



# Les laveurs : une alternative aux médias fibreux pour le traitement des nanoparticules issues des fumées de métallisation ?

Maria Cecilia Cadavid Rodriguez

## ► To cite this version:

Maria Cecilia Cadavid Rodriguez. Les laveurs : une alternative aux médias fibreux pour le traitement des nanoparticules issues des fumées de métallisation ?. Autre. Université de Lorraine, 2015. Français. NNT : 2015LORR0023 . tel-01751433

**HAL Id: tel-01751433**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01751433>**

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](mailto: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.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

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

UNIVERSITÉ DE LORRAINE  
**ÉCOLE DOCTORALE RP<sup>2</sup>E -ED 410**  
Ecole Doctorale Ressources, Procédés, Produits et Environnement

## **T H È S E**

pour obtenir le titre de

**Docteur**

de l'Université de Lorraine  
**spécialité : GÉNIE DE PROCÉDÉS ET DES PRODUITS**

Présentée et soutenue par  
Maria Cecilia CADAVID RODRIGUEZ

### **Les laveurs : une alternative aux médias fibreux pour le traitement des nanoparticules issues des fumées de métallisation ?**

Soutenue publiquement le 10 mars 2015 devant le Jury composé de

|                      |                          |                                                                                           |
|----------------------|--------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------|
| <i>Rapporteurs :</i> | <b>Yves GONTHIER</b>     | Professeur à l'Université Savoie Mont Blanc                                               |
|                      | <b>Evelyne GEHIN</b>     | Professeur à l'Université Paris–Est Créteil                                               |
| <i>Président :</i>   | <b>Gabriel WILD</b>      | Directeur de recherche CNRS–LRGP.                                                         |
| <i>Examineurs :</i>  | <b>Emmanuel FIANI</b>    | Dr. Ingénieur expert à l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME) |
|                      | <b>Frédérique DURAND</b> | Responsable du Laboratoire Inter-régional de Chimie de l'Est                              |
|                      | <b>Denis BEMER</b>       | Dr. Responsable d'études à l'Institut National de Recherche et Sécurité (INRS)            |
|                      | <b>Augustin CHARVET</b>  | Dr. Maître de Conférences à l'Université de Lorraine (Co-directeur de thèse)              |
|                      | <b>Dominique THOMAS</b>  | Professeur à l'Université de Lorraine (Directeur de thèse)                                |





# Remerciements

Je tiens à remercier à Olivier DUFAUD et Michel POURQUET (INRS) pour m'avoir accueillie au sein de leurs équipes de recherche Sécurité Aérosol Filtration Explosion (SAFE - LRGP) et Ingénierie des Procédés (IP - INRS).

J'adresse également mes remerciements à mon directeur de thèse Dominique THOMAS (LRGP), à mon co-directeur de thèse Augustin CHARVET (LRGP) et à mon encadrant de thèse de Denis BEMER (INRS) pour le temps et l'intérêt qu'ils ont porté au bon déroulement de cette étude, ainsi que pour leurs conseils et leur soutien lors de la préparation du manuscrit et de la soutenance.

J'adresse également mes cordiaux remerciements à Isabelle SUBRA, Sébastien BAU et à Alexis BOIVIN de l'INRS et à Jean-François REMY et à l'équipe de l'atelier mécanique du LRGP pour leur disponibilité tout au long de la période expérimentale de ma thèse.

Un grand merci à toutes les personnes rencontrées dans le laboratoire qui ont contribué au bon déroulement de cette étude par leur sympathie, leur soutien et leurs conseils et à tous ceux hors du labo (colombiens, français et d'autres nationalités) qui m'ont encouragé chaque jour.

Enfin, tout cela a été possible grâce au soutien inconditionnel de mes parents, leur mots d'encouragement chaque jour sont indispensables lorsqu'on se trouve loin.



