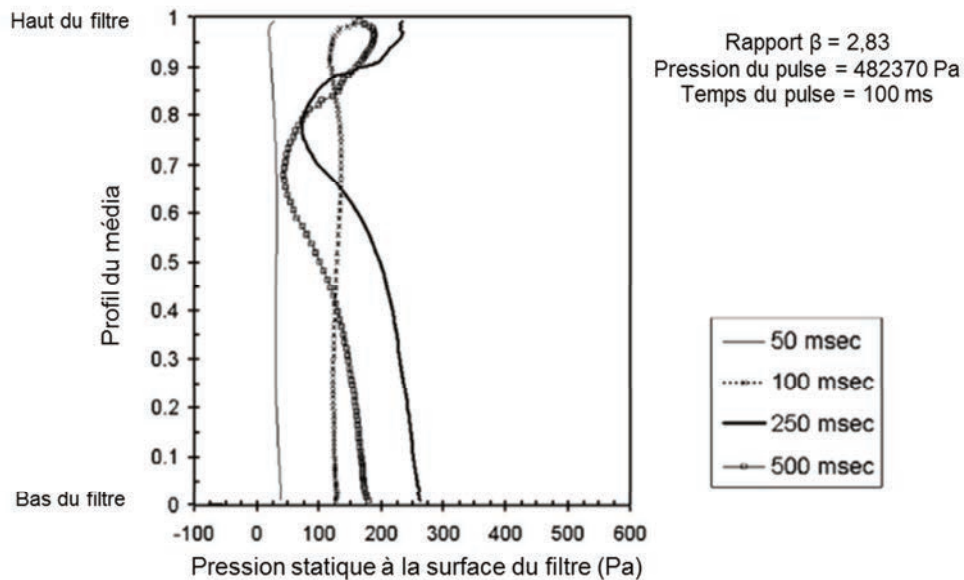


Figure 5.4 : Profil de la pression statique d'un filtre plissé.

Le décolmatage des cartouches de rapport β élevé n'est pas homogène en raison de la grande variabilité de la pression statique le long de la surface du média. Cependant, cette variabilité est observée seulement sur l'axe du pulse. A noter que des résultats similaires avaient déjà été observés sur les filtres à manches (Simon, 2005).

5.1.1.3.3 Forces d'adhésion/décolmatage

Un décolmatage est effectif si les forces de cisaillement créées lors du déplacement du média sont supérieures aux forces d'adhésion globales présentes à l'interface surface du média/particules (Dennis & Klemm, 1980). Ces forces peuvent être de type covalente (Van der Waals), capillaire ou électrostatique (Simon, 2005).

La résultante de forces d'adhésion et de cohésion maintenant le gâteau à la surface du média est décrite par Leith (Leith & Allen, 1986) :

$$F_{adhésion\ totale} = C_1 F_{co} \frac{m_g}{S_f} + F_{ad} \quad (5.2)$$

avec C_1 , une constante de cohésion ($m^2 \cdot g^{-1}$), F_{co} , les forces de cohésion au sein du gâteau par unité de surface. Elles dépendent de la masse surfacique du gâteau et sa structure en

termes de porosité. F_{ad} représente les forces d'adhésion. Elles dépendent à la fois du dépôt et du média (structure, composition, usure).

Ce bilan de forces est difficile à appliquer concrètement pour prédire un décolmatage satisfaisant. Seville (Seville et al., 1989) définit une perte de charge critique permettant le décollement du gâteau. Tout comme le bilan de force sur le gâteau par Leith, la perte de charge critique dépend à la fois de la masse surfacique du gâteau mais également de la vitesse du flux d'air à contre-courant U_d entraînant les forces de cisaillement nécessaire au décollement du gâteau.

Aguiar (Aguiar & Coury, 1992) montre que la pression critique de détachement du gâteau est liée au diamètre de particules et à la structure du gâteau. Selon lui, la pression critique diminue quand le diamètre de la particule augmente. Ce constat est tout à fait cohérent avec une réduction de surface spécifique pour les grands diamètres et donc une zone de contact plus faible avec la surface du média. Les forces d'interaction/adhésion entre les particules et la surface du média sont donc plus faibles. Suite à cette expérience, Aguiar modifie l'équation de Rumpf (Rumpf, 1962) pour estimer une perte de charge critique (éq (5.3)).

$$\Delta P_{critique} = \omega \frac{(1 - \varepsilon_g)}{\varepsilon_g} \frac{1}{d_p} \quad (5.3)$$

avec ω , constante expérimentale et ε_g , la porosité du dépôt de particules.

Notons que le diamètre spécifié dans cette relation est le diamètre de la particule en tant que grain. Il n'y a donc pas d'indication pour savoir quel diamètre équivalent en volume est approprié dans le cas d'un agglomérat, à savoir le diamètre de la particule primaire ou de l'agglomérat.

Cette relation met également en valeur le fait que la perte de charge critique dépend de la taille de la particule constituant le gâteau. Plus le diamètre de la particule est élevé, plus la perte de charge à appliquer pour décolmater sera faible. Ceci est une conséquence de la réduction de la surface spécifique des particules. Les forces d'adhésion surface du média/particules seront donc plus faibles, ce qui facilitera le décollement du gâteau. Inversement, le décollement du gâteau sera plus difficile pour des particules de petite taille.

D'après la relation, la perte de charge critique est proportionnelle au rapport $\frac{(1-\varepsilon_g)}{\varepsilon_g}$. Or, ce rapport décroît quand la porosité du dépôt ε_g augmente. Ceci signifie que pour des gâteaux très poreux tels que ceux observés lors de colmatage par des nanoparticules, la perte de charge critique devrait diminuer. Cependant, la perte de charge critique est également inversement proportionnelle au diamètre de la particule. Ainsi, diviser la taille des particules par 100 revient à augmenter la perte de charge critique par 100. Or, nous avons vu précédemment que la porosité du dépôt dépend de la taille de la particule couplée avec la structure de la particule elle-même (dimension fractale). Ainsi, pour $\omega = 1$, un gâteau constitué par des particules de 1 μm aura une porosité d'environ 0,5 et demandera une pression critique de décolmatage de 10^6 Pa alors qu'un gâteau constitué par des nanoparticules de 50 nm de porosité de 95 % (Kim, Wang, Emery, et al., 2009) demandera

une pression de 10^7 Pa soit une pression de décolmatage dix fois plus importante. Cette observation explique les difficultés à décolmater les gâteaux de nanoparticules.

Plusieurs auteurs mettent en évidence l'influence de la masse surfacique du gâteau sur la force de détachement à appliquer pour décrocher le gâteau. Ainsi, plus la masse surfacique est importante, plus le gâteau sera facilement décolmatable (Dennis et al., 1975; Morris et al., 1987; Sievert & Löffler, 1989; Aguiar & Coury, 1992; Koch et al., 1992, 1996). En effet, les forces de cohésion internes au gâteau sont d'autant plus importantes que le gâteau est épais. Ces forces vont aller à l'encontre d'une fissuration partielle du gâteau entraînant une décolmatage par plaques. Ce type de décolmatage est très observé pour les gâteaux de faible épaisseur. Le flux d'air de décolmatage passe alors par ces passages préférentiels diminuant ainsi grandement l'efficacité du décolmatage. Dans le cas de gâteaux épais, les forces de pression dû au pulse d'air peuvent exercer sur le gâteau et le média leur poussée maximale et donc permettre un décolmatage plus efficace.

Le matériau dont est constitué le média et le traitement de surface jouent un rôle important dans les interactions surface du média/particule et donc sur le décolmatage. Ainsi, Leung (Leung & Hung, 2008) constatent que les particules filtrées pénètrent moins profondément dans le cas d'un filtre à fibre constitués par des fibres nanométriques que par des fibres microniques. Par ailleurs, un média en polypropylène créera des forces d'adhésion plus importantes qu'un média en acrylique ou en polyester (Tanabe et al., 2011). Il sera donc plus difficile à décolmater. Tanabe explique ce comportement par une structure du polypropylène plus compacte que celles des autres médias testée. La saturation du média est donc plus rapide et les forces d'adhésion plus importantes (Tanabe et al., 2011). Il en résulte un besoin d'énergie accru pour décrocher le gâteau. Le traitement de surface permet de lisser la surface du média et ainsi de réduire les forces d'adhésion entre les particules et la surface du média (Muller et al., 1987).

Le taux d'humidité influence le colmatage (§4.1.2.1) mais également le décolmatage. Il a pour effet de renforcer la cohésion du gâteau (Joubert et al., 2008). Cette cohésion devrait comme dans le cas d'un gâteau épais améliorer le décolmatage.

Certains auteurs montrent que le décolmatage d'un gâteau de particules dans un gaz chaud dépend de la structure du dépôt (Kanaoka & Kishima, 1999). Plus le dépôt est dense, plus la porosité sera faible et plus le décolmatage sera inefficace. Si la compression du gâteau évoquée par Kanaoka est un phénomène couramment observé pour les particules de plusieurs dizaines de micromètres jusqu'à quelques micromètres (Choi et al., 2004), il n'est que pas observé pour les particules nanométriques (Kim, Wang, Emery, et al., 2009).

5.1.2. Description des cycles de colmatage/décolmatage

La perte de charge de l'élément filtrant augmente au cours de la phase de filtration. Lorsque celle-ci devient trop élevée et avant que l'installation ne s'use prématurément, le décolmatage est déclenché pour régénérer le média filtrant.

La perte de charge après décolmatage est appelée perte de charge résiduelle. Trois phases décrivent la vie des cycles de colmatage/décolmatage (Lo, Chen, et al., 2010) (Figure 5.5).

1. Mise en régime

Le média plissé démarre la filtration à l'état vierge. Il se passe un certain temps avant l'apparition du dépôt à la surface du filtre (filtration en profondeur et transition). L'augmentation linéaire de la perte de charge après le début de la formation du gâteau correspond à la phase de filtration en surface. Si la phase de filtration est maintenue trop longtemps, alors le média plissé entre en phase de réduction de surface caractérisée par une augmentation très forte de la perte de charge (cf §4.1.1).

Les premiers décolmatages témoignent d'une forte augmentation de la perte de charge résiduelle. Ceci provient à la fois du dépôt formé en profondeur très difficilement décolmatable mais également des forces d'adhésion liant le dépôt en surface à la surface du média. C'est dans cette phase que les cycles de colmatage/décolmatage sont les plus longs.

2. Opération stable

Après plusieurs cycles de filtration, les cycles du média se stabilisent : l'accroissement de la perte de charge est stable et le décolmatage permet de régénérer le média à une pression résiduelle augmentant peu. Cette stabilisation se traduit par une augmentation beaucoup plus lente de la perte de charge résiduelle et des cycles de colmatage/décolmatage plus court que dans la phase de mise en régime mais également plus réguliers. Dans cette phase, le décolmatage pneumatique parvient à régénérer suffisamment le média pour assurer la filtration de l'aérosol. Cependant, une partie du dépôt en surface ne peut être décolmatée. Stöcklmayer et al (Stöcklmayer & Höflinger, 1998) émettent l'hypothèse que l'augmentation de la perte de charge résiduelle est due à une compression du gâteau interne de filtration. Ce gâteau se situe entre la couche la plus extérieur du dépôt (face amont de l'écoulement) et la surface du média. Lorsque ce gâteau devient proche de l'incompressibilité, la perte de charge du gâteau interne s'accroît et les particules collectées sont accumulées à la surface de ce dépôt. Les particules sur la couche la plus récente seront alors expulsées lors du prochain décolmatage. Les auteurs ajoutent que dans le cas d'un gâteau compressible contrairement à ce que nous avons mis en évidence dans le chapitre précédent, le gâteau va continuer de s'épaissir et entraîner une forte augmentation de la perte de charge.

3. Vieillessement

Le décolmatage pneumatique ne parvient plus à décolmater efficacement le gâteau accroché à la surface du média plissé. La pente de filtration de la perte de charge résiduelle augmente à nouveau très fortement. Les cycles de colmatage/décolmatage deviennent très courts. L'installation est presque continuellement en phase de décolmatage. Ces décolmatages à répétition vieillissent prématurément le média ainsi que l'ensemble de

l'installation dont l'extracteur. Le média ne peut plus continuer la filtration ou être décolmaté. Il doit être changé.

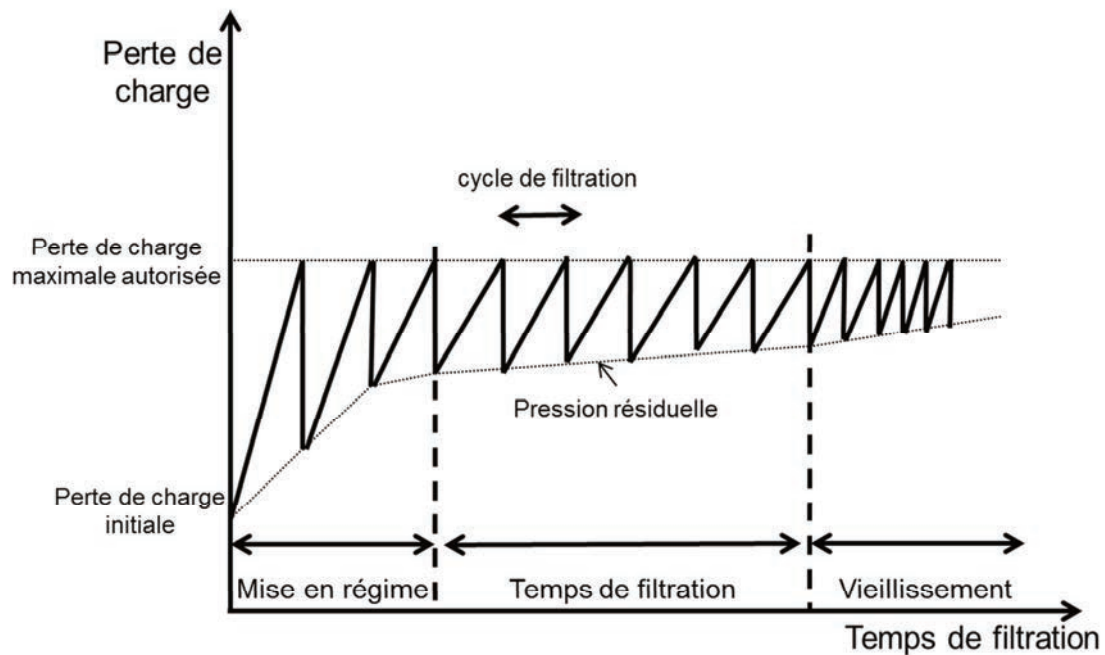


Figure 5.5 : Illustration des cycles de colmatage/décolmatage. Décolmatage déclenché pour une perte de charge fixe.

Muller (Muller et al., 1987) a montré, pour différents médias, que les forces d'adhésion augmentaient au cours des cycles de colmatage/décolmatage. Ce constat explique en partie la montée de la perte de charge résiduelle, c'est-à-dire après décolmatage, le long des cycles de colmatage/décolmatage.

Dans le cas d'aérosols nanostructurés, la surface spécifique développée par la particule est bien plus importante que celle d'une particule micrométrique. Cette grande surface spécifique signifie que la surface de contact entre les particules et la surface du média filtrant est importante. Ainsi, les dépôts constitués par des particules nanostructurés sont difficilement décolmatables.

5.2. Média plissé

L'objectif final du travail amorcé ici est d'améliorer les cycles de colmatage/décolmatage des médias plissés utilisés en milieu industriel lors de la filtration des fumées de métallisation. Pour répondre à cette problématique, ce travail a été scindé en deux parties.

D'une part, nous maîtrisons l'étape de colmatage afin de prédire l'augmentation de la perte de charge du média filtrant par des fumées de métallisation. Cette voie a été parcourue par une description détaillée des caractéristiques de l'aérosol ainsi qu'une caractérisation approfondie du dépôt. Une tentative de prédiction de la perte de charge selon quelques principaux modèles existants dans la littérature est également présentée.

D'autre part, nous étudions le décolmatage et notamment les cycles de colmatage/décolmatage des médias plissés. L'objectif de cette partie est de comprendre l'inefficacité des décolmatages observés en industrie mais également à défaut de remédier à ce problème en trouvant des voies améliorant le décolmatage. Cette étude est mise en œuvre par la recherche et l'observation sur des médias plissés et plans.

5.2.1. Description de la ligne de prélèvement 5

La ligne 5 a été conçue dans le but d'étudier plus spécifiquement le colmatage de médias plissés par les fumées de métallisation à l'échelle d'une seule cartouche (Figure 5.6). Les paramètres mesurés sur cette ligne sont :

1. la température.
2. le débit soit par tube de Pitot, soit par un débitmètre à turbine.
3. la perte de charge du dépoussiéreur pilote par un capteur de pression différentielle.



Figure 5.6 : Vue générale du dépoussiéreur pilote

Le schéma de la ligne 5 est présenté sur la Figure 5.7.

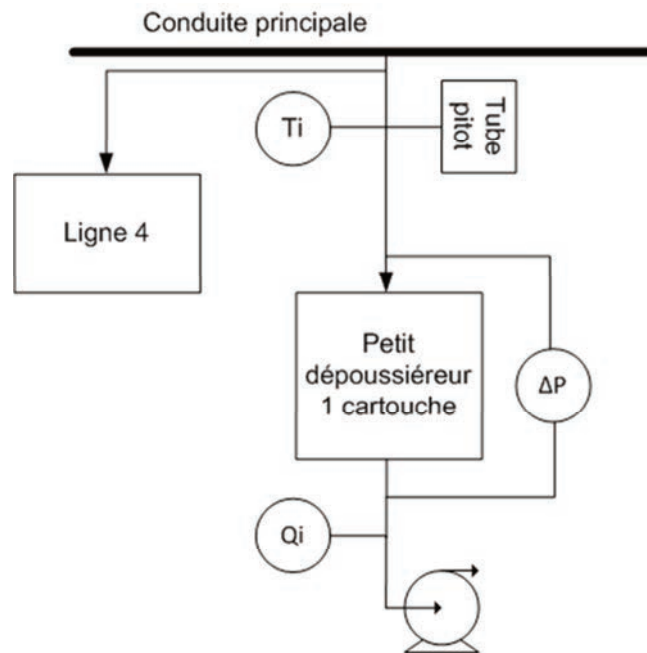


Figure 5.7 : Schéma détaillé de la ligne 5

Le prélèvement du flux est réalisé par déviation d'une partie de l'aérosol dans la canalisation principale (diamètre 200 mm) en amont de l'ensemble cyclone - grand dépoussiéreur. Le diamètre de la canalisation de prélèvement est égal à 100 mm. Cette opération est assurée par un ventilateur situé en aval du dépoussiéreur pilote. Le débit du dépoussiéreur extrait en amont est de l'ordre de $300 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. La description détaillée du dépoussiéreur pilote et des médias utilisés a déjà été exposée lors de la présentation du banc Métallisation au chapitre 2. Nous spécifions que le dépoussiéreur pilote est équipé d'une seule cartouche plissée. Deux médias ont été employés : média A et B (cf chapitre 2 pour les caractéristiques).

Le débit volumique est mesuré au centre de la conduite secondaire par un tube de Pitot ou en aval du pilote par un débitmètre. La vitesse de filtration vaut environ $0,5 - 1 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$, ce qui est représentatif des vitesses de filtration habituelles utilisées dans les installations industrielles.

Plusieurs essais de colmatage ont été conduits sur ce dépoussiéreur. Les résultats présentés dans les parties ci-après ont été réalisés avec l'intégralité des fumées.

Les essais de colmatage ont consisté à suivre l'évolution de la perte de charge du dépoussiéreur pilote en fonction de la masse surfacique générée. Les essais ne se déroulent pas d'une traite mais en plusieurs fois. En effet, nous avons expliqué précédemment dans le chapitre 4 que le temps de fonctionnement du pistolet ne pouvait excéder plus d'une heure. Nous supposons que la granulométrie de l'aérosol reste constante pendant toute la durée de ces essais. L'aérosol est extrait et filtré par le dépoussiéreur pilote dès le début de la génération. L'aérosol est par conséquent supposé stable dès le début de la génération.

Notons que nous parlons de masse surfacique générée et non de masse surfacique collectée. En effet, il nous est impossible d'estimer la perte massique du gâteau suite à un décolmatage. En dehors des décolmatages, nous avons vérifié la concentration en aval du filtre par prélèvement sur filtre plan. Celle dernière vaut en moyenne $0,5 \text{ mg.m}^{-3}$ contre 165 mg.m^{-3} en amont du dépoussiéreur soit une efficacité globale de 99,7%. Cette efficacité s'accroissant avec la formation du gâteau, nous pouvons considérer que la totalité des particules arrivant sur le filtre est collectée. Nous négligeons donc les dépôts dans les canalisations.

5.2.2. Efficacité initiale

L'efficacité fractionnelle de filtration en nombre de la cartouche filtrante A a été déterminée en début de colmatage par des fumées de métallisation à une masse surfacique collectée de 6 g.m^{-2} soit 45 min de métallisation (Figure 5.8). L'efficacité est déduite à partir des mesures de concentrations amont et aval du pilote. Les mesures sont réalisées grâce au granulomètre ELPI dilué d'un facteur 1000.

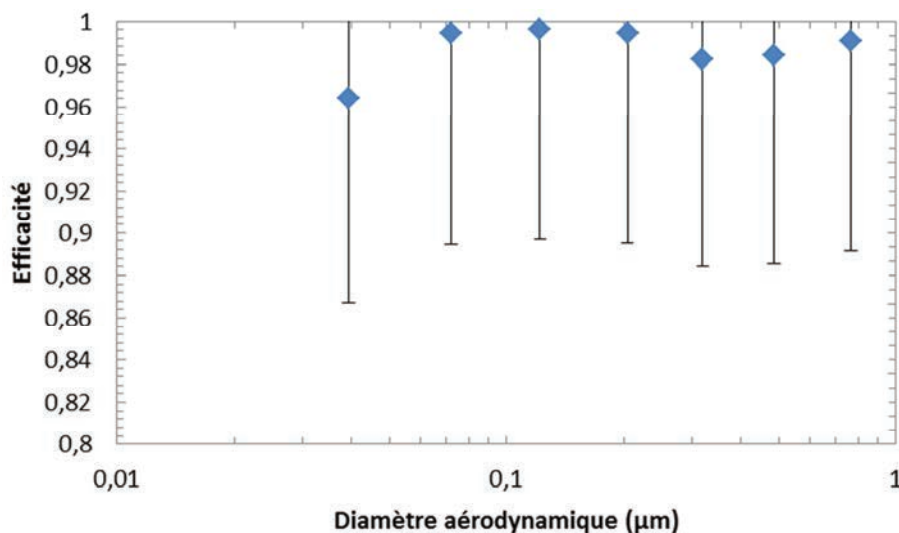


Figure 5.8 : Efficacité fractionnelle de la cartouche A en fonction du diamètre aérodynamique des particules à une masse surfacique de 6 g.m^{-2} à 10 L.min^{-1}

L'efficacité du filtre de 99,99% à $0,5 \text{ µm}$ affirmé par le fournisseur est donc vérifiée étant donnée nos grandes incertitudes de mesures. De ce point de vue, le média A est adapté à la filtration de particules ultrafines conformément à ce qui est annoncé par le fournisseur.

5.2.3. Cycles de colmatage/décolmatage

5.2.3.1. Média A

L'objectif principal de la partie suivante est de décrire l'évolution de la perte de charge du dépoussiéreur pilote au cours des cycles de colmatage/décolmatage.

5.2.3.1.1 Description des premiers cycles

L'évolution de la perte de charge de la cartouche A en fonction de la masse surfacique de fumées de métallisation générée est présentée Figure 5.9. Chaque séance dure environ 30 - 60 min. Une bobine de fil métallique permet de couvrir environ 3h de métallisation.

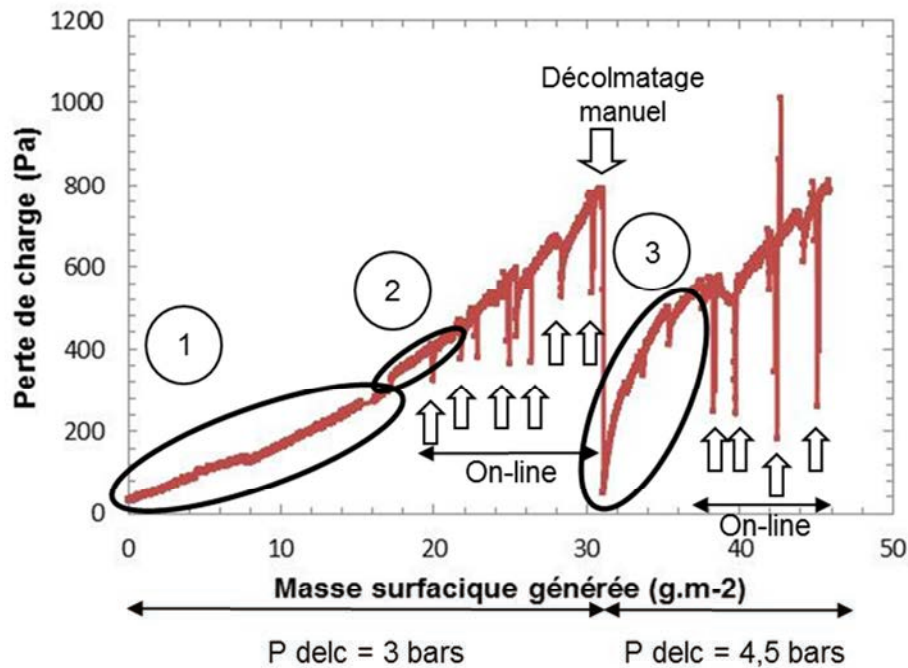


Figure 5.9 : Evolution de la perte de charge du média A en fonction de la masse surfacique des fumées de métallisation générées, On-line : décolmatage on-line. P_{delc} représente la pression de décolmatage.

Le premier cycle de colmatage de la cartouche A, représentée par (1) et (2) sur le graphe, est caractéristique des médias neufs et peut être divisé en trois phases :

- Filtration en profondeur au début du colmatage jusqu'à environ 16 g.m^{-2} : elle est caractérisée par une augmentation lente et linéaire de la perte de charge (Japuntich et al., 1997).
- Transition rapide : elle lie les étapes de filtration en profondeur et en surface. Ces deux premières étapes sont représentées par (1) sur le graphe.
- Filtration en surface (2) au-delà de 18 g.m^{-2} : c'est dans cette phase que commence réellement la formation du gâteau en surface. L'augmentation de la perte de charge est linéaire et proportionnelle à la masse surfacique collectée.

Les premiers cycles sont communément appelés mise en régime. Après le premier décolmatage efficace, nous observons que (3) l'augmentation de la perte charge est beaucoup plus rapide que lors du premier cycle. La formation du gâteau reprend donc dès la reprise de la filtration.

5.2.3.1.2 Cinétiques du décolmatage

Nous notons que l'augmentation de la perte de charge du média A suit un rapport perte de charge sur la vitesse de filtration sur la masse surfacique générée de $6,6 \cdot 10^3 \text{ Pa.s.m.g}^{-1}$ sur la totalité de l'aérosol (particules microniques et ultrafines) avec une vitesse de filtration moyenne de $0,53 \text{ cm.s}^{-1}$. Ce rapport traduit la cinétique du colmatage. Ce rapport sera d'autant plus grand que l'aérosol est colmatant.

Des essais sont menés en parallèle sur le média plan membranaire en PVC (Pall GLA 5000) avec la totalité des fumées (Figure 5.10). La ligne pour ces essais sur médias plans correspond à la ligne 4 utilisée précédemment pour caractériser le dépôt mais en retirant cette fois l'impacteur en cascade Andersen. Nous obtenons un rapport un peu inférieur de $4,3 \cdot 10^3 \text{ Pa.s.m.g}^{-1}$. Ce rapport augmente en éliminant les particules microniques de diamètre supérieur à $2,3 \mu\text{m}$ en conservant l'impacteur. Il vaut alors $1,1 \cdot 10^4 \text{ Pa.s.m.g}^{-1}$. Les travaux de Valmari (Valmari et al., 2006) sur le colmatage par un aérosol bimodal ont également observé ce phénomène, à savoir qu'un aérosol bimodal composé de particules fines et grossières est moins colmatant que les particules fines seules. Il avance comme hypothèse que les particules fines adhèrent aux particules grossières. Il en résulte donc une modification de la granulométrie vers un aérosol plus grossier. La porosité du dépôt s'en trouve accrue et l'augmentation de la perte de charge est donc plus lente. Toutefois, Lee (Lee et al., 2001) observe le contraire dans le cas de d'aérosol bimodaux de particules d'oxyde d'aluminium.

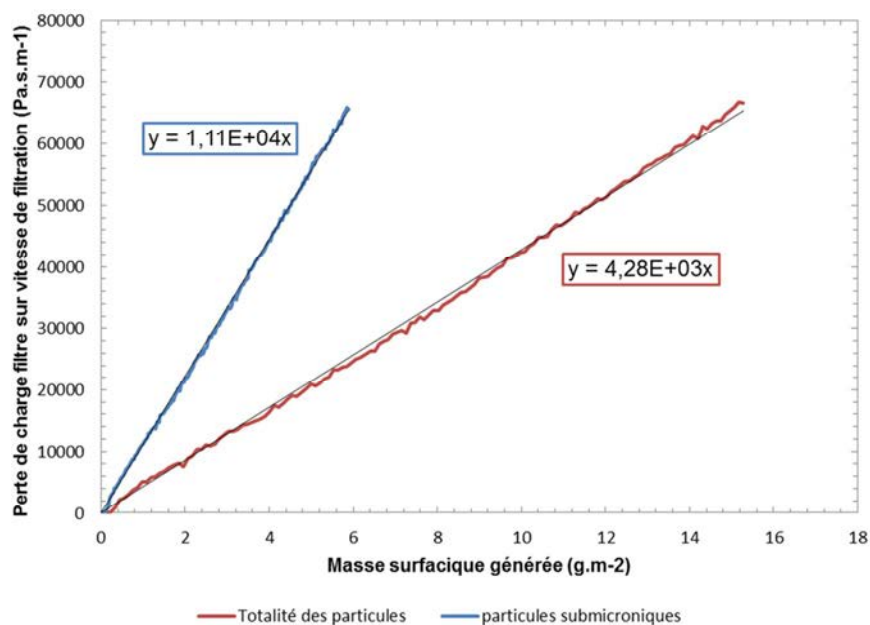


Figure 5.10 : Evolution de la perte de charge d'un média plan pour la totalité des particules et les particules submicroniques.

Les essais sur médias plans et plissés en termes de montées en perte de charge sont proches avec un rapport de 1,5. Cette légère différence laisse penser que la forme plissée de la cartouche a une faible incidence sur son colmatage à ce stade bien que le colmatage se situe en amont de la phase de bouchage des plis du média plissé. Ce résultat est en accord avec la littérature (Lo, Chen, et al. 2010; Lo, Hu, et al. 2010).

Ces mesures de cinétiques mettent clairement en avant le pouvoir colmatant des particules submicroniques. En effet, nous avons remarqué que les particules microniques étaient plus colmatantes seules d'un facteur d'environ 2,5 que lorsqu'elles sont associées à des particules microniques. Or, les particules microniques n'engendrent qu'une faible perte de charge comparée aux particules nanostructurées compte-tenu de la surface développée de part et d'autres. Il est possible que la présence des particules microniques modifie d'une part la structure du dépôt des particules submicroniques et probablement d'autre part les forces d'adhésion entre le média filtrant et le gâteau. Ce résultat est cohérent avec les travaux de Valmari (Valmari et al., 2006).

5.2.3.1.3 Description des décolmatages

Le type de décolmatage dans nos essais est variable afin d'en tester plusieurs types. Ainsi, deux sortes de décolmatages ont été mises en œuvre : décolmatage on-line (décolmatage avec filtration maintenue) et décolmatage off-line (décolmatage avec filtration suspendue), de type manuel (chocs) et avec air comprimé. Le décolmatage on-line est constitué par un pulse d'air comprimé à contre-courant à une pression de 3 ou 4,5 bars pendant 100 ms (temps d'ouverture de la vanne). La pression maximale de décolmatage est fixée à 4,5 bars par le fournisseur. En effet, au-delà de cette valeur, le média pourrait ne pas supporter les contraintes mécaniques imposées par le pulse d'air.

Force est de constater que l'efficacité du décolmatage est différente selon le type de décolmatage utilisé (Figure 5.9). Ainsi, le décolmatage on-line, traditionnellement employé en entreprise, s'avère complètement inefficace quel que soit la pression de décolmatage utilisée. Suite à ce décolmatage, la perte de charge diminue effectivement mais très faiblement (environ un tiers de sa valeur initiale). De plus, la remontée quasiment instantanée de la perte de charge après le décolmatage qualifie ce décolmatage d'inefficace. Ce résultat est en accord avec les retours d'expériences du milieu industriel. Il est le résultat de la forte adhérence du gâteau dont les particules nanostructurées sont en grande partie responsables.

Le deuxième décolmatage utilisé est un décolmatage off-line de type manuel. Il nécessite la présence d'un opérateur. Ce décolmatage demande un temps d'arrêt de la filtration assez long puisqu'il faut démonter la cartouche située dans le dépoussiéreur, la nettoyer puis la remonter. Malgré ces inconvénients, il ressort que ce décolmatage apparaît comme extrêmement efficace. La perte de charge du média passe ainsi de 968 Pa à 50 Pa soit une efficacité de régénération de 95%. La perte de charge résiduelle est très proche de la perte de charge initiale de la cartouche. Nous pouvons donc en conclure que les chocs manuels provoquent des forces de cisaillement suffisamment importantes pour faire tomber la majorité du gâteau. Il convient de noter que le dépôt formé en profondeur reste en place malgré le décolmatage. Il est en effet incrusté dans le média filtrant et est donc très difficile à séparer. Cette déduction est confirmée par la remontée de la perte de charge lors du second colmatage et égal à $6,7 \cdot 10^3 \text{ Pa.s.m.g}^{-1}$. Cette valeur est semblable à la cinétique de $6,3 \cdot 10^3 \text{ Pa.s.m.g}^{-1}$ observé lors du premier colmatage.

Cependant, ce type de décolmatage manuel n'est pas utilisé en entreprise pour plusieurs raisons. Il nécessite tout d'abord de démonter les cartouches, ce qui nécessite du temps

aussi bien lors du démontage que du remontage. En outre, un protocole opératoire doit être établi pour protéger le personnel de la remise en suspension des particules décolmatées et non aspirées. Ce décolmatage bien qu'efficace n'est donc pas une solution envisageable aussi bien du point de vue sanitaire que du temps et donc de productivité. Ce type de décolmatage peut être une inspiration pour mettre au point une nouvelle technique de décolmatage.

La remontée rapide ou très rapide de la perte de charge observée immédiatement après le décolmatage on-line et off-line est caractéristique d'un décolmatage par plaque (Dennis et al., 1981; Duo et al., 1997; Callé et al., 2001; Ju et al., 2001; Lo, Chen, et al., 2010; Simon et al., 2010). En effet, le dépôt se morcèle lors de l'apparition des forces de cisaillements. Ces forces ont pour effet de morceler le gâteau en plaques. Ceci entraîne une chute du gâteau par plaques.

Finalement, le décolmatage off-line manuel semble efficace mais difficile à mettre en œuvre en milieu industriel. Le décolmatage on-line, c'est-à-dire avec filtration maintenue est quant à lui inefficace. Il résulte donc globalement une augmentation de la perte de charge résiduelle au fur et à mesure de la filtration des fumées de métallisation.

5.2.3.2. Média B

Les mêmes essais de colmatages ont été menés sur le média B de surface filtrante de 8,5 m² (Figure 5.11). Le colmatage de la cartouche pilote est réalisée en plusieurs sessions de métallisation. Des essais avec des fils de Zn ont été précédemment testés sur cette cartouche. C'est la raison pour laquelle la masse surfacique générée initiale n'est pas nulle.

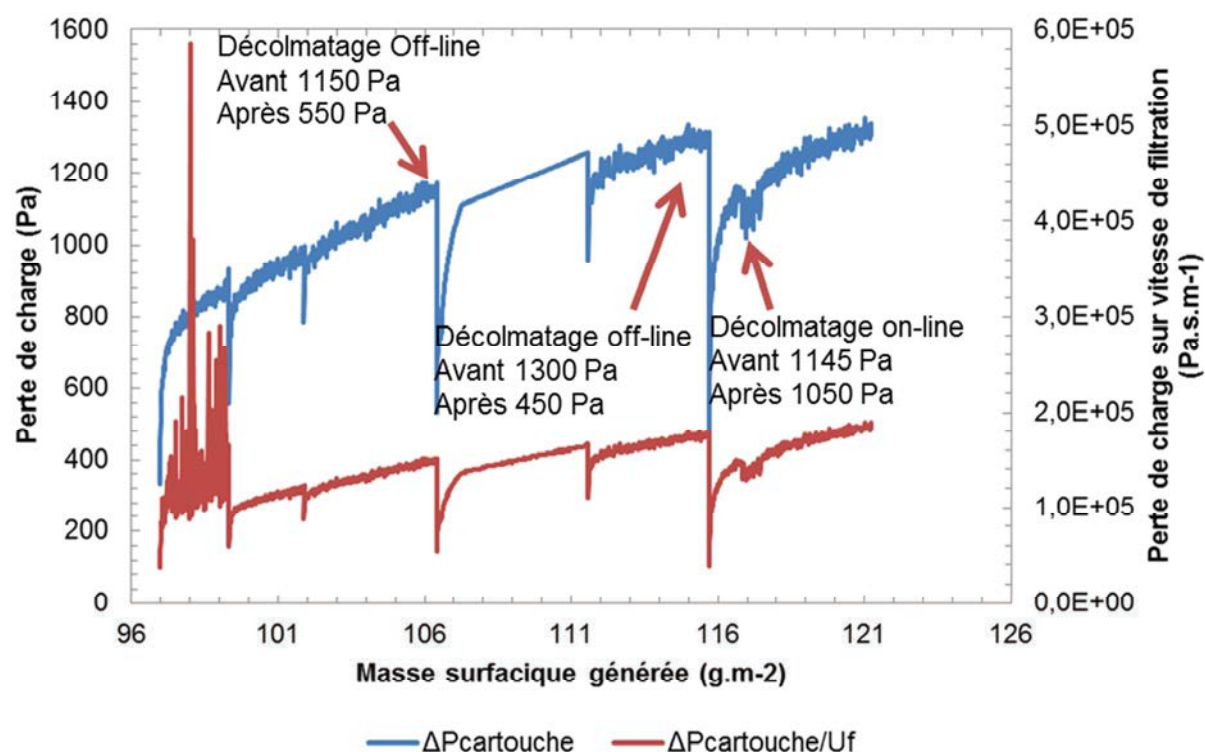


Figure 5.11 : Evolution de la perte de charge du média B en fonction de la masse surfacique des fumées de métallisation générées. Les courbes bleue et rouge correspondent respectivement à la perte de charge et au à la perte de charge rapportée à la vitesse de filtration instantanée.

Cette partie comporte 6 sessions de colmatages et 3 de décolmatages (deux décolmatages off-line et un décolmatage on-line). Tout comme dans le cas de la cartouche A, le décolmatage on-line permet de décolmater que très partiellement, par plaques mais son effet est annulé après seulement quelques minutes de métallisation. La montée du rapport perte de charge sur vitesse de filtration est caractérisée par un coefficient variant peu et égal $7,8 \cdot 10^3 \text{ Pa.s.m.g}^{-1}$ sur les différents essais présentés sur le Tableau 5.1. Ces résultats de cinétique sont 1,2 fois supérieurs par rapport à ceux obtenus sur le média A petit pli dans les mêmes conditions opératoires.

Nous avançons deux hypothèses pour expliquer cette différence.

Tout d'abord, cette disparité de cinétique peut en effet provenir de la différence du média constituant le support mécanique. Le média A est composé de cellulose à l'instar du média B formé d'un mélange fibre synthétique/verre. Les fibres de verre sont aptes à se charger électriquement et augmentent ainsi l'efficacité de collecte des particules chargées (Grippari, 2009). Cependant, cette hypothèse ne peut expliquer à elle seule une telle dissemblance et tout particulièrement lors d'une phase de filtration en surface. Rappelons que lors de cette phase, le phénomène d'auto filtration est majoritaire. Le média joue essentiellement le rôle de support mécanique.

La variation de cinétique peut également découler de la structure même du pli. Les médias A et B se différencient sur ce point par des largeurs de pli distinctes pour une même hauteur de pli. Il en vient des rapports de plissage β respectifs de 13,4 et 6,3. Lo (Lo, Chen, et al., 2010) s'est intéressé à l'influence de la géométrie des cartouches par le rapport de plissage β des cartouches plissées dans le décolmatage des dépoussiéreurs. Il constate une différence de comportement des cartouches lors du décolmatage pneumatique suivant ce

rapport. Il explique que cet effet est dû à un changement de la pression statique à la surface du filtre durant le pulse d'air.

Le rapport cinétique du média B est assez similaire aux résultats de la cartouche A et du média plan GLA. Il ne semble donc pas y avoir une influence importante du ratio β dans la phase de filtration des médias étudiés. Tout comme dans le cas de la cartouche A, le décolmatage on-line permet de décolmater que très partiellement par plaques.

Tableau 5.1 : Synthèse des cinétiques des colmatages du média B. La session 1 est exclue des moyennes car elle correspond à une mise en régime du média.

Session	Rapport $\Delta P/(m_g/S_f)$ Pa.m ² .g ⁻¹	Vitesse de filtration moyenne U_f cm.s ⁻¹	Rapport $(\Delta P/U_f)/(m_g/S_f)$ Pa.m.g ⁻¹ .s ⁻¹
1	65	0,64	7,89E+03
2	48	0,83	8,17E+03
3	42	0,80	7,54E+03
4	35	0,79	6,77E+03
5	28	0,75	5,80E+03
6	49	0,75	1,04E+04
Moyenne	45	0,76	7,76E+03

Le premier décolmatage s'est déroulé en conditions off-line avec une série de 10 jets à 12 s d'intervalles entre deux jets successifs et une pression de 3,5 bars. Contrairement au décolmatage off-line manuel utilisé pour le média A, le décolmatage off-line mis en œuvre ici est géré par un automate et ne nécessite aucune intervention humaine sur la cartouche. L'efficacité de ce décolmatage est de 25%. Le second décolmatage était composé de 25 jets pour une efficacité de 65%. L'augmentation de l'efficacité est très probablement liée à l'augmentation du nombre de jets.

Le dernier décolmatage a été déclenché automatiquement par le pilote. C'est donc un décolmatage on-line avec une série de 5 jets dans les mêmes conditions (pression et temps d'ouverture) que précédemment. Son efficacité a été moindre que les décolmatages off-line, soit 8%. Ce décolmatage confirme les résultats obtenus sur le média A, à savoir que le décolmatage on-line reste très peu efficace même dans le cas d'une masse de gâteau plus importante. Ce dernier point est important. En effet, la masse de gâteau augmentant son inertie, un gâteau est d'autant plus facilement décolmatable que sa masse est grande (Dennis et al., 1975; Morris et al., 1987; Sievert & Löffler, 1989; Aguiar & Coury, 1992; Koch et al., 1992, 1996). Or, la masse surfacique du gâteau a été plus que doublée. Nous en concluons que les forces d'adhésion entre le gâteau et le média filtrant (jouant le rôle de support mécanique) sont très importantes.

Nous remarquons d'une part que le décolmatage pneumatique off-line classique semble plus efficace par rapport au même décolmatage on-line et que d'autre part que cette efficacité est inférieure à celle du décolmatage off-line manuel vu lors du décolmatage du média A. Afin de comprendre l'efficacité partielle du décolmatage off-line, nous réalisons un cliché de la cartouche B après le premier décolmatage au travers de la fenêtre de visualisation (Figure 5.12).

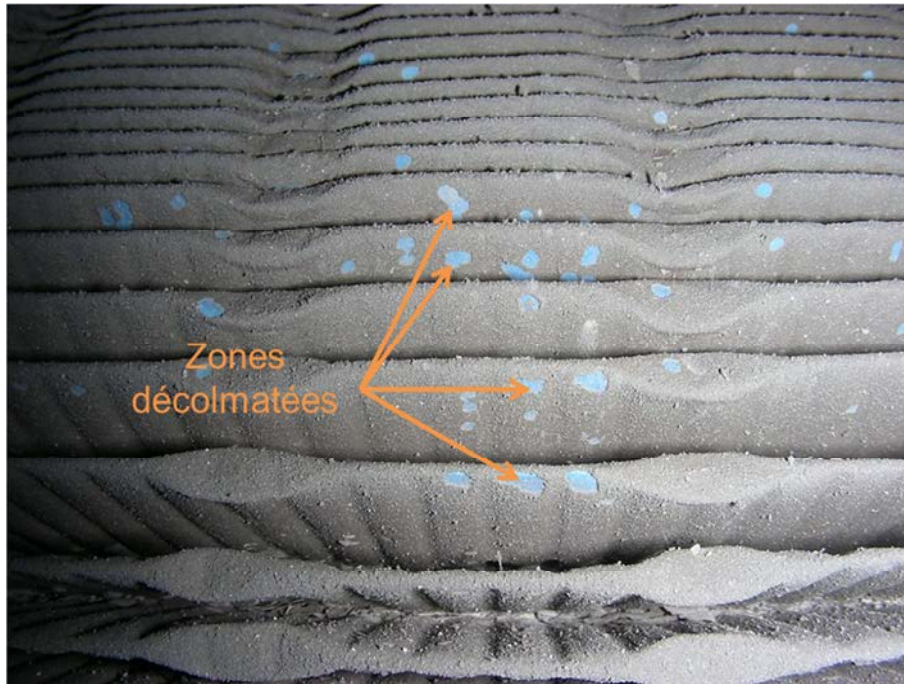


Figure 5.12 : Cliché du média B après un décolmatage off-line.

Ce cliché met en évidence et confirme le décolmatage partiel par plaque supposé lors du colmatage du média A. Nous avons estimé grossièrement le pourcentage de surface décolmatée (en bleu sur la photo) à moins de 5 %. Cette faible surface suffit à diminuer drastiquement la perte de charge en créant des passages préférentiels. Ainsi, les particules sont dans un premier temps collectées préférentiellement sur les zones décolmatées de faible résistance aéraulique. Du fait que ces zones représentent un faible surface de la surface totale du filtre, elles sont rapidement colmatées (quelques minutes à 10 minutes) jusqu'à homogénéiser la surface du gâteau de particules. Néanmoins, la résistance aéraulique des zones régénérées augmentent en même temps qu'elles se colmatent. Cette transition très rapide où les zones régénérées se colmatent à nouveau se traduit par une augmentation de la perte de charge plus lente donnant un aspect concave à la courbe de colmatage.

Une fois cette phase passée, le gâteau est de nouveau homogène et l'évolution de la perte de charge de l'ensemble {média filtrant + gâteau} en fonction de la masse surfacique est de nouveau linéaire.

Aucun « collage » des plis entre eux n'a été observé. Ce fait dénote que la filtration se situe encore en amont de la phase de bouchage des plis caractéristique des médias plissés très colmatés.

5.2.3.3. Conclusion

L'étude des cycles de colmatage/décolmatage des médias A et B a mis en avant l'inefficacité du décolmatage on-line. Son effet est annulé après seulement quelques minutes de

métallisation. Le décolmatage off-line apparaît comme bien plus efficace que ce soit en mode manuel ou automatique (pneumatique).

Nous avons observé une remontée de la perte de charge caractéristique d'un décolmatage par plaque quel que soit le décolmatage. Un cliché de la cartouche décolmatée confirme notre hypothèse de décolmatage par plaque. Nous avons pu ainsi estimer la surface décolmatée à moins de 5 % de la surface totale. Aucun collage des plis de la cartouche n'a été mis en évidence.

L'efficacité de filtration annoncée par les constructeurs est respectée. Cette grande efficacité de collecte est due au traitement de nanofibres utilisé sur le média dans un premier temps puis au phénomène d'auto filtration dans un second temps.

En revanche, le décolmatage ne se révèle que peu efficace entraînant une augmentation de la perte de charge résiduelle. Afin de mettre en lumière si le manque d'efficacité du décolmatage provient de la géométrie de la cartouche, nous poursuivons l'étude des cycles de colmatage/décolmatage sur filtre plan.

5.3. Média plan

L'objectif de cette étude sur média plan est double : rechercher les conditions conduisant à un décolmatage efficace et estimer plus précisément le pourcentage de surface décolmatée. Nous nous intéressons particulièrement à la masse surfacique du gâteau. Une masse surfacique importante devrait entraîner des forces d'inertie suffisamment importantes pour vaincre les forces de d'adhésion maintenant le gâteau et le filtre ensemble.

Le filtre C est colmaté en plusieurs fois par l'aérosol de métallisation. Ce filtre a été choisi à défaut de la disponibilité des médias A et B sous forme plane comme expliqué dans le chapitre 4 pour le colmatage sur filtre plan membranaire. Nous avons donc souhaité nous rapprocher d'un média déjà utilisé dans le domaine du dépoussiérage d'une part et bénéficiant d'un traitement de surface anti-colmatant tout comme les médias A et B d'autre part. Des tests de décolmatages sont réalisés à l'issue de chaque phase de colmatage.

5.3.1. Matériel et méthode

5.3.1.1. Colmatage

La ligne de prélèvement dédiée à l'étude des cycles de colmatage/décolmatage sur filtre plan sur le banc « Métallisation » est la ligne 4 (Figure 5.13). La partie colmatage est opérée sur cette partie.

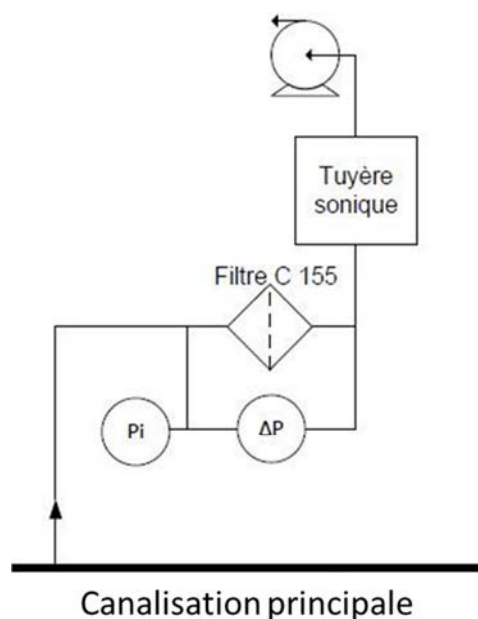


Figure 5.13: Schéma détaillé de la ligne 4

Le colmatage est réalisé sur un filtre plan en fibres de polyester non tissés de diamètre 155 mm au moyen d'une pompe située à l'aval du filtre. Ce filtre bénéficie d'un traitement de surface anti-colmatant par calandrage thermique permettant d'augmenter son efficacité de décolmatage. Ce traitement consiste à faire passer le média entre deux rouleaux chauds, généralement à basse pression. En plus d'aplatir le média, le calandrage thermique a pour effet de faire fondre partiellement les fibres en surface. Il en résulte une surface lisse. Il augmente la rétention des particules en surface au cours de la filtration. La pénétration des particules dans le média est donc limitée. Cette propriété est recherchée car la fraction en profondeur du filtre est difficilement décolmatable. Ce type de média est très utilisé dans le domaine des dépoussiéreurs à manches pour la filtration des poussières de bois en raison de son faible coût énergétique et économique.

Les caractéristiques du média C ont été déterminées par Simon (Simon, 2005) au cours de ses travaux sur les dépoussiéreurs à manches (Tableau 5.2).

Tableau 5.2 : Propriétés à l'état neuf du filtre C

Désignation	T23T56320
Type de média	Plan
Composition	Polyester
Traitement de surface	Calandrage thermique
Compacité	$0,237 \pm 0,021$
Grammage (g.m^{-2})	400 ± 5
Epaisseur (mm)	$1,22 \pm 0,10$
Diamètre de fibre moyen (μm)	≈ 20

Afin de garder la même surface et structure du dépôt sur le média filtrant, le média C n'est jamais sorti de son porte-filtre pendant toute la durée des cycles de colmatage/décolmatage. La Figure 5.14 illustre l'ensemble {support + filtre} mis en œuvre.

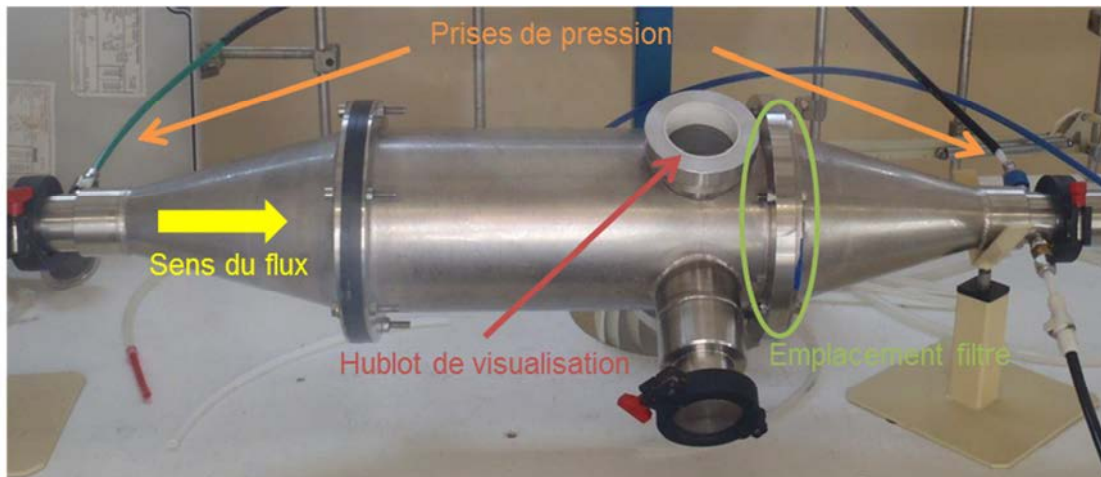


Figure 5.14 : Illustration de l'ensemble {support + filtre} dans l'étude des cycles colmatage/décolmatage sur filtre plan

L'écoulement d'air est préalablement homogénéisé avant d'arriver sur le filtre à colmater en vue de s'assurer de la formation du dépôt sur la totalité de la surface du filtre.

La masse collectée par le média C est estimée grâce au suivi du débit de filtration fourni par la tuyère d'une part et la concentration massique calculée par un filtre GLA placé en parallèle sur la ligne 1 d'autre part. Bien que ces deux filtres ne possèdent pas initialement la même efficacité de filtration, cette différence s'efface dès l'apparition du gâteau sur le média C soit environ après 15 - 20 min de métallisation. Des capteurs de pression différentielle permettent de suivre l'évolution de la perte de charge de l'ensemble {support + filtre}.

Le colmatage du média plan C n'est pas régulé dans le sens où aucun système de régulation ne vient assurer la constance de la vitesse de filtration. Néanmoins, les variations de vitesse sont prises en compte dans le traitement des fichiers de colmatage en recalculant la vitesse à chaque instant. Ainsi, la vitesse de filtration varie entre $1,59$ et $0,97 \text{ cm.s}^{-1}$ avec une moyenne de $1,25 \text{ cm.s}^{-1}$.

5.3.1.2. Décolmatage

Une fois colmaté, l'ensemble {support + filtre} est transporté sur le banc de décolmatage (Figure 5.15 et Figure 5.16).

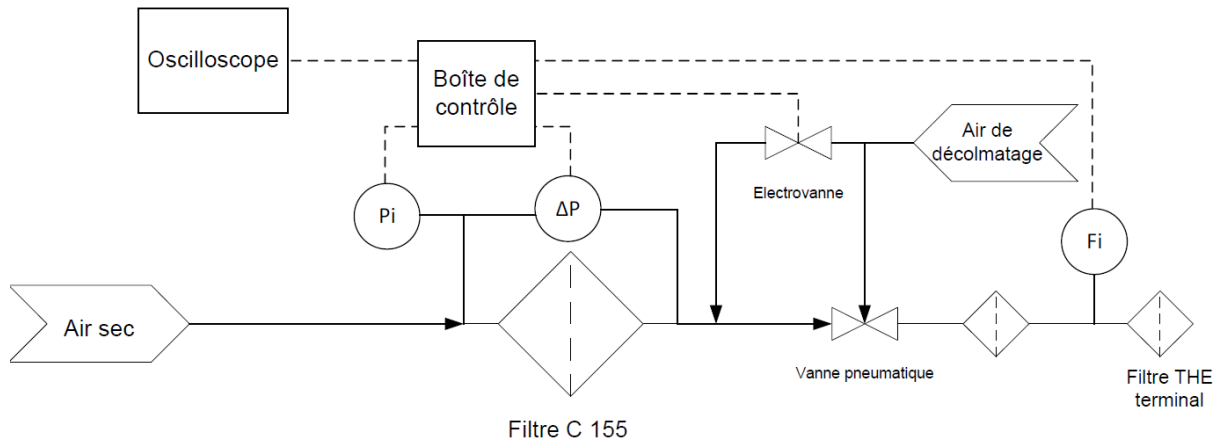


Figure 5.15 : Schéma de principe du banc « décolmatage »



Figure 5.16 : Vue d'ensemble du banc "décolmatage".

Des tests de perméation du média sont réalisés avant et après chaque décolmatage de manière à suivre l'évolution de la résistance du gâteau.

Deux mécanismes interviennent lors d'un décolmatage pneumatique : un choc mécanique bref et important et une perméation à contre-courant (Dennis et al., 1981; Sievert & Löffler, 1989; Rothwell, 1990). Le premier est prépondérant selon Humphries (Humphries, 1981; Humphries & Madden, 1983). Le mouvement produit par ce choc est caractérisé par l'accélération du média. La Figure 5.17 présente un enregistrement de décolmatage de type on-line réalisé à l'aide d'un oscilloscope numérique. Les conditions de décolmatages sont une pression de décolmatage de 6 bars pendant 200 ms.

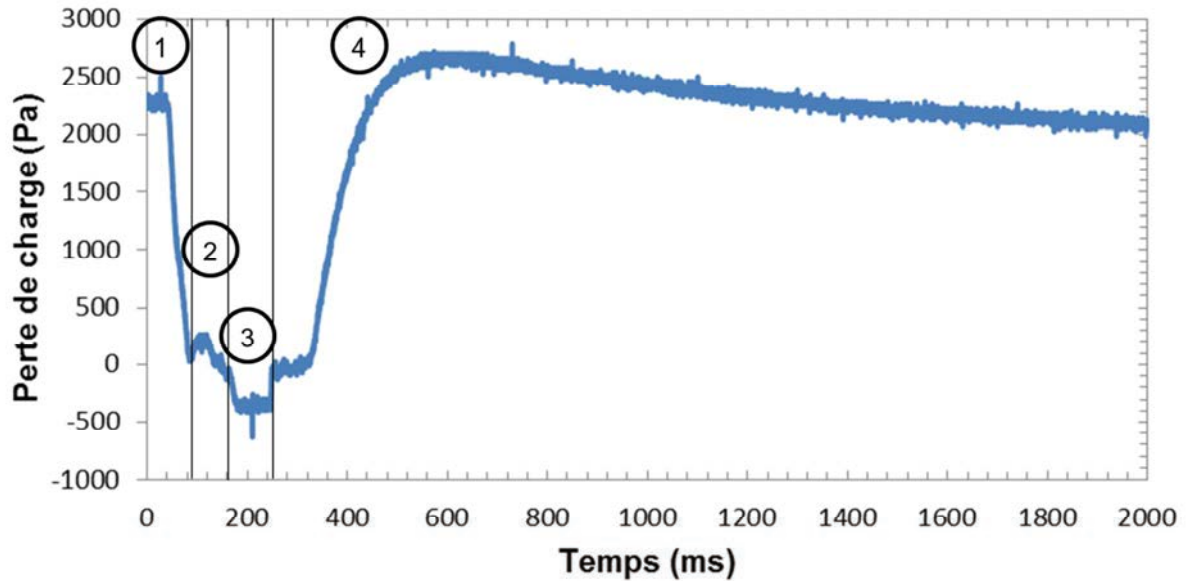


Figure 5.17 : Exemple de signal mesuré par oscilloscope d'un décolmatage on-line. Conditions opératoires : pression de décolmatage de 6 bars pendant 200 ms.

Quatre phases peuvent être distinguées (cf § 5.1.1.2) :

- 1) De la filtration du média jusqu'à l'arrivée du flux d'air à contre-courant
- 2) De l'arrivée du flux d'air à contre-courant au début du mouvement du média
- 3) Du début du mouvement du média jusqu'à l'apparition des forces de détachement du gâteau
- 4) De l'apparition des forces de détachement du gâteau jusqu'à l'accélération maximale du média

Différentes conditions de décolmatages sont testées. Du fait que nous ne disposons que d'un seul filtre qui était régulièrement colmaté et non d'une batterie de filtres, il nous est impossible de tester deux fois un décolmatage avec exactement les mêmes conditions de masse surfacique collectée, de pression, ... Notre recherche s'axe sur la détermination d'une masse surfacique collectée telle que les forces d'inertie engendrent la chute du gâteau.

5.3.1.3. Protocole opératoire

La résistance de l'ensemble {filtre + gâteau} est mesurée avant et après chaque opération de colmatage ou décolmatage. Le protocole opératoire du média C est réalisé selon :

- 1) Perméation
- 2) Colmatage
- 3) Perméation
- 4) Décolmatage dans des conditions déterminées
- 5) Perméation
- 6) Décolmatage ou colmatage

Les cycles de colmatage/décolmatage retraçant l'évolution de la perte de charge du filtre en fonction de la masse surfacique collectée se basent sur les hypothèses suivantes.

- 1) Toutes les particules arrivant sur les filtres sont collectées sans relargage possible. La formation du gâteau crée un préfiltre dont l'efficacité est proche de 100%.
- 2) La concentration massique de l'aérosol collecté est constante au cours du temps. Cette hypothèse a été vérifiée par les différentes granulométries ELPI dans le chapitre 2.
- 3) Après un décolmatage, si la variation de perte de charge avant et après décolmatage est inférieure à 2 – 3 hPa, alors le décolmatage est considéré comme inefficace et aucune masse surfacique n'a été perdue. Ainsi, dans le cas de non décolmatage, la masse surfacique reste identique.
Une altération du dépôt entrainerait une modification de l'écoulement et donc de la perte de charge du filtre. Ainsi, nous considérons que la structure du dépôt n'est pas modifiée si nous n'observons pas de changement sur l'évolution de la perte de charge.
- 4) La surface du gâteau après un recolmatage est parfaitement homogène. Il n'y a donc pas de passages aérauliques préférentiels et l'épaisseur du gâteau est constante sur la totalité de la surface de filtration.

5.3.2. Résultats

5.3.2.1. Colmatages

La Figure 5.18 présente l'évolution de la perte de charge en fonction de la masse surfacique générée sur l'ensemble des cycles de colmatage/décolmatage du média C.

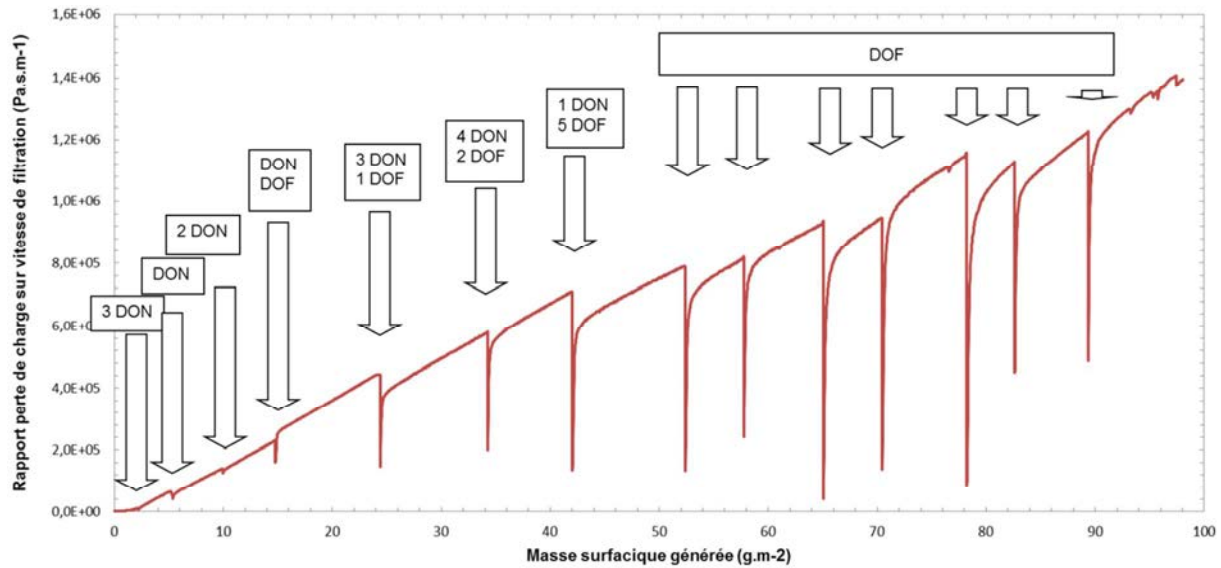


Figure 5.18 : Evolution de la perte de charge en fonction de la masse surfacique générée sur l'ensemble des cycles de colmatage/décolmatage du média C. DON : décolmatage on-line, DOF : décolmatage off-line.

Les différentes baisses de perte de charge résultent des essais de décolmatage. La montée en perte de charge du média C est linéaire conformément à la phase de filtration en surface. Elle est caractérisée par une pente de $2,1 \cdot 10^4 \text{ Pa.s.m.g}^{-1}$ (Tableau 5.3). Nous remarquons que cette cinétique est bien supérieure aux cinétiques de $5 \cdot 10^3 \text{ Pa.s.m.g}^{-1}$, $9,9 \cdot 10^3$ et $1,1 \cdot 10^4 \text{ Pa.s.m.g}^{-1}$ observées respectivement pour les médias plissés A et B. Nous formulons diverses hypothèses pour tenter d'expliquer le facteur entre 2 et 4 entre ces deux pentes.

- Traitement du média.

Le filtre C bénéficie d'un traitement de surface anti-colmatant différent des cartouches. Ce traitement peut contribuer à un changement d'efficacité en début de filtration par rapport aux cartouches. Cependant, dès lors la formation du gâteau, ce dernier agit comme un préfiltre et empêche les particules de pénétrer dans le filtre. La nature du média n'a donc alors plus d'importance. Ainsi, un traitement ne peut pas expliquer une telle différence. De plus, cette différence de pente n'a pas été notée sur le filtre membranaire GLA utilisé pour déterminer la concentration massique dans la gaine principale.

- Influence reprise du colmatage.

Il a été observé que ce soit sur les cartouches plissées ou les filtres plans qu'un arrêt momentané de la filtration suivie d'une reprise conduisait à une diminution de la perte de charge du média filtrant. Il y a donc modification dans la structure du gâteau. Cette modification va dans le sens contraire d'une compression. En effet, dans ce cas, le gâteau se tasserait et entraînerait une augmentation de la perte de charge. Nous pouvons donc supposer une expansion du gâteau de façon à faciliter l'écoulement du fluide porteur et créer des passages préférentiels. Cette expansion pourrait également être due à un effet de charge entre les particules ou une oxydation. Cependant, le phénomène de diminution a été observé même pour un arrêt de quelques secondes. Il s'agit donc vraisemblablement d'une adaptation à des contraintes mécaniques.

Tableau 5.3 : Synthèse des cinétiques des cycles de colmatage/décolmatage du média plan C.

Colmatage	Cinétique de colmatage		Vitesse de filtration moyenne	Masse surfacique générée
	$(\Delta P/U_f)/(m_g/S_f)$ Pa.s.m.g ⁻¹	$\Delta P/(m_g/S_f)$ Pa.m ² .g ⁻¹	U_f m.s ⁻¹	m_g/S_f g.m ⁻²
1		pas de gâteau		
2	1,82E+04	290	1,59E-02	9,97
3	1,96E+04	295	1,51E-02	14,78
4	2,04E+04	286	1,40E-02	24,38
5	2,00E+04	257	1,28E-02	34,24
6	2,00E+04	240	1,20E-02	42,03
7	1,80E+04	215	1,19E-02	52,37
8	2,13E+04	249	1,17E-02	57,78
9	1,96E+04	216	1,10E-02	65,03
10	2,79E+04	303	1,09E-02	70,45
11	2,40E+04	232	9,66E-03	78,19
Moyenne	2,09E+04	2,58E+02	1,25E-02	
Ecart-type	2,96E+03	3,33E+01	1,96E-03	

5.3.2.2. Compression du gâteau

La compressibilité du gâteau est un paramètre important en filtration. En effet, un gâteau compressible engendre une perte de charge plus importante que dans le cas d'une incompressibilité. Le gâteau ne peut plus alors être schématisé comme une seule entité mais comme trois comme décrit par Höflinger (Höflinger, 1998) :

- Une couche superficielle non compressée mais compressible
- Une couche intermédiaire compressée mais pas à son maximum
- Une couche inférieure compressée au maximum et donc devenue incompressible

La prédiction de la perte de charge devient alors plus ardue car il y a trois gâteaux différents à identifier avec une porosité qui évolue.

La compressibilité du gâteau formé sur le média plan C a donc été testée en balayant une grande gamme de vitesse de filtration centrée sur la vitesse de filtration de 1,5 cm.s⁻¹ utilisée en expérience. Ce balayage s'effectue dans le sens croissant (montée) et décroissant (descente). Dans le cas d'une compression, les cycles diffèrent. Dans le cas contraire, ils se superposent. La Figure 5.19 présente les résultats obtenus.

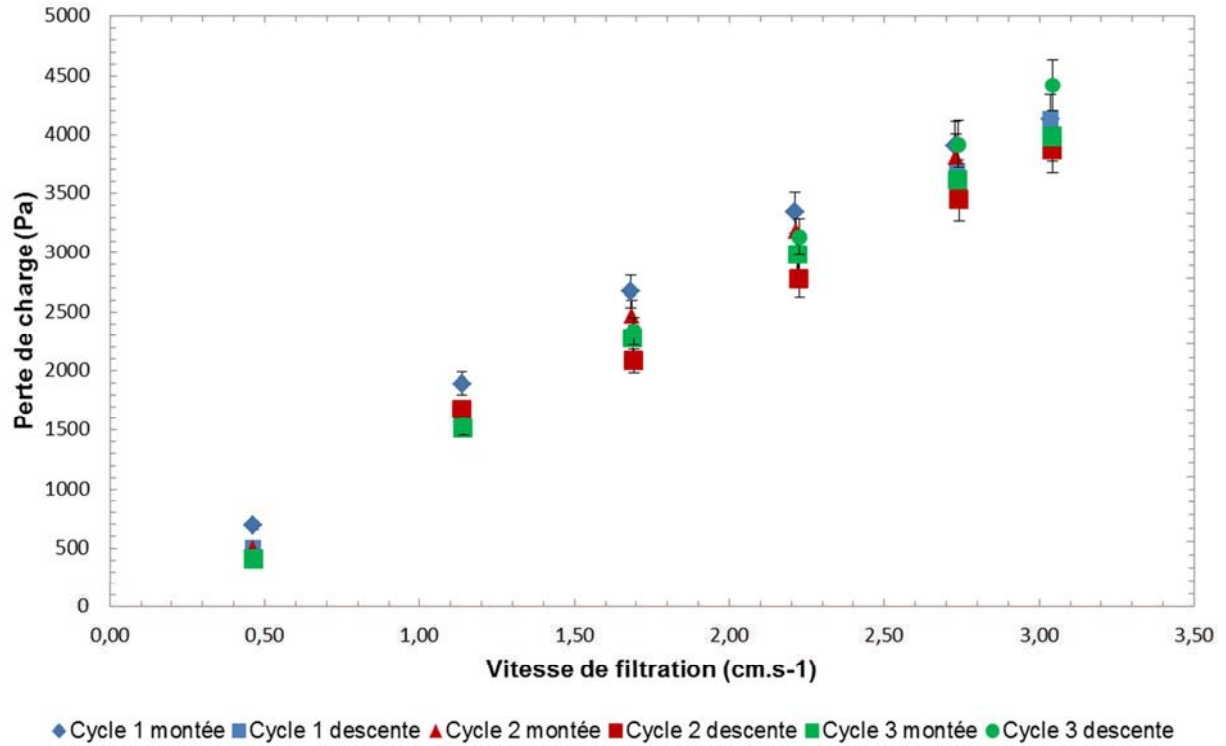


Figure 5.19 : Etude de compressibilité du gâteau de colmatage à une masse surfacique générée de $14,8 \text{ g.m}^{-2}$

Les cycles se superposent, il n'y a donc pas d'effet de compression du gâteau lors du colmatage par des fumées de métallisation à cette masse surfacique. La porosité du gâteau est donc homogène. Ce résultat concorde avec l'absence de compression démontrée au chapitre 4 sur le colmatage de filtres plans membranaires.

5.3.2.3. Décolmatages

Le Tableau 5.4 récapitule l'ensemble des décolmatages effectués sur le média C.

5.3 - Média plan

Tableau 5.4 : Synthèse des différents colmatages effectués sur le média C.

Conditions décolmatage					Masse du gâteau générée mg/Sf g.m ⁻²	Perte de charge					Efficacité de décolmatage	
Débit	Pression jet	Temps jet	Nombre de jets	Avant		Après	Caractéristique du décolmatage d(ΔP)/dt max	Résistance gâteau avant	Résistance gâteau après	Perte de charge	Surface	
NL.min ⁻¹	bar	ms	N	ΔP		ΔP _{résiduel}		ΔP/U _f	ΔP/U _f			
				Pa		Pa	Pa.s ⁻¹	Pa.s.m ⁻¹	Pa.s.m ⁻¹			
Neuf					0			1.16E+03	1.16E+03			
3	14.5	4	200	1	9.97	1654	1606	33600	9.70E+04	9.49E+04	2.25%	
4	14.08	3	200	1	14.80	2324	2277	30420	1.35E+05	1.39E+05		
6	13.66	6	200	1	24.41	2815	2544	46041	1.68E+05	1.60E+05	5.22%	
7	0	6	200	1	24.41	2663	2416	11300	1.60E+05	1.48E+05	7.23%	
8	13.38	6	200	1	34.01	3865	3433	44015	2.19E+05	2.12E+05	3.04%	
10	13.38	6	1000	1	34.01	3337	2825	48487	1.99E+05	1.90E+05	4.39%	
11	0	6	1000	1	34.01	3190	3029	9688	1.90E+05	1.82E+05	4.23%	
12	13.58	6	200	1	42.08	4562	4085	45828	2.54E+05	2.44E+05	4.15%	
13	13.58	6	500	1	42.08	4264	3576	47935	2.44E+05	2.25E+05	7.73%	
14	13.58	6	1000	1	42.08	3906	3285	47605	2.25E+05	2.14E+05	4.80%	
15	0	6	1000	1	42.08	3684	3425	7208	2.14E+05	2.03E+05	5.23%	
16	13.58	6	200	10	42.08	3274	2874	19894	1.96E+05	1.90E+05	2.97%	
17	0	6	200	10	42.08	3178	3024	25188	1.90E+05	1.82E+05	4.37%	
19	0	6	10	10	52.43	5807	58	11434	3.52E+05	3.43E+05	2.43%	
20	0	6	10	10	52.43	5807	5490	8554.7	3.43E+05	3.12E+05	9.23%	
21	0	6	200	1	52.43	5490	3560	10042	3.12E+05	2.43E+05	21.98%	0.15%
22	0	6	200	10	52.43	2805	2387	17491	1.95E+05	1.65E+05	15.54%	0.23%
23	13.18	6	200	10	52.43	2387	2118	46006	1.65E+05	1.52E+05	7.43%	
24	0	6	200	10	57.84	5766	3949	38905	3.59E+05	2.66E+05	25.74%	
25	0	6	200	10	65.10	7370	3017	43772	4.71E+05	2.17E+05	54.00%	0.45%

Le média neuf présente un rapport perte de charge sur vitesse de filtration de $1,16 \cdot 10^3 \text{ Pa.s.m}^{-1}$. Les efficacités de décolmatage sont calculées de deux manières distinctes :

- A partir de la perte de charge.
Elle représente la variation de la résistance du gâteau avant et après colmatage.

$$E_{\Delta P} = \frac{\Delta P - \Delta P_{\text{résiduel}}}{\Delta P} \quad (5.4)$$

- A partir de la surface décolmatée
Elle représente la proportion de surface décolmatée. La surface décolmatée est déterminée par prise de clichés avant et après décolmatage (Figure 5.20) pris sans démonter l'ensemble {support + filtre}.

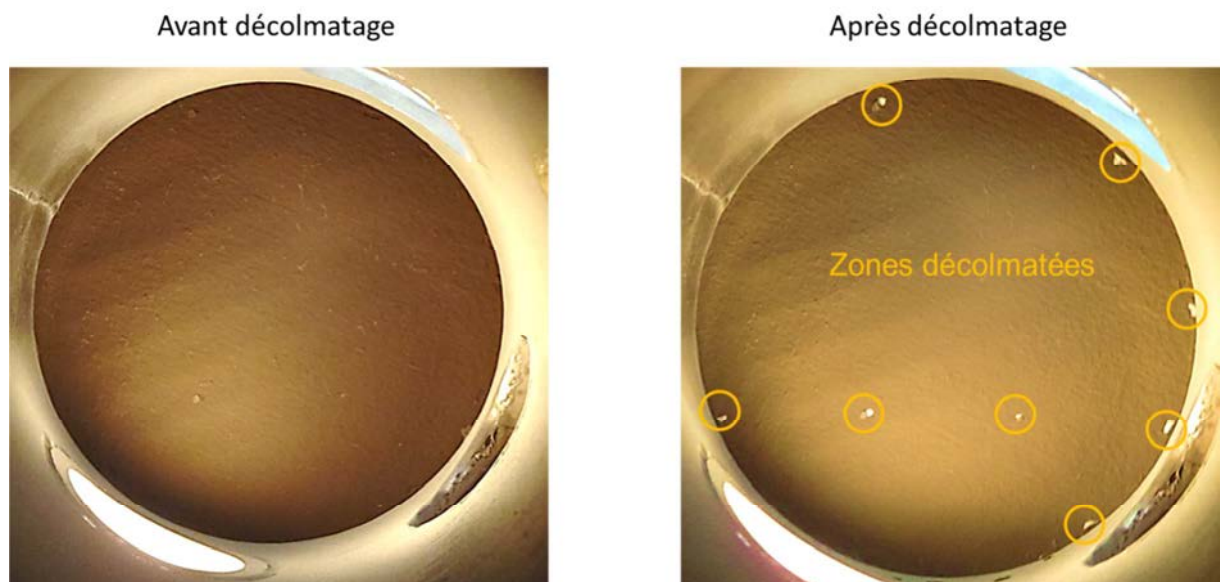


Figure 5.20 : Clichés avant et après décolmatage du média plan C.

Les clichés mettent en avant un décolmatage « par plaque » conformément à ce qui a été observé pour les cartouches. Nous notons que le décollement s'effectue préférentiellement sur les bords du filtre. Ces zones correspondent aux emplacements où le déplacement du média sera limité par le porte-filtre. Les forces de cisaillement seront donc plus importantes. Nous constatons que la surface décolmatée n'excède jamais 1% quel que soit les conditions opératoires testées. Ce décolmatage très partiel explique l'inefficacité des décolmatages on-line et off-line.

Les objectifs des cycles de colmatage/décolmatage sur filtre plan étaient d'estimer la surface décolmatée et de déterminer des conditions conduisant à un décolmatage efficace. La surface décolmatée a été estimée via des clichés avant et après décolmatage à moins de 1%. Aucune condition de décolmatage efficace on-line ou off-line n'a pu être dégagée.

La recherche d'une éventuelle masse surfacique critique pour laquelle les forces d'inertie du gâteau seraient plus importantes que les forces d'adhésion liant le gâteau et le média filtrant n'a pu être obtenue. Ceci malgré une masse surfacique poussée vers des valeurs supérieures à 90 g.m^{-2} .

Le décolmatage peut paraître significatif du point de vue de la variation de la résistance du gâteau mais complètement insignifiant au niveau de la surface décolmatée. Dans ce cas, le décolmatage ne sera pas efficace plus de quelques minutes lors d'un nouveau colmatage. En effet, la faible surface décolmatée facilite l'écoulement de l'air en créant des passages préférentiels, ce qui explique la résistance de gâteau beaucoup plus faible mais ces passages seront rebouchés très rapidement du fait de leur très faible surface. Il en résulte un décolmatage inefficace dans le temps.

Des tests complémentaires de décolmatage par voie humide non présenté dans ce travail ont également été menés sur le média plan C à une masse surfacique d'environ 100 g.m^{-2} pour améliorer le décolmatage. En effet, humidifier le gâteau permet d'augmenter les forces de cohésion du gâteau (Joubert et al., 2009) et donc de faciliter la chute du gâteau comme corps unitaire. Ces tests ont conclu de même à l'inefficacité de ce type de décolmatage.

Face à ces essais infructueux nous allons donc à présent expérimenter une autre technique de fonctionnement appelé le precoating.

5.4. Alternatives

Suite aux décolmatages infructueux du média petit pli A, une tentative d'amélioration du décolmatage a été conduite sur le média grand pli B sur la base du precoating. Cette technique consiste à pré-colmater le média au moyen d'un aérosol grossier (micronique) et non inflammable. Cet aérosol permet de former une pré-couche de filtration et surtout facilement décolmatable à la surface du média. L'apport des particules peut être effectué de manière continue ou discontinue.

Un des avantages de cette technique est une efficacité du média accrue car les particules collectées viennent former un préfiltre sur la surface du média (phénomène auto-filtration décrit précédemment). De plus, la surface de contact entre le gâteau et le média filtrant est composée de particules grossières adhérant faiblement à la surface du média et par conséquent facilement décolmatable. Le gâteau constituant le préfiltre ou filtre auxiliaire pourra donc servir de filtre « jetable » pour les fumées de métallisation. Il permettra ainsi de préserver le média filtrant.

Les inconvénients principaux de cette technique sont la nécessité d'une phase de conditionnement (pré-colmatage) d'une part mais surtout la production d'une quantité importante de déchets qu'elle impose d'autre part.

Une masse de 200 g de poussière de dolomite de diamètre médian en masse de $3,6 \mu\text{m}$ est utilisée pour pré-colmater la cartouche B neuve. Pour ce faire, la poudre de dolomite est placée dans une trémie et injectée dans la conduite au moyen d'une vis sans fin. La masse

surfactive déposée est de $23,5 \text{ g.m}^{-2}$, ce qui est inférieure aux valeurs préconisées de dépoluissage industriel de 150 g.m^{-2} .

Le cycle de colmatage débute à une vitesse de filtration de $1,15 \text{ cm.s}^{-1}$. Les décolmatages étaient effectués sous une pression de 4,5 bars et pour une perte de charge de la cartouche de 600 Pa. La Figure 5.21 présente les cycles de filtration de la cartouche B sans precoat puis avec precoat.

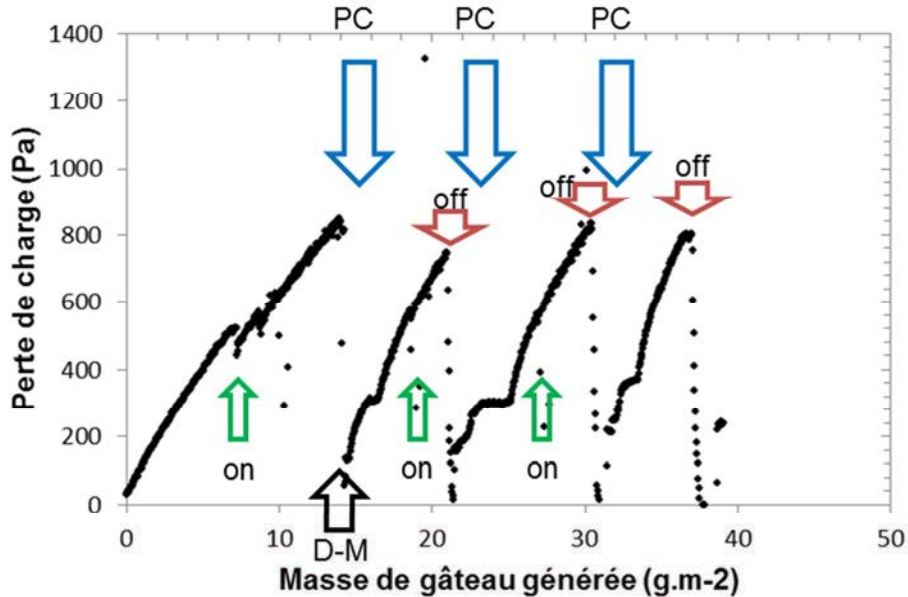


Figure 5.21 : Evolution de la perte de charge de la cartouche B ($8,5 \text{ m}^2$) à $1,15 \text{ cm.s}^{-1}$ en fonction des différentes configurations d'essais. on : décolmatage on-line, off : décolmatage off-line, D-M : décolmatage manuel, PC : precoat ($23,5 \text{ g.m}^{-2}$ poussière de dolomite)

Les deux premiers cycles correspondent à un colmatage sans precoat. La montée en perte de charge sur la vitesse de filtration vaut en moyenne $7,6 \cdot 10^3 \text{ Pa.m.g}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$.

Après precoat du média, l'efficacité de décolmatage on-line est sensiblement améliorée, ce qui se traduit par une perte de charge résiduelle moins importante que sans traitement. En revanche, le décolmatage off-line est très efficace et permet d'obtenir une perte de charge résiduelle proche de la perte de charge initiale de la cartouche. Le precoat est donc efficace pour faciliter le décolmatage mais seulement lorsque la filtration est arrêtée (décolmatage off-line).

5.5. Conclusion

Ce chapitre était dédié à l'étude des cycles de colmatage/décolmatage des médias plissés utilisés dans les dépoussiéreurs. Ces différentes phases de filtration ont été étudiées sur deux médias plissés préconisés dans le milieu industriel pour la filtration des fumées de métallisation. L'influence des conditions de décolmatage a été considérée. Ceci nous a permis d'explorer les conditions conduisant à un décolmatage plus efficace.

La première étape a été marquée par la caractérisation de l'augmentation de la perte de charge du média filtrant au cours de la filtration. La meilleure connaissance de cette phase permet de prédire la cinétique de colmatage. Nous avons déterminé une cinétique de colmatage de $6,6 \cdot 10^3 \text{ Pa.s.m.g}^{-1}$ pour la cartouche A et $7,1 \cdot 10^3 \text{ Pa.s.m.g}^{-1}$ pour la cartouche B en filtrant la totalité de l'aérosol. Les montées en perte de charge des deux types de médias sont relativement proches avec une différence de 7 %. Cette concordance laisse penser que le rapport de plissage β n'a pas d'incidence sur son colmatage à ce stade et d'autre part que la cinétique de colmatage est indépendante de la nature du média utilisé.

Les essais comparant le colmatage des particules submicroniques seules et de l'aérosol dans sa totalité ont mis en avant une variation de cinétique. Ce rapport perte de charge sur vitesse de filtration sur la masse surfacique passe ainsi pour la cartouche A de $4,7 \cdot 10^3 \text{ Pa.s.m.g}^{-1}$ à $1,2 \cdot 10^4 \text{ Pa.s.m.g}^{-1}$ en éliminant les particules microniques de diamètre supérieur à $2,3 \mu\text{m}$. Il semble donc que l'aérosol composé de particules fines et grossières est moins colmatant que les particules fines seules. Une adhérence des particules fines sur les particules grossières pourrait expliquer ce phénomène. En plus de la modification de la structure du dépôt, les forces d'adhésion entre le média filtrant et le gâteau sont très probablement altérées.

L'augmentation trop importante de la perte de charge est à proscrire car elle entraîne un coût énergétique très élevé pour l'installation de filtration. Le décolmatage est alors déclenché. Nous avons utilisé uniquement un décolmatage de type pneumatique, c'est-à-dire un pulse d'air sous haute pression injecté à contre-courant pendant un court laps de temps d'environ 100 ms.

Deux types de décolmatage ont été étudiés : on-line et off-line. Le décolmatage on-line correspond à l'envoi du pulse d'air en maintenant la filtration alors que cette dernière est arrêtée en mode off-line. Le décolmatage on-line s'avère inefficace sur les deux médias plissés A et B. Son effet est annulé après seulement quelques minutes de métallisation. Le décolmatage off-line par air comprimé se révèle plus efficace que le décolmatage on-line. Cette efficacité est la conséquence d'une vitesse de décolmatage plus élevée et donc une accélération/décélération plus importante du média. Cependant, son efficacité est limitée par la très faible surface régénérée.

Le décolmatage off-line de type manuel effectué par chocs est le seul qui permette de retrouver une perte de charge résiduelle proche de la perte de charge initiale du filtre. Il n'est néanmoins pas utilisable en milieu industriel à cause du temps dépensé, du montage/démontage nécessaire et surtout du danger occasionné pour le personnel.

Une observation attentive de la remontée de la perte de charge après un décolmatage off-line témoigne d'un décolmatage par plaque. Cette observation est confirmée par les clichés des cartouches pris après le décolmatage. La surface décolmatée est très faible. Cette surface a pu être estimée plus en détail à moins de 1% par une étude parallèle sur filtre plan. Cette faible surface décolmatée crée des passages préférentiels de faible résistance aéraulique. Ces zones sont rapidement colmatées du fait de leur très faible surface lors de la reprise de la filtration. Ceci implique une nouvelle homogénéisation du dépôt d'une part et d'autre part, une remontée de la perte de charge très rapide. Une fois les zones régénérées colmatées, l'augmentation de la perte de charge est de nouveau linéaire (croissance du gâteau).

Une recherche de masse surfacique critique a été envisagée afin d'aboutir à un décolmatage effectif. Cette investigation a eu lieu sur un filtre plan bénéficiant d'un traitement de surface anti-colmatant par calandrage thermique dans des conditions aussi proche que possible des médias plissés. Différentes conditions de décolmatage ont été testées mais aucune n'a pu conduire à un décolmatage efficace. L'absence de compression du gâteau a néanmoins été démontrée. La structure du dépôt est donc homogène lors de la filtration.

Un conditionnement de la cartouche appelé le precoating a été testé. Il consiste à pré-colmater le média au moyen d'un aérosol grossier (micronique) et non inflammable de manière discontinue. Ce traitement permet d'améliorer grandement le décolmatage off-line mais peu le décolmatage on-line. Il permet d'obtenir une perte de charge résiduelle proche de la perte de charge initiale du filtre.

Le Tableau 5.5 récapitule les efficacités de différentes conditions de décolmatage utilisées.

Tableau 5.5 : Synthèse des efficacités des décolmatage avec/sans precoating, - - : inefficace, - : peu efficace, +: efficace.

<i>Décolmatage</i>	<i>Sans precoating</i>	<i>Avec precoating</i>
on-line	- -	-
off-line	-	+
off-line manuel (chocs)	+	n.c

Conclusion et perspectives

Notre objectif était de contribuer à améliorer les performances des dépoussiéreurs à médias plissés vis-à-vis des fumées de métallisation dans le but d'augmenter la durée de vie des filtres et de préserver la qualité de l'environnement extérieur. Le banc d'essais « Métallisation » a été spécialement conçu, dimensionné et équipé pour répondre à ces besoins et a pour optique de rester proche des conditions « industrielles ». Différents points de recherche ont été abordés : caractérisation des fumées, caractérisation du dépôt et étude des cycles de colmatage/décolmatage.

L'étude granulométrique et structurelle des fumées a tout d'abord permis de mettre en évidence la similitude de notre aérosol avec celui mesuré sur le terrain. Ce point est d'autant plus important que notre travail sera facilement transposable dans le domaine industriel. Les fumées de métallisation sont composées de deux populations distinctes : une partie micronique de plusieurs micromètres et une population submicronique. Les analyses de la seconde population nous ont permis de confirmer la présence de nanoparticules déjà soupçonnées sur le terrain d'être responsables de la forte montée de la perte de charge des éléments filtrants. Grâce à cette étude, nous pouvons ajouter que la population submicronique est constituée d'agglomérats suivant une loi log-normale de diamètre et écart-type géométriques respectivement de 137 nm et 1,5. Les particules primaires qui structurent les agglomérats suivent également une loi log-normale de diamètre et écart-type géométriques respectivement de 9 nm et 1,2. La forme de l'agglomérat et la nature fractale des agglomérats ont été caractérisées grâce au facteur de forme dynamique et à la dimension fractale.

La caractérisation structurelle des agglomérats a fait l'objet de la mise en place du couplage DMA-ELPI. Cette technique intéressante permet de remonter à la masse volumique effective et d'estimer la dimension fractale D_f à 1,92. Par la détermination de la masse volumique effective, nous avons également pu, grâce à diverses relations, estimer le facteur de forme dynamique à environ 4. Ces paramètres sont particulièrement importants car ils permettent de convertir une distribution en fonction d'un diamètre équivalent à un autre. Ces résultats permettent de mettre en avant une structure d'agglomérat ouverte et favorisant une augmentation de la résistance aéraulique. Il faut garder à l'esprit que nous ne pouvons confronter la valeur de dimension fractale obtenue ici avec aucune donnée de la littérature puisque aucune étude n'a été réalisée sur ces fumées à ce jour. Une détermination complémentaire par analyse de clichés permettrait d'obtenir une valeur comparative et donc de critiquer notre résultat.

Le couplage DMA-ELPI est une combinaison attrayante en raison de la combinaison de propriétés différentes des particules. Des bémols doivent être cependant ajoutés à cet avantage. En effet, ce couplage pose des contraintes techniques de régulation du débit circulant dans la colonne DMA. Une erreur de débit entraîne une sélection biaisée du diamètre de mobilité électrique et par conséquent un résultat faussé. De plus, il n'existe pas une seule façon de traiter les données brutes. A ce jour, aucun auteur n'a cherché la

méthode la plus appropriée que ce soit dans le choix de la distribution en nombre en courant ou encore le diamètre représentatif (médian, mode ou géométrique) de la distribution de l'ELPI. Notre étude a montré sur ce point d'une part que le traitement des particules multichargées est indispensable et d'autre part que le diamètre médian est préférable.

La caractérisation du dépôt formé au cours de l'étape de filtration ou colmatage par des fumées de métallisation en termes de porosité permet d'établir pour la première fois une valeur expérimentale de porosité estimée à 93 %. Nous attirons ici l'attention du lecteur sur la technique peu commune d'interférométrie utilisée ici. Facile, bien que longue à mettre en œuvre, elle permet de déterminer un profil d'épaisseur. De plus, elle est non destructive contrairement aux techniques habituelles utilisées en microscopie.

La détermination de la porosité est cruciale car elle conditionne l'écoulement du flux et donc la perte de charge. Cette valeur expérimentale est en accord avec l'ensemble des études de colmatage par des nanoparticules recensées dans la littérature. Nos calculs montrent qu'il est à ce jour encore difficile de prédire cette valeur malgré nos connaissances sur l'aérosol. Il ressort de cette partie que la porosité est indépendante de la vitesse de filtration entre 1,56 et 30,9 cm.s⁻¹ et que le dépôt est incompressible.

La détermination de la porosité est indispensable pour prédire l'évolution de la perte de charge d'un média en phase de filtration. Nous avons ainsi testé quatre modèles issus de la littérature selon une approche « particule primaire » et une approche « agglomérat » pour choisir le meilleur modèle. Aucun des modèles utilisés ne parvient à prédire parfaitement la perte de charge. Le choix du modèle le plus proche varie selon l'approche utilisée. Ainsi, le modèle d'Endo-Cunningham est le plus approprié si l'on considère uniquement la particule primaire ; au contraire le modèle d'Endo est préférable dans l'approche agglomérat. Rappelons que les modèles d'Endo et Endo-Cunningham se différencient seulement par l'intervention du coefficient de Cunningham pour corriger la force de traînée.

La comparaison des différents modèles et approches met en avant que l'approche simpliste qui consiste à assimiler l'aérosol à un ensemble de particules primaires sans prendre en compte la structure qui lie les agglomérats sous-estime la perte de charge. Nous conseillons donc de considérer la nature agglomérat de la particule pour améliorer les prédictions de perte de charge.

La dernière partie de ce manuscrit a été consacrée à l'étude des cycles de colmatage/décolmatage sur les médias plissés. Nous avons considéré l'influence des conditions de décolmatage et exploré les conditions conduisant à un décolmatage plus efficace. La différence essentielle entre les médias A et B est leur ratio β , respectivement 13,4 et 6,3. La détermination des cinétiques de colmatage des médias plissés A et B montrent que ces cinétiques respectives de 6,6.10³ Pa.s.m.g⁻¹ et 7,1.10³ Pa.s.m.g⁻¹ sont proches tant que la phase critique de bouchage des plis n'est pas atteinte. Par ailleurs, la forme des plis des cartouches et la nature du média utilisé ne semble pas influencer la cinétique de colmatage.

Différents types de décolmatages ont été étudiés : on-line, off-line manuel (chocs) et off-line. Il s'avère que le décolmatage on-line est inefficace pour les médias plissés et plans utilisés pour cette étude. Son effet est annulé après seulement quelques minutes de filtration. Le

décolmatage off-line (chocs) est plus efficace mais insuffisant pour assurer une régénération durable.

Notre étude complémentaire sur filtre plan a permis d'expliquer ce manque d'efficacité par une très faible surface décolmatée. Nous avons pu estimer la régénération de la surface à moins de 1 %. Cette faible surface décolmatée crée des passages préférentiels de faible résistance aéraulique. Ceci explique la remontée de la perte de charge très rapide observée sur le terrain.

Nous avons recherché l'existence d'une masse surfacique critique permettant d'augmenter les forces d'inertie du gâteau et donc d'améliorer effectivement le décolmatage. Si cette masse critique existe, elle est supérieure aux valeurs testées ici.

Cette étude a également confirmé l'incompressibilité du dépôt ainsi que sa répartition homogène. Le décolmatage off-line manuel est réellement efficace mais trop long et inadapté pour être utilisé en entreprise.

Ces essais ont débouché sur la mise en place d'une technique alternative appelé precoating. Cette technique permet d'améliorer les décolmatages d'une manière générale et permet d'obtenir une perte de charge résiduelle proche de la perte de charge initiale du filtre. Le décolmatage off-line reste plus efficace que le décolmatage on-line. En revanche, cette technique présente les inconvénients d'une phase de pré-colmatage par l'aérosol grossier et une augmentation du volume du dépôt décolmaté.

Les perspectives de ce travail concernent aussi bien les fumées de métallisation que les cycles de filtration des médias plissés. Il s'agit de :

- Déterminer les caractéristiques des agglomérats et tout particulièrement la dimension fractale des agglomérats par une technique complémentaire telle que l'analyse par cliché ou le couplage DMA-APM pour confronter nos valeurs expérimentales
- Poursuivre la prédiction de la porosité du dépôt. Une détermination de la porosité par le calcul permettrait de s'affranchir de la détermination expérimentale longue et méticuleuse.
- Développer un modèle de colmatage plus en accord avec l'expérience. A terme, ce modèle permettra quel que soit l'aérosol de prédire l'augmentation de la perte de charge et donc d'anticiper la durée de vie des filtres.
- Optimiser la voie entrouverte du precoating. Il serait intéressant de déterminer la masse surfacique minimale nécessaire ou de faire varier la nature et la granulométrie de l'aérosol grossier pré-colmatant. Le temps de pré-colmatage de la cartouche est-il indispensable ? Peut-on imaginer injecter un aérosol grossier en même temps que démarre la filtration ? Peut-on déboucher sur un décolmatage on-line effectif ?
- Tester de nouvelles techniques de décolmatage, notamment la distance entre la buse et la surface du média filtrant.
- Changer de technique de filtration pour contourner le problème du décolmatage. Une étude est actuellement en cours d'exploration au laboratoire LRGP sur la collecte par colonne à bulles.

Références

- Aguiar, M.L., Coury, J.R., 1992. Air filtration in fabric filters: cake-cloth adhesion force. *Journal of Fluid/ Particle Separation* 5, 193–198.
- Aitken, R.J., Creely, K.S., Tran, C., 2004. Nanoparticles : an occupational hygiene review. (Rapport technique No. 274), *Research Report*. Health & Safety Executive.
- Allen, M.D., Raabe, O.G., 1982. Re-evaluation of millikan's oil drop data for the motion of small particles in air. *Journal of Aerosol Science* 13, 537–547.
- Allen, R.W.K., Goyder, H.G.D., Morris, K., 1999. Modelling Media Movement During Cleaning of Pulse-Jet Fabric Filters. *Chemical Engineering Research and Design* 77, 223–230.
- American Conference of Governmental Industrial Hygienists., 2007. Threshold limit values for chemical substances and physical agents & biological exposure indices, 7th ed. ed, *TLVs and BEIs*. American Conference of Governmental Industrial Hygienists, Cincinnati Ohio.
- Andersen, S.K., Johannessen, T., Mosleh, M., Wedel, S., Tranto, J., Livbjerg, H., 2002. The formation of porous membranes by filtration of aerosol nanoparticles. *Journal of Nanoparticle Research* 4, 405–416.
- Baron, P.A., Sorensen, C.M., Brockmann, J.E., 2001. Nonspherical Particle Measurements: Shape Factors, Fractals, and Fibers., *in: Aerosol Measurement : Principles, Techniques, and Applications*. John Wiley & Sons, New York, pp. 705–749.
- Baron, P.A., Willeke, K., 2001. Gas and particle motion, *in: Aerosol Measurement: Principles, Techniques, and Applications*. John Wiley & Sons, New York, pp. 61–97.
- Bau, S., 2008. Étude des moyens de la surface des aérosols ultrafins pour l'évaluation de l'exposition professionnelle (Thèse de doctorat).
- Bau, S., Witschger, O., 2011. ELPINVERSE: un outil d'inversion des données à partir de l'ELPI. Présenté à the Nano2011, Nancy, France.
- Bemer, D., Regnier, R., Subra, I., Sutter, B., Lecler, M.T., Morele, Y., 2010. Ultrafine Particles Emitted by Flame and Electric Arc Guns for Thermal Spraying of Metals. *Ann Occup Hyg* 54, 607–614.
- Bergman, W., 1978. . Présenté à the 15th DOE nuclear air cleaning conference, Boston.

- Binder, C., Feichtinger, C., Schmid, H.-J., Thürey, N., Peukert, W., Råde, U., 2006. Simulation of the hydrodynamic drag of aggregated particles. *Journal of Colloid and Interface Science* 301, 155–167.
- Binder, C., Hartig, M.A.J., Peukert, W., 2009. Structural dependent drag force and orientation prediction for small fractal aggregates. *Journal of Colloid and Interface Science* 331, 243–250.
- Bonczyk, P.A., Hall, R.J., 1991. Fractal properties of soot agglomerates. *Langmuir* 7, 1274–1280.
- Brasil, A.M., Farias, T.L., Carvalho, M.G., 1999. A recipe for image characterization of fractal-like aggregates. *Journal of Aerosol Science* 30, 1379–1389.
- Brasil, A.M., Farias, T.L., Carvalho, M.G., 2000. Evaluation of the Fractal Properties of Cluster? Cluster Aggregates. *Aerosol Science and Technology* 33, 440–454.
- Brockmann, J.E., Rader, D.J., 1990. APS Response to Nonspherical Particles and Experimental Determination of Dynamic Shape Factor. *Aerosol Science and Technology* 13, 162–172.
- Brown, D.M., Stone, V., Findlay, P., MacNee, W., Donaldson, K., 2000. Increased inflammation and intracellular calcium caused by ultrafine carbon black is independent of transition metals or other soluble components. *Occup Environ Med* 57, 685–691.
- Cai, J., Lu, N., Sorensen, C.M., 1995. Analysis of Fractal Cluster Morphology Parameters: Structural Coefficient and Density Autocorrelation Function Cutoff. *Journal of Colloid and Interface Science* 171, 470–473.
- Callé, S., Bémer, D., Thomas, D., Contal, P., Leclerc, D., 2001. Changes in the performances of filter media during clogging and cleaning cycles. *Annals of Occupational Hygiene* 45, 115–121.
- Caumont-Prim, C., Yon, J., Coppalle, A., Ouf, F.-X., Fang Ren, K., 2012. Measurement of aggregates' size distribution by angular light scattering. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*.
- CDC - NIOSH Publications and Products - Current Intelligence Bulletin 63: Occupational Exposure to Titanium Dioxide (document internet), 2012. . URL <http://www.cdc.gov/niosh/docs/2011-160/>
- Chakrabarty, R.K., Moosmüller, H., Arnott, W.P., Garro, M.A., Slowik, J.G., Cross, E.S., Han, J.-H., Davidovits, P., Onasch, T.B., Worsnop, D.R., 2007. Light scattering and absorption by fractal-like carbonaceous chain aggregates: comparison of theories and experiment. *Appl. Opt.* 46, 6990–7006.
- Chandler, M.F., Teng, Y., Koylu, U.O., 2007. Diesel particulate emissions: a comparison of mobility and microscopy size measurements. *Proceedings of the Combustion Institute* 31, 2970–2971.

- Chen, D.-R., Pui, D.Y.H., Liu, B.Y.H., 1995. Optimization of Pleated Filter Designs Using a Finite-Element Numerical Model. *Aerosol Science and Technology* 23, 579–590.
- Choi, J.-H., Ha, S.-J., Jang, H.-J., 2004. Compression properties of dust cake of fine fly ashes from a fluidized bed coal combustor on a ceramic filter. *Powder Technology* 140, 106–115.
- Churaev, N.V., Galwey, A., 2000. Liquid and Vapor Flows in Porous Bodies: Surface Phenomena. Taylor & Francis.
- Comiti, J., Renaud, M., 1989. A new model for determining mean structure parameters of fixed beds from pressure drop measurements: application to beds packed with parallelepipedal particles. *Chemical Engineering Science* 44, 1539–1545.
- Cunningham, E., 1910. On the Velocity of Steady Fall of Spherical Particles through Fluid Medium. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* 83, 357–365.
- Dahneke, B., 1982. Viscous Resistance of Straight-Chain Aggregates of Uniform Spheres. *Aerosol Science and Technology* 1, 179.
- Daigle, C.C., Chalupa, D.C., Gibb, F.R., Morrow, P.E., Oberdörster, G., Utell, M.J., Frampton, M.W., 2003. Ultrafine particle deposition in humans during rest and exercise. *Inhal Toxicol* 15, 539–552.
- Davies, C.N., 1973. Air filtration. Academic press, New York.
- De Ravin, M., Humphries, W., Postle, R., 1988. Model for the performance of a pulse jet filter. *Filtration and Separation* 25, 201–207.
- DeCarlo, P.F., Slowik, J.G., Worsnop, D.R., Davidovits, P., Jimenez, J.L., 2004. Particle morphology and density characterization by combined mobility and aerodynamic diameter measurements. Part 1: Theory. *Aerosol Science and Technology* 38, 1185–1205.
- Del Fabbro, L., 2001. Modélisation des écoulements d'air et du colmatage des filtres plissés par des aérosols solides (Thèse de doctorat).
- Del Fabbro, L., Laborde, J., Merlin, P., Ricciardi, L., 2002. Air flows and pressure drop modelling for different pleated industrial filters. *Filtration & Separation* 39, 34–40.
- Dennis, R., Klemm, H.A., 1980. Modeling Concepts for Pulse Jet Filtration. *Journal of the Air Pollution Control Association* 30, 38–43.
- Dennis, R., Wilder, J., Control Systems Laboratory, R.T.P., GCA Corporation. Technology Division, 1975. Fabric filter cleaning studies. Environmental Protection Agency, Office of Research and Development, Control Systems Laboratory ; For sale by the National Technical Information Service, Research Triangle Park, N.C.; Springfield, Va.

- Dennis, R., Wilder, J., Harmon, D., 1981. Predicting pressure loss for pulse jet filters. *Air Pollution Control Association* 31, 987–992.
- Ducos, M., 1999. La projection thermique dans les traitements de surface. Présenté à the EUROCOAT 99, UATCM, Paris, France, Lyon, France, pp. 625–641.
- Duo, W., Seville, J.P.K., Kirkby, N.F., Büchele, H., Cheung, C.K., 1997. Patchy cleaning of rigid gas filters—II. Experiments and model validation. *Chemical Engineering Science* 52, 153–164.
- Elder, A.C., Gelein, R., Finkelstein, J.N., Cox, C., Oberdörster, G., 2000. Pulmonary inflammatory response to inhaled ultrafine particles is modified by age, ozone exposure, and bacterial toxin. *Inhal Toxicol* 12 Suppl 4, 227–246.
- Elder, A.C.P., Gelein, R., Azadniv, M., Frampton, M., Finkelstein, J., Oberdorster, G., 2002. Systemic Interactions between Inhaled Ultrafine Particles and Endotoxin. *Annals of Occupational Hygiene* 46, 231–234.
- Elder, A.C.P., Gelein, R., Azadniv, M., Frampton, M., Finkelstein, J., Oberdörster, G., 2004. Systemic effects of inhaled ultrafine particles in two compromised, aged rat strains. *Inhal Toxicol* 16, 461–471.
- Ellenbecker, M.J., Leith, D., 1979. Theory for dust deposit retention in a pulse-jet fabric filter. *Filtration and Separation* 16, 624–629.
- Elmøe, T.D., Tricoli, A., Grunwaldt, J.-D., Pratsinis, S.E., 2009. Filtration of nanoparticles: Evolution of cake structure and pressure-drop. *Journal of Aerosol Science* 40, 965–981.
- Endo, Y., Alonso, M., 2001. Physical Meaning of Specific Cake Resistance and Effects of Cake Properties in Compressible Cake. *Filtration & Separation* 38, 42–46.
- Endo, Y., Chen, D.-R., Pui, D.Y.H., 1998a. Effects of particle polydispersity and shape factor during dust cake loading on air filters. *Powder Technology* 98, 241–249.
- Endo, Y., Chen, D.-R., Pui, D.Y.H., 1998b. Effects of particle polydispersity and shape factor during dust cake loading on air filters. *Powder Technology* 98, 241–249.
- Evans, D.E., Harrison, R.M., Ayres, J.G., 2003. The Generation and Characterization of Metallic and Mixed Element Aerosols for Human Challenge Studies. *Aerosol Science and Technology* 37, 975–987.
- Ferrier, N., 2005. Le laser et son application en interférométrie pour des mesures dimensionnelles. *Bulletin de la Société des Enseignants Neuchâtelois de Sciences* 21.
- Flagan, R., 2001. Electrical Techniques., in: *Aerosol Measurement: Principles, Techniques and Applications*. John Wiley & Sons, New York, pp. 537–568.

- Foroutan-pour, K., Dutilleul, P., Smith, D.L., 1999. Advances in the implementation of the box-counting method of fractal dimension estimation. *Applied Mathematics and Computation* 105, 195–210.
- Fotovati, S., Hosseini, S.A., Vahedi Tafreshi, H., Pourdeyhimi, B., 2011. Modeling instantaneous pressure drop of pleated thin filter media during dust loading. *Chemical Engineering Science* 66, 4036–4046.
- Fotovati, S., Vahedi Tafreshi, H., Pourdeyhimi, B., 2012. A Macroscale Model for Simulating Pressure Drop and Collection Efficiency of Pleated Filters over Time. *Separation and Purification Technology*.
- Fuchs, N.A., 1964. *The Mechanics of Aerosols*, 1st ed. Dover Publications Inc., New York.
- Gmachowski, L., 2002. Calculation of the fractal dimension of aggregates. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 211, 197–203.
- Gojova, A., Guo, B., Kota, R.S., Rutledge, J.C., Kennedy, I.M., Barakat, A.I., 2007. Induction of Inflammation in Vascular Endothelial Cells by Metal Oxide Nanoparticles: Effect of Particle Composition. *Environ Health Perspect* 115, 403–409.
- Grippari, F., 2009. Etude de la filtration des aérosols nanométriques (Rapport Master Recherche). INRS, Nancy.
- Gupta, A., Biswas, P., Monson, P.R., Novick, V.J., 1993. Effect of humidity and particle hygroscopicity on the mass loading capacity of high efficiency particulate air (HEPA) filters.
- Helsper, C., Molter, W., Löffler, F., Wadenpohl, C., Kaufmann, S., Wenninger, G., 1993. Investigations of a new aerosol generator for the production of carbon aggregate particles. *Atmospheric Environment - Part A General Topics* 27 A, 1271–1275.
- Hering, S.V., Stolzenburg, M.R., 1995. On-line determination of particle size and density in the nanometer size range. *Aerosol Science and Technology* 23, 155–173.
- Hervé-Bazin, B., 2007. Les nanoparticules : un enjeu majeur pour la santé au travail?, 1ère édition. ed. EDP Sciences ;INRS, Les Ulis France ;[Paris].
- Hinds, W.C., 1999. *Aerosol technology : properties, behavior, and measurement of airborne particles*, 2nd ed. ed. Wiley, New York.
- Hindy, K.T., 1986. Influence of selected fixed parameters on pulse-jet fabric filter operation. *Atmospheric Environment (1967)* 20, 1517–1521.
- Höflinger, W., 1998. Fundamentals of the compression behavior of dust filter cakes, Chapter 18, in: *Advances in Aerosol Filtration*. CRC Press LLC, Boca Raton; Boston; London [etc.], pp. 349–360.

- Hoppel, W.A., Frick, G.M., 1986. Ion—Aerosol Attachment Coefficients and the Steady-State Charge Distribution on Aerosols in a Bipolar Ion Environment. *Aerosol Science and Technology* 5, 1–21.
- Hoppel, W.A., Frick, G.M., 1989. Comment on the Comparison of Measured and Calculated Values of Ion Aerosol Attachment Coefficients. *Aerosol Science and Technology* 11, 254–258.
- Hoppel, W.A., Frick, G.M., 1990. The Nonequilibrium Character of the Aerosol Charge Distributions Produced by Neutralizers. *Aerosol Science and Technology* 12, 471–496.
- Horvath, H., 1974. The Sedimentation Behavior of Non-Spherical Particles. *Staub Reinhaltung Reinhaltung der Luft* 34, 197–102.
- Hu, B., Koylu, U., 2004. Size and Morphology of Soot Particulates Sampled from a Turbulent Nonpremixed Acetylene Flame. *Aerosol Science and Technology* 38, 1009–1018.
- Humphries, W., 1981. Influence of cloth structure on dust dislodgement from fabric filters. *Powder Technology* 28, 189–194.
- Humphries, W., Madden, J.J., 1983. Fabric filtration for coal-fired boilers : dust dislodgement in pulse-jet filters. *Filtration and Separation* 20, 40–42.
- Japuntich, D.A., Stenhouse, J.I.T., Liu, B.Y.H., 1994. Experimental results of solid monodisperse particle clogging of fibrous filters. *Journal of Aerosol Science* 25, 385–393.
- Japuntich, D.A., Stenhouse, J.I.T., Liu, B.Y.H., 1997. Effective pore diameter and monodisperse particle clogging of fibrous filters. *Journal of Aerosol Science* 28, 147–158.
- Joubert, A., Laborde, J.C., Artous, S., Bouilloux, L., Chazelet, S., Thomas, D., 2008. Influence de l'humidité sur le comportement aéraluque des filtres THE. Présenté à the Salles Propres, p. 55.
- Joubert, A., Laborde, J.C., Artous, S., Bouilloux, L., Chazelet, S., Thomas, D., 2009. Effect of air humidity on the clogging of mini-pleated and plane HEPA filters by hygroscopic and non-hygroscopic particles. Présenté à the FILTECH 2009, Wiesbaden, Germany, p. 55.
- Ju, J., Chiu, M.-S., Tien, C., 2001. Further work on pulse-jet fabric filtration modeling. *Powder Technology* 118, 79–89.
- Kanaoka, C., 1986. Morphology of particulate agglomerates on a cylindrical fiber and collection efficiency of a dust loaded fiber, *in: Aerosols—Formation and Reactivity*. Présenté à the Proceedings 2nd International Aerosol Conference, Pergamon Journals Ltd.: Oxford, Berlin, pp. 674–677.

- Kanaoka, C., Kishima, T., 1999. Observation of the process of dust accumulation on a rigid ceramic filter surface and the mechanism of cleaning dust from the filter surface. *Advanced Powder Technology* 10, 417–426.
- Kanniah, V., Wu, P., Mandzy, N., Grulke, E.A., 2012. Fractal analysis as a complimentary technique for characterizing nanoparticle size distributions. *Powder Technology* 226, 189–198.
- Kasper, G., Schollmeier, S., Meyer, J., 2010. Structure and density of deposits formed on filter fibers by inertial particle deposition and bounce. *Journal of Aerosol Science* 41, 1167–1182.
- Katrib, Y., Martin, S.T., Rudich, Y., Davidovits, P., Jayne, J.T., Worsnop, D.R., 2005. Density changes of aerosol particles as a result of chemical reaction. *Atmos. Chem. Phys.* 5, 275–291.
- Kelly, W.P., McMurry, P.H., 1992. Measurement of Particle Density by Inertial Classification of Differential Mobility Analyzer–Generated Monodisperse Aerosols. *Aerosol Science and Technology* 17, 199–212.
- Keskinen, J., Pietarinen, K., Lehtimäki, M., 1992. Electrical low pressure impactor. *Journal of Aerosol Science* 23, 353–360.
- Kim, J.H., Mulholland, G.W., Kukuck, S.R., 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, 31–54.
- Kim, S.C., Harrington, M.S., Pui, D.Y.H., 2007. Experimental study of nanoparticles penetration through commercial filter media. *Journal of Nanoparticle Research* 9, 117–125.
- Kim, S.C., Wang, J., Emery, M.S., Shin, W.G., Mulholland, G.W., Pui, D.Y.H., 2009. Structural Property Effect of Nanoparticle Agglomerates on Particle Penetration through Fibrous Filter. *Aerosol Science and Technology* 43, 344.
- Kim, S.C., Wang, J., Shin, W.G., Scheckman, J.H., Pui, D.Y.H., 2009. Structural Properties and Filter Loading Characteristics of Soot Agglomerates. *Aerosol Science and Technology* 43, 1033.
- Koch, D., Cheung, W., Seville, J.P.K., Clift, R., 1992. Effects of dust properties on gas cleaning using rigid ceramic filters. *Filtration & Separation* 29, 337–326.
- Koch, D., Seville, J., Clift, R., 1996. Dust cake detachment from gas filters. *Powder Technology* 86, 21–29.
- Kousaka, Y., Endo, Y., Ichitsubo, H., Alonso, M., 1996. Orientation-specific dynamic shape factors for doublets and triplets of spheres in the transition regime. *Aerosol science and technology* 24, 36–44.

- Köylü, Ü.Ö., Faeth, G.M., Farias, T.L., Carvalho, M.G., 1995. Fractal and projected structure properties of soot aggregates. *Combustion and Flame* 100, 621–633.
- Köylü, Ü.Ö., Xing, Y., Rosner, D.E., 1995. Fractal Morphology Analysis of Combustion-Generated Aggregates Using Angular Light Scattering and Electron Microscope Images. *Langmuir* 11, 4848–4854.
- Kreyling, W.G., Semmler, M., Möller, W., 2004. Dosimetry and toxicology of ultrafine particles. *J Aerosol Med* 17, 140–152.
- Ku, B.K., Maynard, A.D., 2006. Generation and investigation of airborne silver nanoparticles with specific size and morphology by homogeneous nucleation, coagulation and sintering. *Journal of Aerosol Science* 37, 452–470.
- Lall, A.A., Friedlander, S.K., 2006. On-line measurement of ultrafine aggregate surface area and volume distributions by electrical mobility analysis: I. Theoretical analysis. *Journal of Aerosol Science* 37, 260–271.
- Lall, A.A., Rong, W., Mädler, L., Friedlander, S.K., 2008. Nanoparticle aggregate volume determination by electrical mobility analysis: Test of idealized aggregate theory using aerosol particle mass analyzer measurements. *Journal of Aerosol Science* 39, 403–417.
- Lapuerta, M., Martos, F.J., Martín-González, G., 2010. Geometrical determination of the lacunarity of agglomerates with integer fractal dimension. *Journal of Colloid and Interface Science* 346, 23–31.
- Lee, C., Kramer, T.A., 2004. Prediction of three-dimensional fractal dimensions using the two-dimensional properties of fractal aggregates. *Advances in Colloid and Interface Science* 112, 49–57.
- Lee, J.-K., Kim, S.-C., Liu, B.Y.H., 2001. Effect of Bi-Modal Aerosol Mass Loading on the Pressure Drop for Gas Cleaning Industrial Filters. *Aerosol Science and Technology* 35, 805.
- Lee, K.O., Cole, R., Sekar, R., Choi, M.Y., Kang, J.S., Bae, C.S., Shin, H.D., 2002. Morphological investigation of the microstructure, dimensions, and fractal geometry of diesel particulates. *Proceedings of the Combustion Institute* 29, 647–653.
- Lee, S.Y., Widiyastuti, W., Tajima, N., Iskandar, F., Okuyama, K., 2009. Measurement of the Effective Density of Both Spherical Aggregated and Ordered Porous Aerosol Particles Using Mobility- and Mass-Analyzers. *Aerosol Science and Technology* 43, 136–144.
- Lee, W.-L., Hsieh, K.-S., 2010. A robust algorithm for the fractal dimension of images and its applications to the classification of natural images and ultrasonic liver images. *Signal Processing* 90, 1894–1904.
- Lehmann, M., 2005. Investigation of structure and loading kinetics of fibrous filters.

- Leith, D., Allen, R.W.K., 1986. Dust filtration by fabric filters. *Progress in filtration and separation* 4, 1–54.
- Leith, D., Ellenbecker, M.J., 1980. Theory for pressure drop in a pulse-jet cleaned fabric filter. *Atmospheric Environment (1967)* 14, 845–852.
- Leith, D., First, M.W., 1977. Performance of a Pulse-Jet Filter at High Filtration Velocity I. Particle Collection. *Journal of the Air Pollution Control Association* 27, 534–539.
- Leith, D., First, M.W., Feldman, H., 1977. Performance of a Pulse-Jet Filter At High Filtration Velocity II. Filter Cake Redeposition. *Journal of the Air Pollution Control Association* 27, 636–642.
- Letourneau, P., Mulcey, P., Vendel, J., 1987. Effect of dust loading on the pressure drop and efficiency of HEPA filters. *Filtration and Separation* 24, 265–267.
- Letourneau, P., Mulcey, P., Vendel, J., 1990. Aerosol penetration inside HEPA filtration media. Présenté à the 21st DOE nuclear air cleaning conference, San Diego.
- Leung, W.W.-F., Hung, C.-H., 2008. Investigation on pressure drop evolution of fibrous filter operating in aerodynamic slip regime under continuous loading of sub-micron aerosols. *Separation and Purification Technology* 63, 691–700.
- Levitas, V.I., Asay, B.W., Son, S.F., Pantoya, M., 2007. Mechanochemical mechanism for fast reaction of metastable intermolecular composites based on dispersion of liquid metal. *Journal of Applied Physics* 101, 083524–083524–20.
- Lo, L.-M., Chen, D.-R., Pui, D.Y.H., 2010. Experimental study of pleated fabric cartridges in a pulse-jet cleaned dust collector. *Powder Technology* 197, 141–149.
- Lo, L.-M., Hu, S.-C., Chen, D.-R., Pui, D.Y.H., 2010. Numerical study of pleated fabric cartridges during pulse-jet cleaning. *Powder Technology* 198, 75–81.
- Lu, H., Tsai, C., 1999. Influence of Design and Operation Parameters on Bag-Cleaning Performance of Pulse-Jet Baghouse. *Journal of Environmental Engineering* 125, 583–591.
- Lu, H.-C., Tsai, C.-J., 1996. Numerical and Experimental Study of Cleaning Process of a Pulse-Jet Fabric Filtration System. *Environ. Sci. Technol.* 30, 3243–3249.
- Lu, H.-C., Tsai, C.-J., 1998. A Pilot-Scale Study of the Design and Operation Parameters of a Pulse-Jet Baghouse. *Aerosol Science and Technology* 29, 510–524.
- Lu, H.-C., Tsai, C.-J., 2003. Influence of Different Cleaning Conditions on Cleaning Performance of Pilot-Scale Pulse-Jet Baghouse. *Journal of Environmental Engineering* 129, 811–818.
- Lucas, L., Yon, J., Coppalle, 2009. Caractérisation physique des agrégats de suie dans les flammes par analyse angulaire de la diffusion de la lumière. Présenté à the 24ème Congrès Français dur les Aérosols, Paris.

- MacNee, W., Donaldson, K., 2000. How can ultrafine particles be responsible for increased mortality? *Monaldi Arch Chest Dis* 55, 135–139.
- Mädler, L., Lall, A.A., Friedlander, S.K., 2006. One-step aerosol synthesis of nanoparticle agglomerate films: simulation of film porosity and thickness. *Nanotechnology* 17, 4783–4795.
- Mädler, L., Roessler, A., Pratsinis, S.E., Sahm, T., Gurlo, A., Barsan, N., Weimar, U., 2006. Direct formation of highly porous gas-sensing films by in situ thermophoretic deposition of flame-made Pt/SnO₂ nanoparticles. *Sensors and Actuators B: Chemical* 114, 283–295.
- Malard, S., 2010. (No. 121), *Documents pour le Médecin du Travail*. INRS.
- Mandelbrot, B., 1967. How Long Is the Coast of Britain? Statistical Self-Similarity and Fractional Dimension. *Science* 156, 636–638.
- Mandelbrot, B., 1983. *The fractal geometry of nature*. W.H. Freeman and Co, New York.
- Maricq, M.M., Xu, N., 2004. The effective density and fractal dimension of soot particles from premixed flames and motor vehicle exhaust. *Journal of Aerosol Science* 35, 1251–1274.
- Maricq, M.M., Xu, N., Chase, R.E., 2006. Measuring Particulate Mass Emissions with the Electrical Low Pressure Impactor. *Aerosol Science and Technology* 40, 68.
- Marjamäki, M., Keskinen, J., Chen, D.-R., Pui, D.Y.H., 2000. Performance evaluation of the electrical low-pressure impactor (ELPI). *Journal of Aerosol Science* 31, 249–261.
- Marjamäki, M., Lemmetty, M., Keskinen, J., 2005. ELPI - Response and Data Reduction I: Response Functions. *Aerosol Science and Technology* 39, 575.
- Mauret, E., Renaud, M., 1997. Transport phenomena in multi-particle systems--I. Limits of applicability of capillary model in high voidage beds-application to fixed beds of fibers and fluidized beds of spheres. *Chemical Engineering Science* 52, 1807–1817.
- McMurry, P.H., Wang, X., Park, K., Ehara, K., 2002. The relationship between mass and mobility for atmospheric particles: A new technique for measuring particle density. *Aerosol Science and Technology* 36, 227–238.
- Meakin, P., 1984. Diffusion-limited aggregation in three dimensions: Results from a new cluster-cluster aggregation model. *Journal of Colloid and Interface Science* 102, 491–504.
- Megaridis, C.M., Dobbins, R.A., 1990. A Bimodal Integral Solution of the Dynamic Equation for an Aerosol Undergoing Simultaneous Particle Inception and Coagulation. *Aerosol Science and Technology* 12, 240–255.
- Mizuno, M., Fukaya, A., Jimbo, G., 1991. The estimation of packing characteristics by centrifugal compaction of ultrafine particles. *Kona* 9, 19–27.

- Mocho, V.M., Ouf, F.-X., 2011. Clogging of industrial pleated high efficiency particulate air (HEPA) filters in the event of fire. *Nuclear Engineering and Design* 241, 1785–1794.
- Moisio, M., Marjamäki, M., Virtanen, A., Keskinen, J., 1999. Correction algorithm for fine particle losses in cascade impactor. *Journal of Aerosol Science* 30, Supplement 1, S773–S774.
- Morris, K., Allen, R.W.K., Clift, R., 1987. Adhesion of cakes to filter media. *Filtration & separation* 24, 41–45.
- Mountain, R.D., Mulholland, G.W., 1988. Light scattering from simulated smoke agglomerates. *Langmuir* 4, 1321–1326.
- Mouret, G., 2008. Étude de la filtration des aérosols nanométriques (Thèse de doctorat).
- Mouret, G., Thomas, D., Chazelet, S., Appert-Collin, J.-C., Bemer, D., 2009. Penetration of nanoparticles through fibrous filters perforated with defined pinholes. *Journal of Aerosol Science* 40, 762–775.
- Muller, H.R., Kern, R., Stahl, W., 1987. Adhesive forces between filter cloth and cake. *Filtration & separation* 24, 27–32.
- Naumann, K.-H., 2003. COSIMA—a computer program simulating the dynamics of fractal aerosols. *Journal of Aerosol Science* 34, 1371–1397.
- Neer, A., Koylu, U.O., 2006. Effect of operating conditions on the size, morphology, and concentration of submicrometer particulates emitted from a diesel engine. *Combustion and Flame* 146, 142–154.
- Nemmar, A., Hoet, P.H.M., Vanquickenborne, B., Dinsdale, D., Thomeer, M., Hoylaerts, M.F., Vanbilloen, H., Mortelmans, L., Nemery, B., 2002. Passage of Inhaled Particles Into the Blood Circulation in Humans. *Circulation* 105, 411–414.
- Novick, V.J., Higgins, P.J., Dierkschiede, B., Abrahamson, C., Richardson, W.B., Monson, P.R., Ellison, P.G., 1990. Efficiency and Mass Loading Characteristics of a Typical HEPA Filter Media Material. Présenté à the Proceedings of the 21st DOE/NRC Nuclear Air Cleaning Conference, San Diego, pp. 782–798.
- Novick, V.J., Monson, P.R., Ellison, P.E., 1992. The effect of solid particle mass loading on the pressure drop of HEPA filters. *Journal of Aerosol Science* 23, 657–665.
- Oberdörster, G., Oberdörster, E., Oberdörster, J., 2005. Nanotoxicology: an emerging discipline evolving from studies of ultrafine particles. *Environ. Health Perspect.* 113, 823–839.
- Oberdörster, G., Stone, V., Donaldson, K., 2007. Toxicology of nanoparticles: A historical perspective. *Nanotoxicology* 1, 2–25.

- Oh, C., Sorensen, C.M., 1997. The Effect of Overlap between Monomers on the Determination of Fractal Cluster Morphology. *Journal of Colloid and Interface Science* 193, 17–25.
- Oh, H., Park, H., Kim, S., 2004. Effects of Particle Shape on the Unipolar Diffusion Charging of Nonspherical Particles. *Aerosol Science and Technology* 38, 1045–1053.
- Okuyama, K., Kousaka, Y., Payatakes, A., 1981. Evaluation of the effect of nonsphericity of fine aggregate particles in brownian coagulation. *Journal of Colloid and Interface Science* 81, 21–31.
- Ostiguy, C., Lapointe, G., Ménard, L., Cloutier, Y., Trottier, M., Boutin, M., Antoun, M., Normand, C., 2006. Les nanoparticules : connaissances actuelles sur les risques et les mesures de prévention en santé et en sécurité du travail (Rapport interne No. R-455), *Études et recherches*. Rapport interne R-455, IRSST, Montréal.
- Ostiguy, C., Soucy, Lapointe, Woods, Ménard, Trottier, 2008. Les effets à la santé reliés aux nanoparticules. IRSST, Montréal, Quebec.
- Ouf, F.-X., 2006. Caractérisation des aérosols émis lors d'un incendie (Thèse de doctorat).
- Ouf, F.-X., Sillon, P., 2009. Charging efficiency of the electrical low pressure impactor's corona charger: Influence of the fractal morphology of nanoparticle aggregates and uncertainty analysis of experimental results. *Aerosol Science and Technology* 43, 685–698.
- Ouf, F.-X., Vendel, J., Coppalle, A., Weill, M., Yon, J., 2008. Characterization of Soot Particles in the Plumes of Over-Ventilated Diffusion Flames. *Combustion Science and Technology* 180, 674–698.
- Pagels, J., Khalizov, A.F., McMurry, P.H., Zhang, R.Y., 2009. Processing of Soot by Controlled Sulphuric Acid and Water Condensation—Mass and Mobility Relationship. *Aerosol Science and Technology* 43, 629–640.
- Park, K., Cao, F., Kittelson, D.B., McMurry, P.H., 2003. Relationship between particle mass and mobility for diesel exhaust particles. *Environmental Science and Technology* 37, 577–583.
- Park, K., Kittelson, D., McMurry, P., 2004. Structural Properties of Diesel Exhaust Particles Measured by Transmission Electron Microscopy (TEM): Relationships to Particle Mass and Mobility. *Aerosol Science and Technology* 38, 881–889.
- Park, K., Kittelson, D.B., Zachariah, M.R., McMurry, P.H., 2004. Measurement of Inherent Material Density of Nanoparticle Agglomerates. *Journal of Nanoparticle Research* 6, 267–272.
- Park, P.-K., Lee, C.-H., Lee, S., 2006. Permeability of Collapsed Cakes Formed by Deposition of Fractal Aggregates upon Membrane Filtration. *Environmental Science & Technology* 40, 2699–2705.

- Payatakes, A.C., 1976. Model of the dynamic behavior of a fibrous filter. Application to case of pure interception during period of unhindered growth. *Powder Technology* 14, 267–278.
- Payatakes, A.C., Gradoń, L., 1980. Dendritic deposition of aerosol particles in fibrous media by inertial impaction and interception. *Chemical Engineering Science* 35, 1083–1096.
- Payatakes, A.C., Tien, C., 1976. Particle deposition in fibrous media with dendrite-like pattern: A preliminary model. *Journal of Aerosol Science* 7, 85–100.
- Penicot, P., 1998. Etude de la performance de filtres à fibres lors de la filtration d'aérosols liquides ou solides submicroniques. (Thèse de doctorat).
- Penicot, P., Thomas, D., Contal, P., Leclerc, D., Vendel, J., 1999. Clogging of HEPA fibrous filters by solid and liquid aerosol particles: An experimental study. *Filtration & Separation* 36, 59–64.
- Penttinen, P., Timonen, K.L., Tiittanen, P., Mirme, A., Ruuskanen, J., Pekkanen, J., 2001. Ultrafine particles in urban air and respiratory health among adult asthmatics. *Eur. Respir. J.* 17, 428–435.
- Peters, A., Dockery, D.W., Muller, J.E., Mittleman, M.A., 2001. Increased Particulate Air Pollution and the Triggering of Myocardial Infarction. *Circulation* 103, 2810–2815.
- Peters, A., Wichmann, H.E., Tuch, T., Heinrich, J., Heyder, J., 1997. Respiratory effects are associated with the number of ultrafine particles. *Am. J. Respir. Crit. Care Med.* 155, 1376–1383.
- Pope, C.A., Burnett, R.T., Thurston, G.D., Thun, M.J., Calle, E.E., Krewski, D., Godleski, J.J., 2004. Cardiovascular mortality and long-term exposure to particulate air pollution: Epidemiological evidence of general pathophysiological pathways of disease. *Circulation* 109, 71–77.
- Proner, A., 1999. Revêtements par projection thermique (document internet). *Techniques de l'ingénieur*.
- Puri, R., Richardson, T.F., Santoro, R.J., Dobbins, R.A., 1993. Aerosol dynamic processes of soot aggregates in a laminar ethene diffusion flame. *Combustion and Flame* 92, 320–333.
- Reinmann, R., Akram, M., 1997. Temporal investigation of a fast spark discharge in chemically inert gases. *Journal of physics. D, Applied physics* 30, 1125–1134.
- Renoux, A., Boulaud, D., 1998. Les aérosols : physique et métrologie. Tec&Doc-Lavoisier, Paris.
- Ristimäki, J., Virtanen, A., Marjamäki, M., Rostedt, A., Keskinen, J., 2002. On-line measurement of size distribution and effective density of submicron aerosol particles. *Journal of Aerosol Science* 33, 1541–1557.

- Rogak, S.N., Flagan, R.C., 1992. Bipolar diffusion charging of spheres and agglomerate aerosol particles. *Journal of Aerosol Science* 23, 693–710.
- Rogak, S.N., Flagan, R.C., Nguyen, H.V., 1993. The Mobility and Structure of Aerosol Agglomerates. *Aerosol Science and Technology* 18, 25–47.
- Roth, C., Ferron, G.A., Karg, E., Lentner, B., Schumann, G., Takenaka, S., Heyder, J., 2004. Generation of Ultrafine Particles by Spark Discharging. *Aerosol Science and Technology* 38, 228–235.
- Rothwell, E., 1990. Pulse-driven injectors for fabric dust filters III: comparative performance of model and commercial assemblies. *Filtration & Separation* 27, 345–349.
- Rumpf, H., 1962. The strength of granules and agglomerates., *in: Agglomeration*. W. A. Knepper, New York.
- Samet, J.M., Dominici, F., Curriero, F.C., Coursac, I., Zeger, S.L., 2000. Fine particulate air pollution and mortality in 20 U.S. cities, 1987-1994. *N. Engl. J. Med.* 343, 1742–1749.
- Samson, R.J., Mulholland, G.W., Gentry, J.W., 1987. Structural analysis of soot agglomerates. *Langmuir* 3, 272–281.
- Savary, B., 2011. Procédés de Projection thermique. Etude de filières. (Rapport interne). Nancy, France.
- Schmidt-Ott, A., Baltensperger, U., Gäggeler, H.W., Kost, D.T., 1990. Scaling behaviour of physical parameters describing agglomerates. *Journal of aerosol science* 21, 711–717.
- Schneider, J.E., Peterson, N.A., Vaughn, T.E., Mooss, E.N., Doebbeling, B.N., 2006. Clinical Practice Guidelines and Organizational Adaptation: A Framework for Analyzing Economic Effects. *International Journal of Technology Assessment in Health Care* 22, 58–66.
- Seaton, A., MacNee, W., Donaldson, K., Godden, D., 1995. Particulate air pollution and acute health effects. *Lancet* 345, 176–178.
- Seville, J.P.K., Cheung, W., Cliff, R., 1989. A patchy cleaning interpretation of dust cake release from non- woven fabrics. *Filtration & Separation* 26, 187–190.
- Shapiro, M., Vainshtein, P., Dutcher, D., Emery, M., Stolzenburg, M., Kittelson, D.B., McMurry, P.H., 2012. Characterization of agglomerates by simultaneous measurement of mobility, vacuum aerodynamic diameter and mass. *Journal of Aerosol Science* 44, 24–45.
- Shi, J.P., Harrison, R.M., Evans, D., 2001. Comparison of ambient particle surface area measurement by epiphaniometer and SMPS/APS. *Atmospheric Environment* 35, 6193–6200.

- Shin, 2009. Methanol extract of *Elaeagnus glabra*, a Korean medicinal plant, inhibits HT1080 tumor cell invasion. *Oncology Reports*.
- Shin, W.G., Mulholland, G.W., Kim, S.C., Pui, D.Y.H., 2008. Experimental study of filtration efficiency of nanoparticles below 20 nm at elevated temperatures. *Journal of Aerosol Science* 39, 488–499.
- Shin, W.G., Mulholland, G.W., Kim, S.C., Wang, J., Emery, M.S., Pui, D.Y.H., 2009. Friction coefficient and mass of silver agglomerates in the transition regime. *Journal of Aerosol Science* 40, 573–587.
- Shin, W.G., Mulholland, G.W., Pui, D.Y.H., 2010. Determination of volume, scaling exponents, and particle alignment of nanoparticle agglomerates using tandem differential mobility analyzers. *Journal of Aerosol Science* 41, 665–681.
- Shin, W.G., Wang, J., Mertler, M., Sachweh, B., Fissan, H., Pui, D.Y.H., 2010. The effect of particle morphology on unipolar diffusion charging of nanoparticle agglomerates in the transition regime. *Journal of Aerosol Science* 41, 975–986.
- Sievert, J., Loeffler, F., 1987. Dust cake release from non-woven fabrics. *Filtration & separation* 24, 424–427.
- Sievert, J., Löffler, F., 1989. Fabric cleaning in pulse-jet filters. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* 26, 179–183.
- Simon, X., 2005. Etude du décolmatage pneumatique des dépoussiéreurs à manches (Thèse de doctorat).
- Simon, X., Bémer, D., Chazelet, S., Thomas, D., Régnier, R., 2010. Consequences of high transitory airflows generated by segmented pulse-jet cleaning of dust collector filter bags. *Powder Technology* 201, 37–48.
- Skillas, G., Künzel, S., Burtscher, H., Baltensperger, U., Siegmann, K., 1998. High fractal-like dimension of diesel soot agglomerates. *Journal of Aerosol Science* 29, 411–419.
- Slowik, J.G., Cross, E.S., Han, J.-H., Kolucki, J., Davidovits, P., Williams, L.R., Onasch, T.B., Jayne, J.T., Kolb, C.E., Worsnop, D.R., 2007. Measurements of Morphology Changes of Fractal Soot Particles using Coating and Denuding Experiments: Implications for Optical Absorption and Atmospheric Lifetime. *Aerosol Science and Technology* 41, 734–750.
- Slowik, J.G., Stainken, K., Davidovits, P., Williams, L.R., Jayne, J.T., Kolb, C.E., Worsnop, D.R., Rudich, Y., DeCarlo, P.F., Jimenez, J.L., 2004. Particle Morphology and Density Characterization by Combined Mobility and Aerodynamic Diameter Measurements. Part 2: Application to Combustion-Generated Soot Aerosols as a Function of Fuel Equivalence Ratio. *Aerosol Science and Technology* 38, 1206–1222.
- Smith, D.H., Powell, V., Ahmadi, G., Ferer, M., 1998. Analysis of Operational Filtration Data Part III: Re-entrainment and Incomplete Cleaning of Dust Cake. *Aerosol Science and Technology* 29, 224–235.

- Song, C.B., Park, H.S., Lee, K.W., 2006. Experimental study of filter clogging with monodisperse PSL particles. *Powder Technology* 163, 152–159.
- Sorensen, C.M., 2001. Light scattering by fractal aggregates : A review. *Aerosol science and technology* 35, 648–687.
- Sorensen, C.M., Roberts, G.C., 1997. The Prefactor of Fractal Aggregates. *Journal of Colloid and Interface Science* 186, 447–452.
- Stöcklmayer, C., Höflinger, W., 1998. The effect of dust-compression on the residual pressure drop of dust filters — a simulation approach., in: *PARTEC 1998, Proc. 4th European Symposium Separation of Particles from Gases*. Nürnberg, Germany.
- Tanabe, E.H., Barros, P.M., Rodrigues, K.B., Aguiar, M.L., 2011. Experimental investigation of deposition and removal of particles during gas filtration with various fabric filters. *Separation and Purification Technology* 80, 187–195.
- Thomas, D., Ouf, F.-X., Gensdarmes, F., Charvet, A., Monnier, N., Appert-Collin, J.-C., 2011. Perte de charge d'un dépôt de particules nanostructurées - Application aux aérosols d'incendie. Présenté à the SF2P - 2èmes Journées Francophones des Séparations Fluides-Particules, Nancy, France.
- Thomas, D., Penicot, P., Contal, P., Leclerc, D., Vendel, J., 2001. Clogging of fibrous filters by solid aerosol particles experimental and modelling study. *Chemical Engineering Science* 56, 3549–3561.
- Unger, L., Boulaud, D., Borra, J.P., 2004. Unipolar field charging of particles by electrical discharge: effect of particle shape. *Journal of Aerosol Science* 35, 965–979.
- Utell, M.J., Frampton, M.W., 2000. Acute health effects of ambient air pollution: the ultrafine particle hypothesis. *J Aerosol Med* 13, 355–359.
- Valmari, T., Lehtimäki, M., Taipale, A., 2006. Filter Clogging by Bimodal Aerosol. *Aerosol Science & Technology* 40, 255–260.
- Van Gulijk, C., Marijnissen, J.C.M., Makkee, M., Moulijn, J.A., Schmidt-Ott, A., 2004. Measuring diesel soot with a scanning mobility particle sizer and an electrical low-pressure impactor: performance assessment with a model for fractal-like agglomerates. *Journal of Aerosol Science* 35, 633–655.
- Vibhavata, P., 2009. Caractérisation des propriétés physiques d'un dépôt d'agrégats nanostructurés formé lors du colmatage de médias fibreux (Rapport de Master). ENSIC, INPL NANCY.
- Virtanen, A., Marjamäki, M., Ristimäki, J., Keskinen, J., 2001. Fine particle losses in electrical low-pressure impactor. *Journal of Aerosol Science* 32, 389–401.
- Virtanen, A., Ristimäki, J., Keskinen, J., 2004. Method for measuring effective density and fractal dimension of aerosol agglomerates. *Aerosol Science and Technology* 38, 437–446.

- Virtanen, A., Ristimäki, J., Marjamäki, M., Vaaraslahti, K., Keskinen, J., Lappi, M., 2002. Effective Density of Diesel Exhaust Particles as a Function of Size (No. 2002-01-0056). SAE International, Warrendale, PA.
- Walsh, D.C., Stenhouse, J.I.T., Scurrah, K.L., Graef, A., 1996. Effect of solid and liquid aerosol particle loading on fibrous filter material performance. *Journal of Aerosol Science* 27.
- Wang, B., Feng, W.-Y., Wang, T.-C., Jia, G., Wang, M., Shi, J.-W., Zhang, F., Zhao, Y.-L., Chai, Z.-F., 2006. Acute toxicity of nano- and micro-scale zinc powder in healthy adult mice. *Toxicol. Lett.* 161, 115–123.
- Wang, G.M., Sorensen, C.M., 1999. Diffusive mobility of fractal aggregates over the entire Knudsen number range. *Phys Rev E Stat Phys Plasmas Fluids Relat Interdiscip Topics* 60, 3036–3044.
- Wang, H., Zhao, H., Guo, Z., Zheng, C., 2011. Numerical simulation of particle capture process of fibrous filters using Lattice Boltzmann two-phase flow model. *Powder Technology*.
- Wang, J., Chen, D.R., Pui, D.Y.H., 2007. Modeling of filtration efficiency of nanoparticles in standard filter media. *Journal of Nanoparticle Research* 9, 109–115.
- Wang, S.C., Flagan, R.C., 1990. Scanning Electrical Mobility Spectrometer. *Aerosol Science and Technology* 13, 230–240.
- Wang, Z., King, S.M., Freney, E., Rosenoern, T., Smith, M.L., Chen, Q., Kuwata, M., Lewis, E.R., Pöschl, U., Wang, W., Buseck, P.R., Martin, S.T., 2010. The Dynamic Shape Factor of Sodium Chloride Nanoparticles as Regulated by Drying Rate. *Aerosol Science and Technology* 44, 939–953.
- Wen, H.Y., Reischl, G.P., Kasper, G., 1984a. Bipolar diffusion charging of fibrous aerosol particles—I. charging theory. *Journal of Aerosol Science* 15, 89–101.
- Wen, H.Y., Reischl, G.P., Kasper, G., 1984b. Bipolar diffusion charging of fibrous aerosol particles—II. charge and electrical mobility measurements on linear chain aggregates. *Journal of Aerosol Science* 15, 103–122.
- Wentzel, M., Gorzawski, H., Naumann, K.-H., Saathoff, H., Weinbruch, S., 2003. Transmission electron microscopical and aerosol dynamical characterization of soot aerosols. *Journal of Aerosol Science* 34, 1347–1370.
- Wichmann, H.-E., Spix, C., Tuch, T., Wölke, G., Peters, A., Heinrich, J., 2000. Daily mortality and fine and ultrafine particles in Erfurt, Germany. (No. 98). Health Effects Institute, Cambridge, MA, USA.
- Wiedensohler, A., 1988. An approximation of the bipolar charge distribution for particles in the submicron size range. *Journal of Aerosol Science* 19, 387–389.

- Willeke, K., 1976. Temperature dependence of particle slip in a gaseous medium. *Journal of Aerosol Science* 7, 381–387.
- Witschger, O., Fabriès, J.-F., 2005. Particules ultra-fines et santé au travail - Caractéristiques et effets potentiels sur la santé. (No. ND 2227), *Note documentaire*. INRS.
- Wu, M.K., Friedlander, S.K., 1993. Note on the Power Law Equation for Fractal-like Aerosol Agglomerates. *Journal of Colloid and Interface Science* 159, 246–248.
- Yu, A.B., Bridgwater, J., Burbidge, A., 1997. On the modelling of the packing of fine particles. *Powder Technology* 92, 185–194.
- Yu, A.B., Feng, C.L., Zou, R.P., Yang, R.Y., 2003. On the relationship between porosity and interparticle forces. *Powder Technology* 130, 70–76.
- Zelenyuk, A., Cai, Y., Imre, D., 2006. From Agglomerates of Spheres to Irregularly Shaped Particles: Determination of Dynamic Shape Factors from Measurements of Mobility and Vacuum Aerodynamic Diameters. *Aerosol Science and Technology* 40, 197–217.
- Zhou, Y.-M., Zhong, C.-Y., Kennedy, I.M., Leppert, V.J., Pinkerton, K.E., 2003. Oxidative stress and NFkappaB activation in the lungs of rats: a synergistic interaction between soot and iron particles. *Toxicol. Appl. Pharmacol.* 190, 157–169.

Lexique

Coefficient de Cunningham

Le coefficient de Cunningham, noté C_u , est utilisé pour les particules de taille nanométrique où le milieu ne peut plus être considéré comme continu. Il permet de tenir compte que la vitesse relative non nulle des molécules du gaz porteur autour de la particule lorsque le libre parcours moyen λ_g est du même ordre de grandeur que la taille des particules. Cette vitesse relative induit une diminution de la force de frottement du gaz sur la particule en mouvement, corrigée par ce facteur.

Le coefficient de Cunningham est adimensionnel et s'écrit (Cunningham, 1910) :

$$C_u = 1 + 2 \frac{\lambda_g}{d_p} \left[a + b \exp\left(-\frac{d_p}{2 \lambda_g} c\right) \right]$$

avec a, b et c, jeu de constantes déterminées expérimentalement, pour lesquelles différentes valeurs ont été fournies par plusieurs auteurs. Le jeu de valeur utilisé par la suite est celui déterminé récemment par Kim et al (2005), à savoir :

$$\left\{ \begin{array}{l} a = 1,165 \\ b = 0,483 \\ c = 0,997 \end{array} \right.$$

Coefficient de diffusion

La diffusion est un transport irréversible dans un milieu qui s'effectue d'une zone de forte concentration vers une zone de faible concentration par unité de surface et de de temps. La loi de Fick permet de lier le flux de particules φ au gradient de concentration C_N suivant la direction z :

$$\varphi = -D \frac{dC_N}{dz}$$

Le coefficient de diffusion D d'une particule sphérique de rayon r_p est quant à lui calculé dans le domaine de Stokes-Cunningham par la formule cité par Renoux et Boulaux(1998). Son unité est le $m^2.s^{-1}$.

$$D = \frac{k_B T C u}{6 \pi \mu_g r_p}$$

avec k_B , la constante de Boltzmann ($1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$), T , la température (K), μ_g , la viscosité dynamique (Pa.s), r_p , le rayon de la particule sphérique (m)

Coefficient de Kozeny

Ce coefficient établit un lien entre la porosité d'un milieu et sa tortuosité. Ces deux derniers paramètres varient selon la géométrie des particules, et plus particulièrement dans le cas d'un empilement de particules non sphériques (Comiti & Renaud, 1989). Par conséquent, le coefficient de Kozeny également. Plusieurs expressions empiriques de h_k sont disponibles dans la littérature. Parmi elles, citons :

Expressions du coefficient de Kozeny (Mauret & Renaud, 1997)

Auteurs	Expression de Kozeny h_k
Davies (1953)	$h_k = 4 \frac{\varepsilon^3}{(1 - \varepsilon)^{0,5}} [1 + 56(1 - \varepsilon)^3]$
Carroll (1965)	$h_k = 5 + \exp[14(\varepsilon - 0,8)]$
Ingmanson (1959)	$h_k = 3,5 \frac{\varepsilon^3}{(1 - \varepsilon)^{0,5}} [1 + 57(1 - \varepsilon)^3]$

Le coefficient h_k sera calculé à partir de la relation de Carroll. Soit,

$$h_k = 5 + \exp[14(\varepsilon - 0,8)]$$

Compacité

La compacité est directement liée à la porosité. En effet, la porosité est utilisée pour exprimer le pourcentage de volume de vide présent dans une structure. La compacité, elle, exprime le pourcentage de volume de matière présent dans la structure.

Ainsi,

$$\alpha = 1 - \varepsilon = 1 - \frac{V_{vide}}{V_{total}} = \frac{V_{matière}}{V_{total}}$$

α est adimensionnel.

Libre parcours moyen

Le libre parcours moyen λ_g (m) représente la distance moyenne que parcourt une particule entre deux collisions. Il est calculé suivant la formule d'Allen et Raabe (1982).

$$\lambda_g = \lambda_r \left(\frac{T}{T_r} \right) \left(\frac{P_r}{P} \right) \left(\frac{1 + \frac{S}{T_r}}{1 + \frac{S}{T}} \right)$$

avec P, la pression de l'expérience (Pa), T, la température (K), P_r , la pression de référence (101,3 kPa), T_r , la température de référence (296,15 K), S, la constante de Sutherland (K) (110,4 K pour l'air) et λ_r , le libre parcours moyen de référence (67,3 nm)

La constante de Sutherland est une valeur tabulée. Elle vaut pour l'air 110,4 K.

Viscosité dynamique

Elle est calculée suivant la formule de Willeke (1976) : La variation de la viscosité d'un gaz avec la température est approchée par la relation de Sutherland. Cette relation est rappelée dans les travaux de Willeke (1976).

$$\mu_g = \mu_r \left(\frac{T}{T_r} \right)^{3/2} \left(\frac{T_r + S}{T + S} \right)$$

avec $\mu_r = 1,85 \cdot 10^{-5}$ Pa.s pour l'air aux pression et température de référence. Son unité est le Pa.s.

Nombre de Knudsen

L'écoulement d'un gaz autour d'une particule est caractérisé par le nombre adimensionnel de Knudsen Kn (Baron & Willeke, 2001). Ce nombre est défini comme le rapport entre le libre parcours moyen des molécules du gaz porteur λ_g et le diamètre de la particule d_p .

$$Kn = \frac{2 \lambda_g}{d_p}$$

Selon sa valeur, trois types d'écoulement sont possibles :

-
- Continu ($Kn \ll 0,1$)
Le système gaz-solide est considéré comme un milieu continu. Il peut être décrit par des variables macroscopiques (pression, température, vitesse)
 - intermédiaire ($Kn \approx 1$)
Le libre parcours moyen est du même ordre de grandeur que le rayon de la particule. Des forces de frottements apparaissent autour de la particule. C'est le phénomène de glissement.
 - Moléculaire ($Kn \gg 10$)
Le libre parcours moyen est bien supérieur au rayon de la particule. Le milieu ne peut plus être considéré comme continu. Les collisions entre les molécules du gaz porteur et la particule sont plus nombreuses que les collision entre les molécule du gaz porteur.

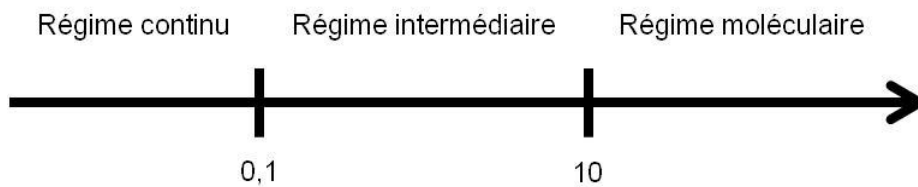


Illustration des écoulements selon le nombre de Knudsen

Annexe

Annexe 1

Caractéristiques techniques du dépoussiéreur industriel

Le dessin technique ci-dessous représente le modèle DownFlo® 3-3. Il diffère essentiellement du modèle 3-12 utilisé dans ce travail par le nombre de cartouche par étage.

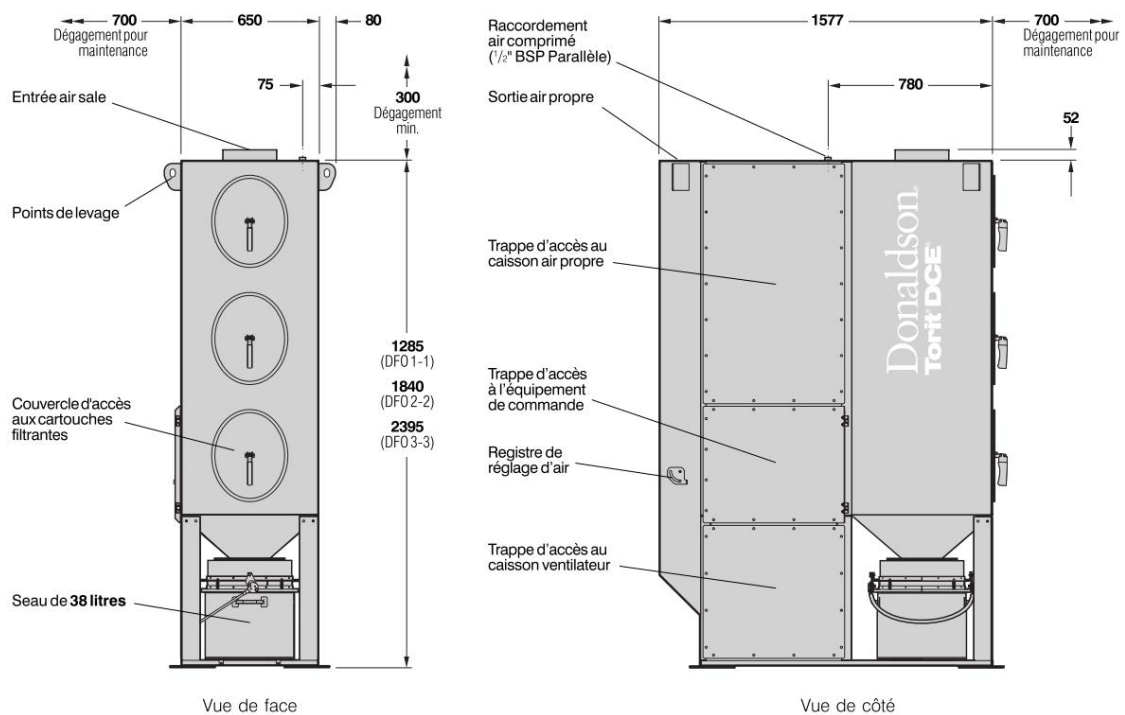


Figure A1.1 : Caractéristiques techniques du dépoussiéreur industriel

Annexe 2

Description technique des cartouches

Ultra-Web®	
Apparence	bleu, carton ondulé
Utilisation	Filtre plissé
Composition	Substrat de cellulose avec couche de nanofibres
Masse surfacique (DIN 53884)	114 g.m ⁻²
Epaisseur (DIN 53885)	0,28 mm
Perméabilité à l'air (DIN 53887)	400 m ³ .m ⁻² .h ⁻¹ à 200 Pa
Résistance électrique surfacique (DIN 54345)	4,5.10 ⁹ Ohm
Catégorie BIA (DIN 60335-2-69)	Classe M Rapport de test n° 200423074/6210
Température (dry heat)	
Continue	65°C
Pic	80°C
Résistance chimique	
Acides	Faible
Alcalins	Normal
Agents oxydants	Faible
Solvants organiques	Normal
Résistance à l'abrasion	Bon
Supporte la combustion	Oui
Champ d'application	Performances excellentes sur de l'air ambiant, poussières extrêmement fines et non fibreuses et plusieurs poussières abrasives. Haute efficacité de filtration sur les particules ultrafines inférieures au micron. Applications caractéristiques incluant la métallisation, la découpe au laser, le domaine pharmaceutique, les fumées de soudage, grenailage, ...

Filtru-Web®	
Apparence	bleu, carton ondulé
Utilisation	Filtre plissé
Composition	Substrat synthétique/verre avec couche de nanofibres
Masse surfacique (DIN 53884)	114 g.m ⁻²
Epaisseur (DIN 53885)	0,56 mm
Perméabilité à l'air (DIN 53887)	630 m ³ .m ⁻² .h ⁻¹ à 200 Pa
Résistance électrique surfacique (DIN 54345)	Supérieur à 10 ¹² Ohm
Catégorie BIA (DIN 60335-2-69)	Classe M Rapport de test n° 200322182/6210
Température (dry heat)	
Continue	65°C
Pic	80°C
Résistance chimique	
Acides	Bon
Alcalins	Bon
Agents oxydants	Normal
Solvants organiques	Bon
Résistance à l'abrasion	Excellent
Supporte la combustion	Oui
Champ d'application	L'espace des larges plis permet un nettoyage par impulsion complet des particules fibreuses et agglomérées. Excellentes performances sur des poussières combinant des poussières fibreuses et non-fibreuses, et/ou des poussières agglomérées. Haute efficacité de filtration sur les particules ultrafines inférieures au micron. Broyage de composites, procédés alimentaires, polissage des métaux, le domaine pharmaceutique, le textile le travail du bois

Annexe 3

Description des mécanismes de l'ELPI

Charge globale n_T

Deux phénomènes sont à prendre en compte pour déterminer la charge globale n_T .

- Charge par diffusion des ions

Il correspond au choc entre un ion et une particule. Ce phénomène est lié à la diffusion des ions. Le nombre de charges (positives) n_d acquis par la particule au cours du temps t par cet effet vaut (Hinds, 1999; Baron & Willeke, 2001) :

$$n_d(d_p, t) = \frac{2\pi\epsilon_0 d_p kT}{e^2} \ln \left[1 + \frac{e^2 \bar{c}_i \pi d_p N_i t}{8\epsilon_0 kT} \right]$$

avec ϵ_0 , la permittivité du vide ($8,85 \cdot 10^{-12} \text{ C}^2 \cdot \text{N}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$), d_p , le diamètre de la particule (assimilées à une sphère), T , la température (K) et c_i , la vitesse moyenne des ions ($240 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$)

- Charge par champ électrique

Ce sont les charges acquises par les particules dans un champ électrique intense. Hinds décrit le nombre de charges n_c acquises par ce phénomène :

$$n_c(d_p, \zeta_p, t) = \left(\frac{3\zeta_p}{\zeta_p + 2} \right) \pi \epsilon_0 E d_p^2 \left(\frac{Z_i N_i t}{4\epsilon_0 + e Z_i N_i t} \right)$$

avec ζ_p : Permittivité relative de la particule, Z_i , la mobilité électrique des ions ($1,5 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$) et E , l'intensité du champ électrique dans le chargeur ELPI ($1,67 \cdot 10^5 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$).

Par la somme de ces deux effets, nous pouvons connaître le nombre de charge théorique porté en moyenne par les particules en sortie du chargeur.

$$n_T(\mathbf{d}_p, \zeta_p, t) = n_d(\mathbf{d}_p, t) + n_c(\mathbf{d}_p, \zeta_p, t)$$

Pendant la traversée du chargeur, certaines particules vont rester piégées dans l'ensemble « chargeur + trap ions ». Pour tenir compte de ces pertes, un facteur de pénétration globale P_T est introduit.

Pénétration globale P_T

La pénétration globale P_T est le produit des deux pénétrations P_{charging} et P_{trap} correspondant respectivement aux pertes dans la zone de charge et le piège à ions. Ainsi,

$$P_{\text{charging}}(\mathbf{d}_p, \zeta_p, t) = \exp\left(-2 n_T(\mathbf{d}_p, \zeta_p, t) B(\mathbf{d}_p) e E \frac{t}{r_{\text{outer}}}\right)$$

avec r_{outer} , le rayon extérieur du piège à ions (3 cm) et $B(\mathbf{d}_p)$, la mobilité dynamique de la particule ($\text{m} \cdot \text{N}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$),

$$P_{\text{trap}}(\mathbf{d}_p, \varepsilon_p, t) = 1 - \frac{2\pi n_T(\mathbf{d}_p, \varepsilon_p, t) B(\mathbf{d}_p) e U L_i}{Q \ln\left(\frac{r_{\text{outer}}}{r_{\text{inner}}}\right)}$$

avec r_{inner} , le rayon intérieur du piège à ions (2,65 cm), L_i , la longueur du piège à ions (1,5 cm) et U , la tension du piège à ions (400 V).

Soit globalement,

$$P_T(\mathbf{d}_p, \varepsilon_p, t) = P_{\text{charging}}(\mathbf{d}_p, \varepsilon_p, t) P_{\text{trap}}(\mathbf{d}_p, \varepsilon_p, t)$$

Efficacité de charge globale expérimentale

Moisio (Moisio et al., 1999) a déterminé expérimentalement une expression de l'efficacité globale de charge E_{ch} du chargeur. Elle vaut alors :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \frac{Q_r}{10} 4,48 (d_m)^{1,9087} & \text{pour } d_m < 0,095 \\ \frac{Q_r}{10} 1,293 (d_m)^{1,3805} & \text{pour } 0,095 \leq d_m < 1,196 \\ \frac{Q_r}{10} 1,3529 (d_m)^{1,1308} & \text{pour } d_m > 1,196 \end{array} \right.$$

avec Q_r , le débit réel ($9,5 \text{ L.min}^{-1}$ dans notre cas) et Q_n le débit de référence de l'ELPI (10 L.min^{-1}) et d_m en μm . Le logiciel de calcul ELPIVI vendu avec l'ELPI utilise ce jeu d'équations.

Efficacités de collecte de l'impacteur

A la sortie du chargeur, les particules entrent dans la partie impacteur de l'ELPI où elles sont réparties sur les différents plateaux selon leurs diamètres aérodynamique respectifs. Quatre mécanismes de collecte entrent en jeu dans cette partie. Toutes ces équations sont issues de la publication de Marjamäki (Marjamäki et al., 2005).

Efficacité de collecte primaire

Le mécanisme de collecte principal est l'efficacité de collecte par impaction E^P .

$$E^P = \frac{1}{\left[1 + \left(\frac{d_{p,50}}{d_p} \right)^{2s} \right]}$$

E^P est fonction des caractéristiques de chaque plateau : diamètre géométrique $d_{p,50}$ et pente s . Ces données sont récapitulées dans le tableau ci-après.

Plateau	$d_{p,50}$ (m)	s
1	2.80E-08	3.413
2	5.50E-08	4.2936
3	9.40E-08	2.9415
4	1.58E-07	3.1026
5	2.64E-07	3.5774
6	3.84E-07	9.2669
7	6.16E-07	5.8714
8	9.52E-07	8.7742
9	1.61E-06	4.8827
10	2.40E-06	5.5918
11	4.01E-06	4.5316
12	6.71E-06	4.4947
13	9.95E-06	3.8548

Tableau A3.1 : Pentes pour le calcul d'efficacité de collecte par impaction de l'ELPI

Le plateau 13 correspond à un pré-impacteur pour fixer une limite supérieure à l'ELPI. Il n'est pas équipé d'électromètre et donc aucun signal n'est récupéré à cet étage.

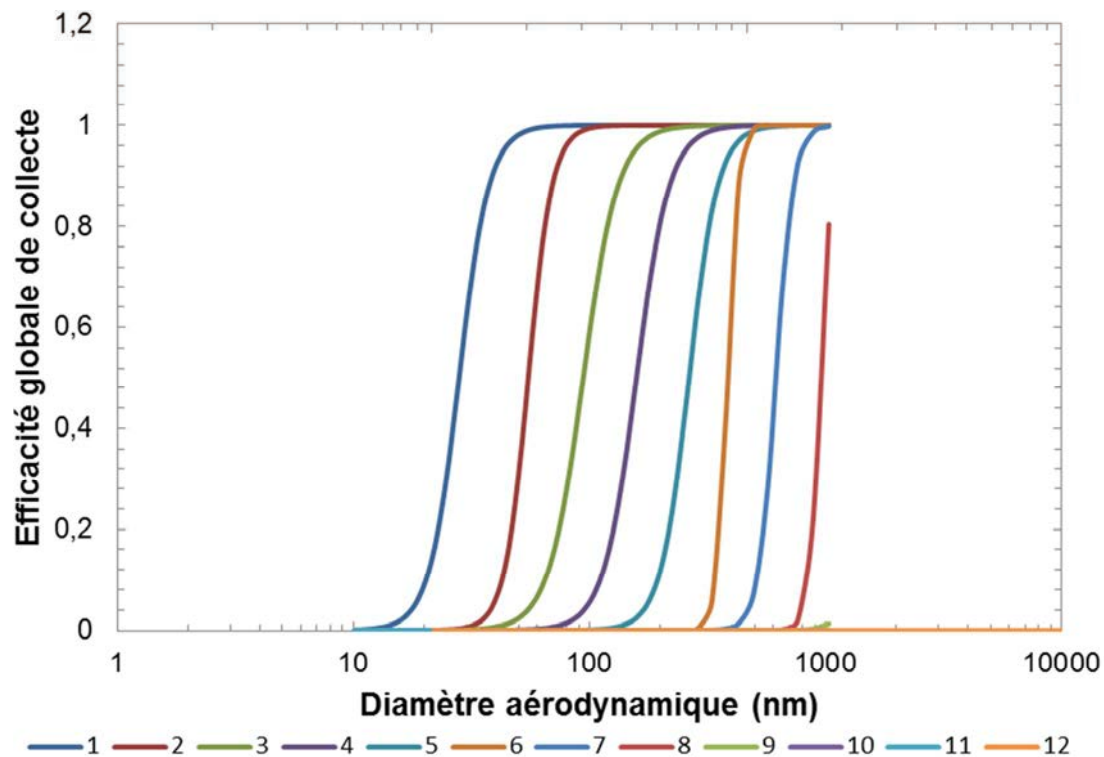


Figure A3.1 : Courbes des efficacités de collectes par plateau par impaction. Les chiffres dans la légende correspondent au numéro du plateau

Efficacité de collecte secondaire

Trois mécanismes secondaires viennent compléter l'impaction primaire.

- Efficacité de collecte par diffusion

La diffusion dans l'impacteur dépend du débit circulant dans l'impacteur, du coefficient de diffusion des particules et de la géométrie des plateaux d'impaction. L'efficacité de collecte par diffusion E^D s'écrit :

$$E^D = 1 - e^{-k Sh}$$

Avec

$$k = \frac{\pi DL}{Q}$$

Et Sh, le nombre de Sherwood

$$Sh = 3.66 + \frac{0.2672}{k + 0.10079 k^{1/3}}$$

- Efficacité de collecte par force image E^{IM}

L'efficacité de collecte par force image E^{IM} peut être estimé par

$$E^{IM} = 1 - e^{-kcq^2}$$

avec q, la charge de la particule (C)

$$q = 74.714 * d_m^{1.1099}$$

- Efficacité de collecte par space-charging

L'efficacité de collecte par space-charging E^{SC} n'intervient qu'en présence de fortes concentrations d'ions. Elle s'écrit :

$$E_i^{SC} = 1 - \frac{1}{1 + \frac{Z_i t_i}{\epsilon_0 Q}}$$

avec

$$i_i = \sum_0^i I_j$$

où I_j est le courant sur le plateau j , t_i , le temps de séjour sur le plateau, ϵ_0 , la permittivité du vide et Q , le débit dans l'impacteur.

Cette efficacité est en pratique très difficile à calculer. Virtanen (Virtanen et al., 2001) estime pour un courant de 200 000 fA sur un plateau une efficacité de collecte de 0,2%. Nous n'atteindrons jamais de tels courants avec nos aérosols. C'est pourquoi nous négligerons cette efficacité dans la modélisation.

Efficacité de collecte globale

En calculant toutes les efficacités décrites ci-dessus, nous en déduisons l'efficacité globale de collecte par plateaux E_i .

$$E_i = 1 - (1 - E_i^P)(1 - E_i^D)(1 - E_i^{IM})$$

Fonctions noyaux de probabilité de dépôt

Les fonctions noyaux de l'ELPI k_i représentent la probabilité d'une particule de diamètre d_a de se trouver sur le plateau i . Elles sont fonction des efficacités de chaque plateau et de l'interaction avec les plateaux précédents. k_i s'écrit :

$$k_i(d_a) = E_i(d_a) \prod_{j=i+1}^n [1 - E_j(d_a)]$$

La somme des probabilités de dépôt des particules sur les plateaux de l'ELPI est donnée sur la figure ci-après.

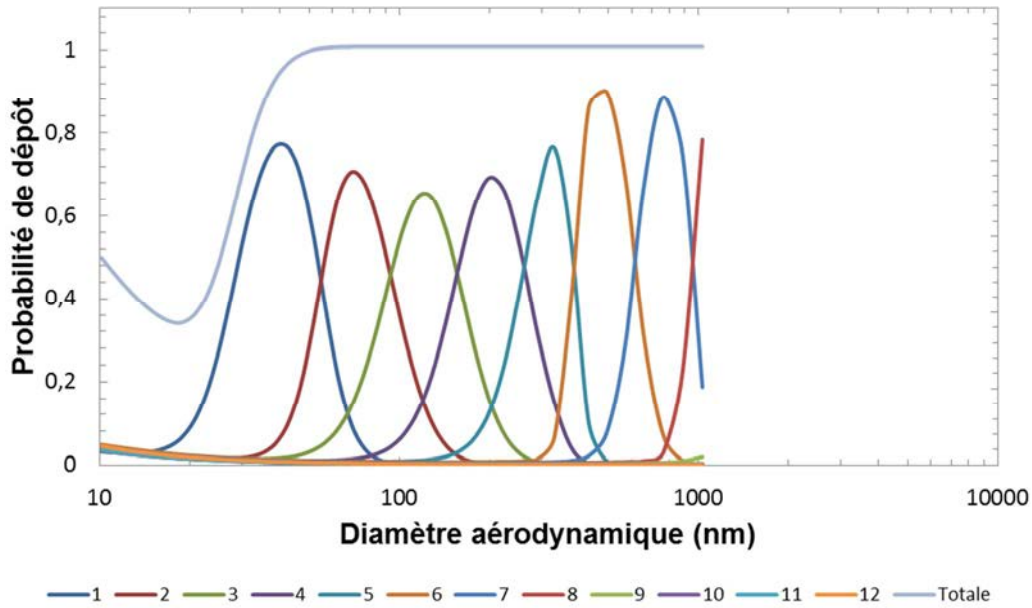


Figure A3.2 : Courbes de probabilité de dépôt des particules. La courbe numérotée i correspond à la probabilité qu'une particule de diamètre dynamique d_a soit collectée sur ce plateau. La courbe « totale » est la somme des probabilités sur l'ensemble des plateaux

Pertes par transport

Certaines pertes sont possibles entre la sortie du DMA et l'ELPI. Trois types de pertes sont comptabilisés.

Sédimentation

L'efficacité de transport par sédimentation $E_{\text{séd}}$ est calculée selon :

$$E_{\text{séd}} = 1 - \frac{2}{\pi} \left[2 \xi \sqrt{1 - \xi^{2/3}} - \xi^{1/3} \sqrt{1 - \xi^{2/3}} + \text{Arcsin}(\xi^{1/3}) \right]$$

où

$$\xi = \frac{3}{4} \frac{L_c}{d_t} \frac{V_{\text{lim}}}{U}$$

avec d_t , le diamètre hydraulique de la canalisation (m), U , la vitesse d'écoulement (m.s^{-1}), L_c , la longueur de la canalisation et V_{lim} , la vitesse limite de sédimentation (m.s^{-1}).

V_{lim} se calcule selon

$$V_{lim} = \frac{\rho_0 d_a^2 C_u(d_a) g}{18 \mu_g}$$

Avec d_a , le diamètre aérodynamique (m), g , le champ de pesanteur ($9,81 \text{ m.s}^{-2}$) et ρ_0 , la masse volumique de référence associé à d_a (1000 kg.m^{-3})

Déposition inertielle

L'efficacité de transport par déposition inertielle est calculée selon :

$$E_{coude} = 1 - St \cdot \theta$$

avec θ , l'angle du coude en radian et St , le nombre de Stokes.

$$St = \frac{U \rho_0 d_a^2 C_u(d_a)}{d_t 18 \mu_g}$$

Deux coudes sont considérés entre le DMA et l'ELPI.

Diffusion

L'efficacité de collecte par diffusion a été précédemment explicitée dans la description détaillée du fonctionnement l'ELPI.

Efficacité totale de transport

L'efficacité totale de transport E_{trans} s'écrit :

$$E_{tran} = E_{séd} E_{coude} E^D$$

Au total l'efficacité de transport est de l'ordre de 99%.

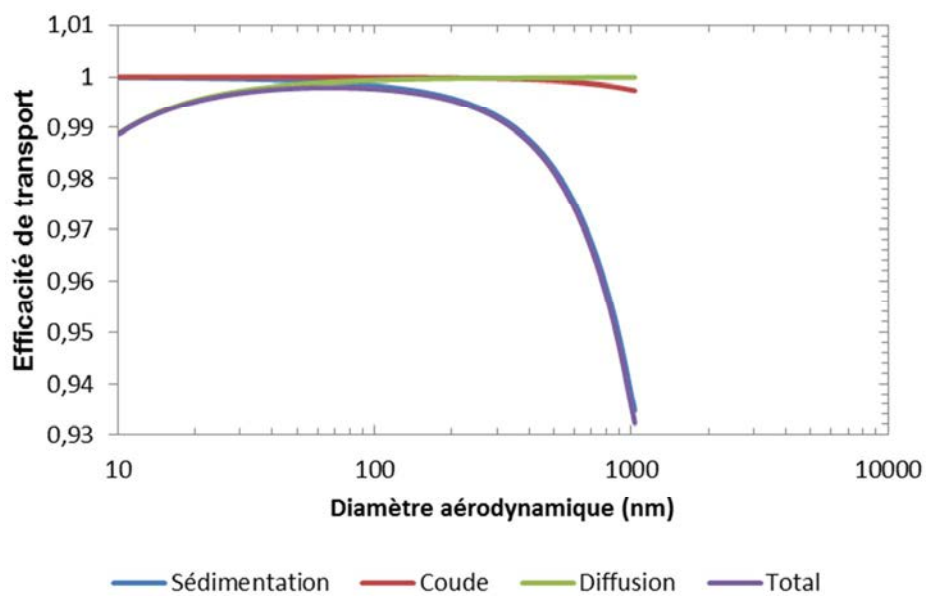


Figure A3.3 : Efficacité de transport de l'aérosol entre le DMA et l'ELPI

Annexe 4

Modèle d'Endo pour un aérosol polydispersé

Novick(Novick et al., 1990) considère la perte de charge totale du média comme étant la résultante de la contribution du filtre neuf ΔP_0 et celle due au dépôt $\Delta P_{\text{dépôt}}$.

$$\Delta P = \Delta P_0 + \Delta P_{\text{dépôt}}$$

La perte de charge du dépôt $\Delta P_{\text{dépôt}}$ est la somme de la perte de charges des particules située en profondeur $\Delta P_{\text{profondeur}}$ dans le filtre et celle situées en surface ΔP_g . Ces dernières forment très rapidement le gâteau de filtration. Ce gâteau sert alors de préfiltre et augmente considérablement l'efficacité du média. Ce phénomène est appelé auto-filtration. En considérant que la pénétration dans le filtre est très faible, la perte de charge due au dépôt peut être approximée à la perte de charge du gâteau. La perte de charge du filtre s'écrit alors :

$$\Delta P = \Delta P_0 + \Delta P_g$$

La perte de charge du gâteau ΔP_g est proportionnelle à la résultante des forces de traînée F_D agissant sur chaque particule composant le gâteau.

$$\Delta P_g = F_D \frac{U_i}{U_f} Z$$

Avec U_i , la vitesse interstitielle, U_f , la vitesse superficielle et Z , l'épaisseur du gâteau. Les vitesses interstitielles et superficielles sont reliées par la porosité du gâteau selon la relation :

$$U_i = \frac{U_f}{\varepsilon_g}$$

En régime continu ($Kn \ll 1$), la force de traînée d'une particule sphérique de diamètre d_p s'écrit :

$$F_{drag} = 3 \pi \mu_g U_i d_p$$

Dans les autres régimes de transition et moléculaire, la force de traînée doit être corrigée pour tenir compte du fait que cette force diminue lorsque la vitesse relative du gaz au niveau de la surface de la particule n'est plus nulle (Hinds, 1999). Cette correction est réalisée par le coefficient de Cunningham Cu (cf lexique). La force de traînée sur une particule sphérique s'écrit alors

$$F_{drag} = \frac{3 \pi \mu_g U_i d_p}{Cu(d_p)}$$

En régime continu, le coefficient de Cunningham vaut 1.

Dans le cas de particules non sphériques, un facteur de correction est ajouté pour considérer la forme de la particule dans l'équation précédente. Ce facteur, appelé facteur de forme dynamique χ , est défini comme le rapport de la force de traînée de la particule considérée F^p sur le force de traînée F^{ve} d'une sphère de volume équivalent de diamètre d_{ev} et de même vitesse (Fuchs, 1964; Hinds, 1999).

$$\chi = \frac{F_{drag}^p}{F_{drag}^{ev}}$$

Ainsi, la force de traînée pour une particule non sphérique s'écrit quel que soit le régime

$$F_{drag} = \frac{3 \pi \mu_g U_i \chi d_{ev}}{Cu(d_{ev})}$$

Afin d'obtenir la résultante des forces de traînée F_D agissant sur une particule, il est nécessaire de prendre de compte que cette particule est en contact avec d'autres. Pour cela, Endo (Endo et al., 1998a) introduit la fonction de vide $v(\varepsilon_g)$ et propose une nouvelle formulation pour F_D .

$$F_D = \int_{-\infty}^{+\infty} F_{drag} v(\varepsilon_g) N f(d_{ev}) d(d_{ev})$$

avec N , le nombre de particules par unité de volume du gâteau.

Dans le cas d'un aérosol suivant une loi log normal (en nombre) de diamètre géométrique $d_{g,ve}$ et d'écart-type géométrique σ_g , la fonction de distribution de l'aérosol s'écrit :

$$f(\ln d_{ve}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \ln(\sigma_g)} \exp\left(-\frac{(\ln(d_{ve}) - \ln(d_{g,ve}))^2}{2 (\ln(\sigma_g))^2}\right)$$

Or (Endo & Alonso, 2001)

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d_{ve}^k}{\sqrt{2\pi} \ln(\sigma_g)} \exp\left(-\frac{(\ln(d_{ve}) - \ln(d_{g,ve}))^2}{2 (\ln(\sigma_g))^2}\right) d(\ln(d_{ve})) = \exp\left(k \ln(d_{g,ve}) + \frac{k^2}{2} (\ln(\sigma_g))^2\right)$$

L'équation de la force de traînée devient alors :

$$F_D = 3 \pi \mu_g \chi \frac{U_f}{\varepsilon_g} v(\varepsilon_g) N d_{g,ve} \exp\left(\frac{1}{2} (\ln(\sigma_g))^2\right)$$

Or le porosité ε_g et le nombre de particules N sont liés par :

$$\varepsilon_g = 1 - \frac{\pi}{6} \int_{-\infty}^{+\infty} N d_{ev}^3 f(d_{ev}) d(d_{ev})$$

Ou encore

$$\varepsilon_g = 1 - \frac{\pi}{6} N \exp\left(3 \ln(d_{g,ve}) + \frac{3^2}{2} (\ln(\sigma_g))^2\right)$$

Donc

$$N = \frac{1 - \varepsilon_g}{\exp\left(3 \ln(d_{g,ve}) + \frac{3^2}{2} (\ln(\sigma_g))^2\right)} \frac{6}{\pi}$$

Finalement, la perte de charge du gâteau ΔP_g devient :

$$\Delta P_g = F_D \frac{U_i}{U_f} Z$$

En remplaçant l'expression de F_D , il vient,

$$\Delta P_g = 3 \pi \mu_g \chi \frac{U_f}{\varepsilon_g} v(\varepsilon_g) N d_{g,ve} \exp\left(\frac{1}{2} (\ln(\sigma_g))^2\right) \frac{Z}{\varepsilon_g}$$

En remplaçant l'expression de N,

$$\Delta P_g = 3 \pi \mu_g \chi \frac{U_f}{\varepsilon_g} v(\varepsilon_g) \frac{1 - \varepsilon_g}{\exp\left(3 \ln(d_{g,ve}) + \frac{3^2}{2} (\ln(\sigma_g))^2\right)} \frac{6}{\pi} d_{g,ve} \exp\left(\frac{1}{2} (\ln(\sigma_g))^2\right) \frac{Z}{\varepsilon_g}$$

$$\Delta P_g = 18 \mu_g \chi Z U_f \frac{1 - \varepsilon_g}{\varepsilon_g^2} v(\varepsilon_g) \frac{d_{g,ve} \exp\left(\frac{1}{2}(\ln(\sigma_g))^2\right)}{\exp\left(3 \ln(d_{g,ve}) + \frac{3^2}{2}(\ln(\sigma_g))^2\right)}$$

$$\Delta P_g = 18 \mu_g \chi Z U_f \frac{1 - \varepsilon_g}{\varepsilon_g^2} v(\varepsilon_g) \exp\left(\ln(d_{g,ve}) + \frac{1}{2}(\ln(\sigma_g))^2 - 3 \ln(d_{g,ve}) - \frac{9}{2}(\ln(\sigma_g))^2\right)$$

$$\Delta P_g = 18 \mu_g \chi Z U_f \frac{1 - \varepsilon_g}{\varepsilon_g^2} v(\varepsilon_g) \frac{1}{d_{g,ve}^2 \exp(4(\ln(\sigma_g))^2)}$$

La perte de charge exprimée en fonction de la masse du gâteau vaut :

$$\Delta P_g = \frac{18 \mu_g \chi U_f}{\varepsilon_g^2 \rho_p} v(\varepsilon_g) \frac{1}{d_{g,ve}^2 \exp(4(\ln(\sigma_g))^2)} \frac{m_g}{S_f}$$

En ajoutant le coefficient de Cunningham et la définition de la fonction de vide $v(\varepsilon)$ (Endo & Alonso, 2001)

$$v(\varepsilon_g) = \frac{10(1 - \varepsilon_g)}{\varepsilon_g}$$

la perte de charge du gâteau s'écrit :

$\Delta P_g = 18 \mu_g U_f \frac{\chi}{\rho C u(d_{g,ve}) d_{g,ve}^2 \exp(4 \ln^2 \sigma_g)} \frac{10(1 - \varepsilon_g) m_g}{\varepsilon_g^3 S_f}$

Annexe 5

Fonctionnement du Microscope

Electronique à Transmission

L'utilisation des techniques microscopiques est incontournable pour la caractérisation de particules microniques mais surtout submicroniques. Elle permet d'accéder à des informations sur la taille des particules, la distribution des particules primaires constituant un agglomérat/agrégat, la morphologie des particules ainsi qu'à la composition chimique et la structure cristalline en étudiant le rayonnement X provoqué par le faisceau électronique. Il est donc particulièrement adapté à l'étude de particules nanostructurées.

La microscopie électronique en transmission (MET ou TEM en anglais pour Transmission Electron Microscopy) est une technique de microscopie basée sur le principe de diffraction des électrons. Le premier MET a été mis au point en 1931 par Max Knoll et Ernst Ruska. La figure suivante présente le schéma de fonctionnement d'un microscope électronique à transmission.

Le MET comprends 6 parties :

- un système de pompes à vide ;
- un système de refroidissement à azote ;
- un canon à électron composé d'une source d'électrons, d'un système de focalisation et d'un accélérateur d'électrons ;
- une colonne optique électronique contenant les lentilles magnétiques et les diaphragmes ;
- un porte échantillon ;
- un détecteur d'électrons ;

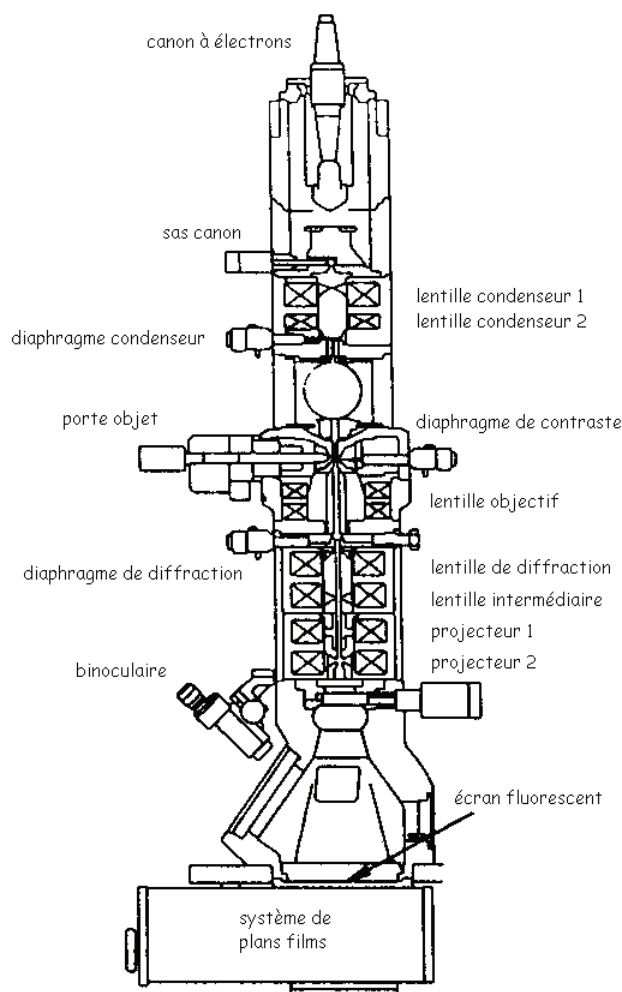


Figure A5.1 : Principe de fonctionnement d'un microscope électronique à transmission

Elle consiste à placer un échantillon très mince sous un faisceau d'électrons utilisé en faisceau cohérent, et de visualiser soit l'hologramme obtenu qu'est la figure de diffraction dans le plan focal de l'objectif, soit d'utiliser une autre lentille pour obtenir la figure diffractée observable par l'impact des électrons sur un écran fluorescent. Les effets d'interaction entre les électrons et l'échantillon permettent de créer une image, dont la résolution peut atteindre 0,08 nanomètre. La limite de résolution dépend de tension d'accélération des électrons, elle serait donc de l'ordre de grandeur du picomètre dans un cas idéal. Mais en raison des fortes aberrations dues aux lentilles magnétiques elle n'est en réalité que de quelques Angströms. Pour être analysé au MET, l'échantillon doit être compatible avec l'ultravide (inférieur à 10^{-7} hPa).

Le vide est tout d'abord effectué dans le tube du microscope. Ce vide doit être très bon sous peine d'interactions entre le faisceau électronique et les molécules résiduelles du vide. Cela a pour conséquence de modifier l'énergie des électrons et donc d'augmenter l'aberration chromatique et de perturber la trajectoire concernée.

Le canon à électron génère les électrons grâce à un filament de tungstène ou d'une pointe de tungstène chauffée. Le faisceau d'électrons est produit au moyen d'un canon à électron. La stabilité et la brillance ont une importance particulière dans la qualité des mesures

effectuées. Le canon doit extraire les électrons d'un matériau puis les accélérer. La tension accélératrice est de l'ordre de 200 kV. Un système de lentilles magnétiques, constituées d'une bobine et d'un noyau de fer, permet alors de dévier ou focaliser le rayon d'électrons sur un échantillon "extrêmement fin". L'image (ou cliché de diffraction) obtenue peut être vue sur un écran fluorescent.

Le microscope électronique en transmission peut être utilisé selon différents modes :

- mode champ clair (bright field)

C'est le mode le plus couramment utilisé sur le MET. L'écran est placé dans le plan image. Un diaphragme d'objectif est placé dans le plan focal de manière à sélectionner uniquement le faisceau transmis en ligne droite par l'échantillon. Ce sont donc uniquement les électrons non diffractés qui formeront l'image sur l'écran. Les zones de l'échantillon diffractant fortement le faisceau apparaissent donc les plus sombres. Les éléments lourds apparaissent donc plus sombres et les éléments légers plus clairs. De même, les zones de l'échantillon les plus épaisses apparaissent plus sombres et les zones plus fines plus claires. Nous utiliserons uniquement ce mode dans nos caractérisations.

- Mode champ sombre (dark field)

En plaçant un diaphragme dans le plan focal, un faisceau diffracté particulier est sélectionné pour former l'image. L'image est donc formée uniquement par les électrons diffractés à un angle particulier. Les zones de l'image qui diffractent à des angles différents apparaissent sombres. Selon l'orientation locale d'un cristal, soit celui-ci laisse passer les électrons en ligne droite, auquel cas on a un contraste clair, soit il dévie les électrons et l'on obtient un contraste sombre.

- mode diffraction

Ce mode s'intéresse à la diffraction des électrons plutôt qu'à l'image formée sur l'écran. En se plaçant dans le plan focal du faisceau et non plus dans le plan image en changeant la tension dans les lentilles électromagnétiques, l'utilisateur obtient la figure de diffraction, semblable aux clichés obtenus en diffraction de rayons X. Il peut ainsi visualiser les directions dans lesquelles vont les électrons et ainsi caractériser les cristaux (organisation des atomes, orientation, ...).

Le MET peut également être utilisé pour connaître la nature chimique d'un échantillon. Cette technique porte le nom d'EDS (Energy Dispersive Spectroscopy). Elle permet une microanalyse chimique de l'échantillon. L'échantillon est bombardé par un faisceau d'électrons d'énergie de l'ordre de 10 à 40 keV. L'impact provoque l'émission des rayons X caractéristiques des éléments constituant l'échantillon.

L'énergie des rayons X émis lors de la désexcitation des atomes dépend de leur nature chimique (ce sont les raies caractéristiques). En analysant le spectre des rayons X, on peut avoir une analyse élémentaire, c'est-à-dire savoir quels types d'atomes sont présents. Le faisceau balayant l'écran, on peut même dresser une cartographie chimique pour les microscopes plus onéreux.

Park (Park, Kittelson, & McMurry, 2004) décrit plus en détail les différents paramètres accessibles par le microscope électronique à transmission.

Annexe 6

Description des générateurs Laskin et Palas GFG-1000

Générateur LASKIN

Le générateur LAKIN est un générateur de brouillard. Son principe repose sur la nébulisation.

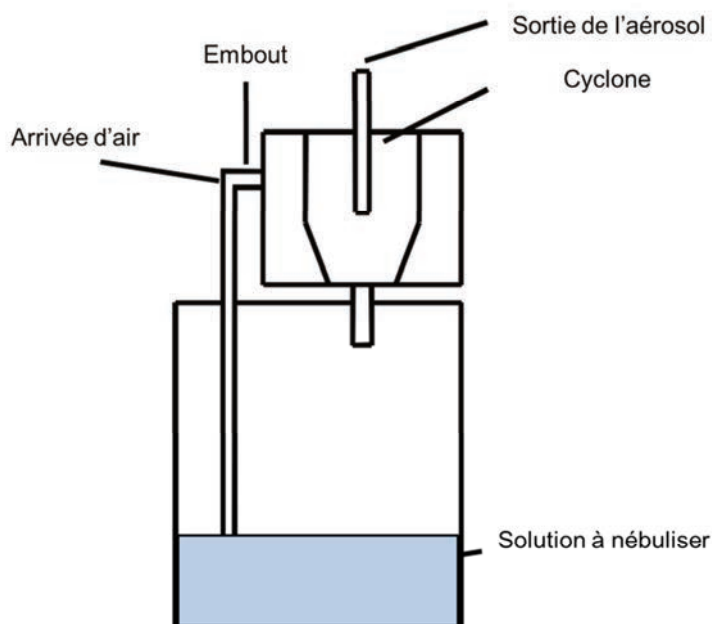


Schéma de principe du générateur LASKIN

Une tige percée à son extrémité plonge dans la solution à nébuliser. De l'air comprimé est alors injecté à une pression donnée, ce qui provoque le bullage de la solution et la pulvérisation de fines particules ou gouttelettes dans la chambre de génération. Les particules sont ensuite aspirées par le haut de l'appareil.

Générateur Palas GFG-1000

Le générateur GFC-1000 est issu des travaux de Helsper et al. (1993). Il repose sur le principe de l'électro-corrosion. Deux électrodes sont placées en regard l'une de l'autre dans la chambre de génération en polyamide. Un arc électrique entre les électrodes permet d'arracher les particules solides aux électrodes. Ces électrodes peuvent être de différentes natures telles qu'en carbone, zinc, aluminium, étain,... L'arc électrique est produit par la décharge d'un condensateur (tension de claquage de 2kV). Sous l'effet de l'arc et de sa forte température (jusqu'à 10 000 K) (Reinmann & Akram, 1997), une partie des électrodes est sublimée. Les vapeurs vont ensuite former les particules primaires par des processus de condensation et de nucléation. La génération des particules peut être contrôlée par l'apport d'air et d'argon dans la chambre. Les particules primaires issues de cette génération peuvent ensuite former ou non des agglomérats selon leurs concentrations.

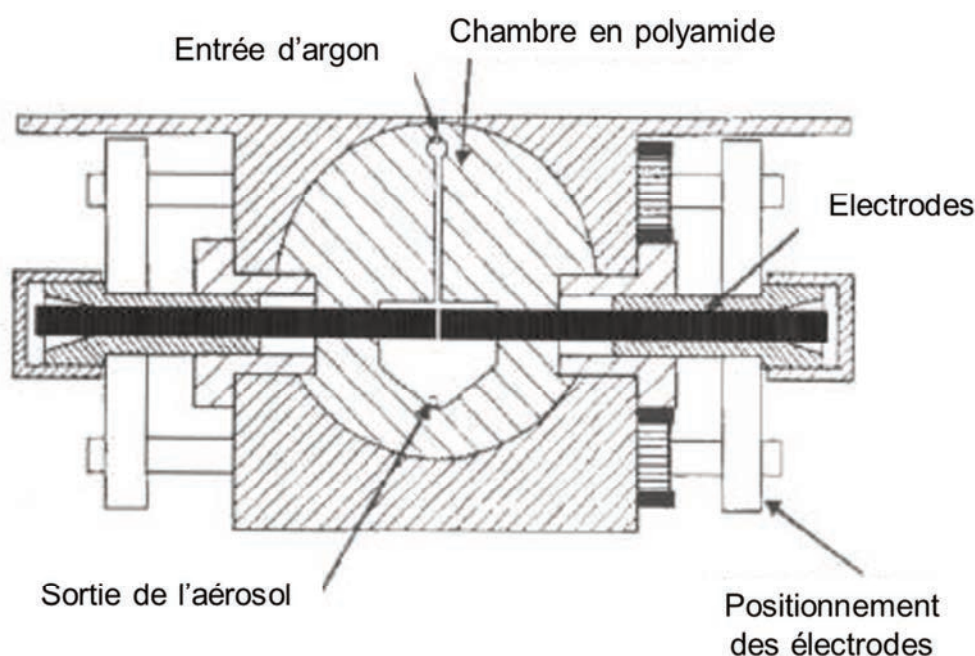


Schéma de la chambre de génération du générateur Palas GFG-1000

L'argon joue un rôle de protection d'oxydation des électrodes. Au fur et à mesure du fonctionnement du générateur, les électrodes sont consommées et l'espace entre elles diminue. C'est pourquoi un système motorisé maintient l'espace inter-électrodes constant. La constance de cet espace assure une certaine stabilité et reproductibilité des résultats (Shi et al., 2001).

4 grands paramètres influencent la génération de l'aérosol :

- Le débit d'argon
- Le débit d'air
- Le potentiomètre : il détermine la fréquence d'étincelle F (en Hz) à partir de la valeur du potentiomètre f selon la relation

$$F = \frac{3}{10} f$$

- La nature chimique des électrodes : des aérosols formés par des électrodes métalliques sont plus fins et plus sphériques que ceux obtenus avec des électrodes en carbone (Evans et al., 2003; Roth et al., 2004).

Le tableau ci-dessous présente les influences des trois premiers paramètres.

	Augmentation de		
	P_{Ar}	P_{air}	f
Diamètre moyen	↘	↘	↗
Flux de particules	↗	↘	↗

Influence de la pression en air et en argon et de la fréquence d'étincelle (Mouret, 2008)

Annexe 7

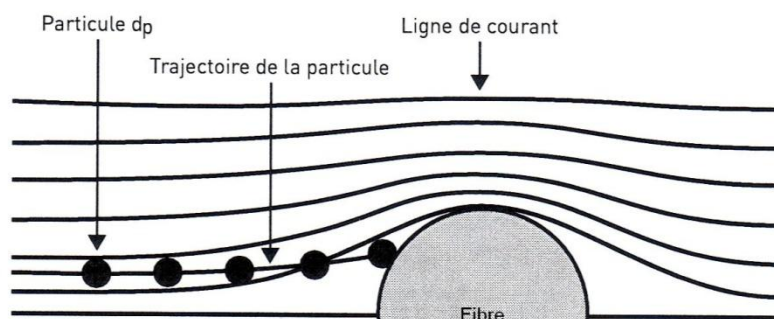
Mécanismes de collectes généraux

Au niveau des nanoparticules contenues dans un gaz, la capture d'un aérosol prend en compte bien plus de paramètres que la simple taille d'ouverture du réseau fibreux. L'effet de la sédimentation devient négligeable à ce niveau.

A l'exclusion des effets électrostatiques dont nous parlerons par la suite, trois grands mécanismes interviennent, parfois simultanément, dans le processus de filtration : l'impaction inertielle, l'interception directe et la diffusion brownienne.

L'impaction inertielle

Ce mécanisme est lié à la modification de la trajectoire d'un gaz lorsqu'il contourne une fibre. Il est prépondérant pour les grosses particules de diamètre d_p supérieur à $1 \mu\text{m}$.

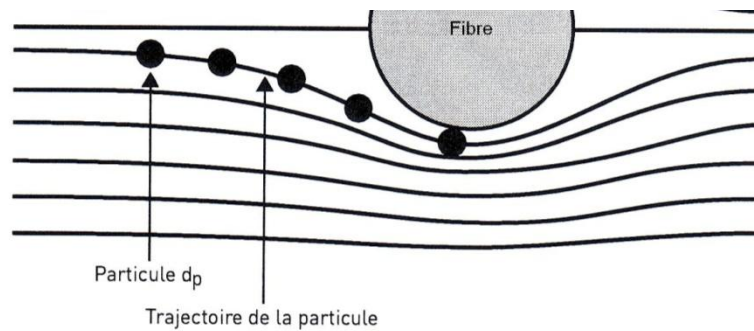


Collecte par impaction

Du fait de son inertie, la particule ne peut pas contourner l'obstacle. Elle va donc continuer sa trajectoire initiale et percuter la fibre. La particule sera capturée d'autant plus facilement que la vitesse d'approche est importante.

L'interception directe

Ce type de capture rentre en jeu lorsque le centre de la particule passe à moins de $d_p/2$ de la fibre, c'est-à-dire à une distance inférieure à son rayon. Ce mécanisme concerne les particules de diamètre supérieur à $0,1 \mu\text{m}$.

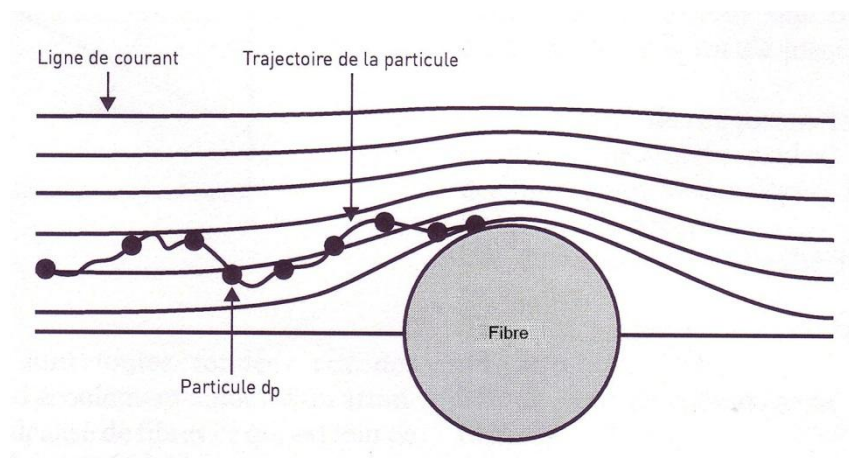


Collecte par interception

L'efficacité de cet effet augmente lorsque le diamètre d_p de la particule augmente et lorsque le diamètre de la fibre diminue.

La diffusion brownienne

Les particules de petite taille, c'est-à-dire dont le diamètre est inférieur à $0,1 \mu\text{m}$, sont animées en permanence de mouvements browniens. Sous cette agitation, la trajectoire de la particule passe plus ou moins près de la fibre. En cas de contact, la particule adhère à la surface de la fibre : elle est collectée.

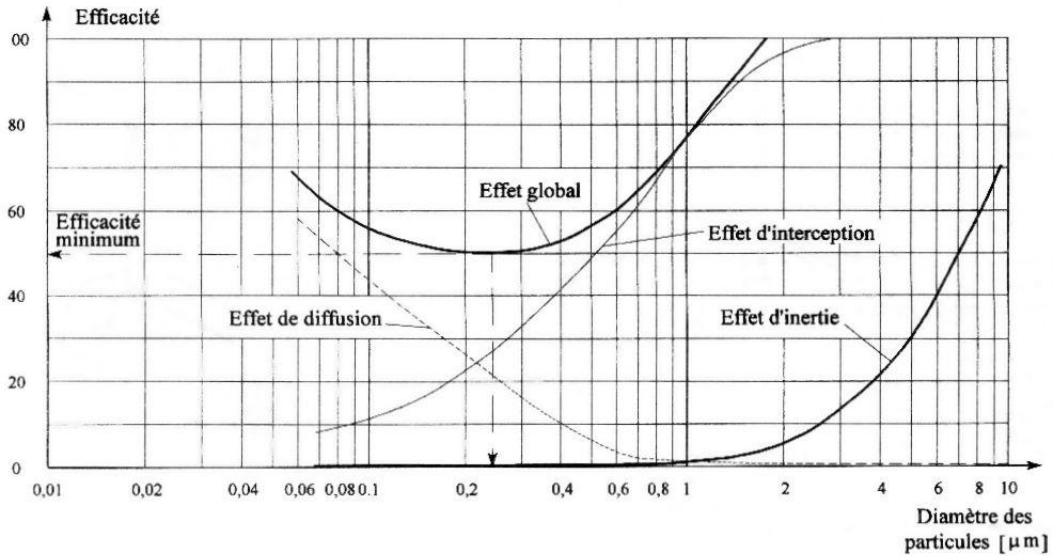


Collecte par diffusion brownienne

Ce mécanisme de filtration est d'autant plus important que le diamètre des particules et des fibres diminuent ou que la vitesse diminue.

Efficacité globale

Les trois grands mécanismes que nous venons de voir agissent simultanément dans la filtration d'un aérosol. La courbe d'efficacité d'un média fibreux s'illustre alors comme la somme des efficacités de filtrations liées à chacun de ces mécanismes.



Efficacité globale d'un média fibreux (Mouret, 2008)

Le creux d'efficacité d'un média fibreux se trouve aux alentours de 0,2 µm. Ce point, appelé « MPPS » pour « Most Penetrating Particle Size » est l'efficacité minimale du filtre. Il représente la dimension particulaire la plus difficile à arrêter. C'est dans ce domaine que sont déterminées les efficacités des filtres à air à très haute efficacité (HEPA).



**AUTORISATION DE SOUTENANCE
DU DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LORRAINE**

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

**Madame GEHIN Florence, Professeur, CERTES, Université Paris-Est Créteil,
Monsieur GONTHIER Yves, Professeur, LOCIE/Polytech', Université de Savoie.**

Le Président de l'Université de Lorraine, autorise :

Mademoiselle GRIPPARI Florence

à soutenir devant un jury de l'UNIVERSITE DE LORRAINE, une thèse intitulée :

"Caractérisation et filtration des aérosols nanostructurés : application aux fumées de projection thermique des métaux"

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE LORRAINE

Intitulé du doctorat : **"Génie des Procédés et des Produits"**

Fait à Vandoeuvre, le **26 Octobre 2012**

Le Président de l'Université de Lorraine,

Pierre MUTZENHARDT

*Pour le Président et par délégation.
Clotilde BOU...*

Résumé

Caractérisation et filtration des aérosols nanostructurés : application aux fumées de projection thermique des métaux

Cette étude porte sur la filtration des particules métalliques contenues dans les fumées de métallisation. Des retours d'expériences spécifiques aux dépoussiéreurs filtrants les fumées de métallisation témoignent d'un colmatage des filtres très rapide ainsi que de l'inefficacité des techniques de décolmatage pneumatique habituellement utilisées. Il en résulte une durée de vie des éléments filtrants très réduite. L'objectif de cette étude est de caractériser le colmatage puis le décolmatage afin d'améliorer les performances des dépoussiéreurs à cartouches filtrantes vis-à-vis des fumées de métallisation. Trois axes de recherches ont été explorés sur un banc pilote spécialement équipé :

- la caractérisation des fumées de métallisation. Elle a permis de qualifier la structure spatiale de la particule par la dimension fractale et le facteur de forme dynamique grâce au couplage série DMA-ELPI et à une méthodologie originale d'analyse des données validée sur différents aérosols. Les caractéristiques obtenues expliquent les propriétés colmatantes des fumées de métallisation.
- La caractérisation du dépôt engendré au cours de la phase de filtration (ou de colmatage). Elle montre une structure incompressible dans la gamme de filtration habituellement pratiquée en industrie. Ces travaux ont permis d'estimer la porosité expérimentale du dépôt formé par les fumées de métallisation.
- L'étude sur le décolmatage. Elle décrit et explique l'inefficacité des décolmatages utilisés en industrie. Il ressort que seule une très faible surface du média plissé est décolmatée. L'alternative du precoating se révèle très efficace mais seulement en mode off-line.

Mots-clés : Filtration, Aérosol, Colmatage, Nanoparticule, Décolmatage pneumatique, Média plissé, Perte de charge, Dépôt, Porosité, Morphologie

Abstract

Characterization and filtration of nanostructured aerosols: application to fumes produced by thermal spraying of metals

This study deals with the filtration of metallic particles contained in the metallization fumes. Experience feedback specific to the filtration of metallization fumes by dust collectors report a rapid clogging of filters and the inefficiency of pneumatic cleaning techniques commonly used. This leads to a high reduction in filters lifetime. The objective of this study is characterize clogging then unclogging in order to improve the performance of dust cartridge filter against metallization fumes. Three research axes were explored on a dedicated bench :

- Metallization fumes characterization. It allows describing the spatial structure of the particle by the fractal dimension and the dynamic shape factor with the DMA-ELPI serial coupling and thanks to an original data analysis methodology validated on various aerosols. The characteristics obtained explain the clogging properties of metallization fumes.
- Characterization of the cake generated during the filtration phase (or clogging). It shows a incompressible structure in the velocities filtration range of industry. The experimental porosity of the cake formed by filtering metallization fumes is estimated thanks to these studies.
- Study on cleaning. It describes and explains the inefficiency of pneumatic cleaning techniques employed in industry. It appears that only a very small surface of the pleated media is unclogged. The precoating alternative is shown to be very efficient provided that it is combined with off-line cleaning procedures.

Keywords : Filtration, Aerosol, Clogging, Nanoparticle, Pneumatic cleaning, Pleated filter, Pressure drop, Cake, Porosity, Morphology