# **Table des matières**



|                                                                                                      |     |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| <b>REMERCIEMENTS</b>                                                                                 | i   |
| <b>LISTE DE FIGURES</b>                                                                              | x   |
| <b>NOMENCLATURE</b>                                                                                  | xiv |
| <b>INTRODUCTION</b>                                                                                  | 1   |
| <b>CHAPITRE 1 CONTEXTE GÉNÉRAL DE L'ÉTUDE</b>                                                        | 3   |
| 1.1 Généralités sur les particules ultrafines . . . . .                                              | 3   |
| 1.2 Sources des particules ultrafines . . . . .                                                      | 6   |
| 1.3 Effets sur la santé . . . . .                                                                    | 7   |
| 1.4 Valeurs limites d'exposition . . . . .                                                           | 8   |
| 1.5 Collecte de particules ultrafines par des médias fibreux . . . . .                               | 11  |
| <b>CHAPITRE 2 CARACTÉRISATION DES PARTICULES ULTRAFINES</b>                                          | 15  |
| 2.1 Granulométrie des aérosols . . . . .                                                             | 15  |
| 2.2 Masse volumique effective des particules . . . . .                                               | 19  |
| 2.2.1 Détermination de la masse volumique effective des aérosols nanostructurés . . . . .            | 22  |
| 2.2.2 Résultats . . . . .                                                                            | 27  |
| 2.2.3 Synthèse . . . . .                                                                             | 33  |
| 2.3 Charge électrique des particules . . . . .                                                       | 34  |
| 2.3.1 Détermination de la charge électrique des aérosols nanométriques . . . . .                     | 35  |
| 2.3.2 Protocole expérimental pour la mesure de la loi de charge des particules . . . . .             | 36  |
| 2.3.3 Résultats et discussion . . . . .                                                              | 39  |
| 2.4 Nombre de charges élémentaires par particule primaire . . . . .                                  | 42  |
| 2.5 Conclusion . . . . .                                                                             | 45  |
| <b>CHAPITRE 3 PERFORMANCES D'UNE COLONNE À BULLES</b>                                                | 47  |
| 3.1 Les colonnes à bulles . . . . .                                                                  | 47  |
| 3.1.1 Collecte des particules dans une colonne à bulles : État de l'art . . . . .                    | 51  |
| 3.1.2 Collecte des particules dans une colonne à bulles : Approche théorique . . . . .               | 53  |
| 3.2 Matériels et Méthodes . . . . .                                                                  | 56  |
| 3.2.1 Choix d'un protocole expérimental pour la mesure d'efficacité . . . . .                        | 57  |
| 3.3 Choix d'un distributeur de gaz . . . . .                                                         | 63  |
| 3.4 Influence des paramètres opératoires sur les performances d'une colonne à bulles . . . . .       | 68  |
| 3.4.1 Influence de la tension superficielle du liquide de piégeage . . . . .                         | 68  |
| 3.4.2 Influence de la hauteur du liquide et du débit de gaz . . . . .                                | 69  |
| 3.5 Influence des caractéristiques de l'aérosol (charge électrique) . . . . .                        | 70  |
| 3.6 Validation du modèle théorique pour la collecte de particules par une colonne à bulles . . . . . | 71  |
| 3.7 Optimisation de l'efficacité de collecte d'une colonne à bulles . . . . .                        | 74  |
| 3.7.1 Influence de la taille des billes composant la colonne garnie . . . . .                        | 75  |
| 3.7.2 Influence de la hauteur de la colonne garnie . . . . .                                         | 76  |

---

|                                                                      |                                                                    |     |
|----------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------|-----|
| 3.7.3                                                                | Influence du matériau des billes du garnissage . . . . .           | 77  |
| 3.7.4                                                                | Garnissage immergé composé de billes en acier inoxydable . . . . . | 78  |
| 3.8                                                                  | Performances d'une colonne à bulles au cours du temps . . . . .    | 86  |
| 3.8.1                                                                | Banc de métallisation . . . . .                                    | 86  |
| 3.8.2                                                                | Résultats . . . . .                                                | 87  |
| 3.9                                                                  | Synthèse . . . . .                                                 | 97  |
| <br><b>CONCLUSIONS GÉNÉRALES ET PERSPECTIVES DE L'ÉTUDE</b>          |                                                                    | 99  |
| <br><b>BIBLIOGRAPHIE</b>                                             |                                                                    | 101 |
| <br><b>ANNEXE A DÉFINITIONS SUR LES AÉROSOLS</b>                     |                                                                    | 113 |
| <br><b>ANNEXE B INSTRUMENTS POUR LA CARACTÉRISATION DES AÉROSOLS</b> |                                                                    | 115 |

# Liste de figures

|                                                             |                                                                                                                                                                                   |           |
|-------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| FIGURE 1.1                                                  | Granulométrie des particules suivant leur origine. . . . .                                                                                                                        | 3         |
| FIGURE 1.2                                                  | Dépôt de particules dans les voies respiratoires selon le mécanisme de dépôt. . . .                                                                                               | 8         |
| FIGURE 1.3                                                  | Fraction de particules susceptibles d'être inhalées selon leur diamètre aérodynamique.                                                                                            | 9         |
| FIGURE 1.4                                                  | Mécanismes de collecte des particules dans un média fibreux. . . . .                                                                                                              | 11        |
| FIGURE 1.5                                                  | Mécanismes de collecte des particules dans un média fibreux. . . . .                                                                                                              | 12        |
| <b>CHAPITRE 2 CARACTÉRISATION DES PARTICULES ULTRAFINES</b> |                                                                                                                                                                                   | <b>15</b> |
| FIGURE 2.1                                                  | Schéma de principe de la projection de fil à l'arc électrique. . . . .                                                                                                            | 16        |
| FIGURE 2.2                                                  | Générateurs d'aérosols : (a) Schéma de la chambre de génération du GFG 1000.<br>(b) Schéma du principe de fonctionnement du générateur Palas AGK 2000. . . . .                    | 17        |
| FIGURE 2.3                                                  | Concentration des particules en fonction du diamètre équivalent en mobilité<br>électrique pour les aérosols testés. . . . .                                                       | 18        |
| FIGURE 2.4                                                  | Schéma du banc d'expériences DEAN. . . . .                                                                                                                                        | 23        |
| FIGURE 2.5                                                  | Principe du fonctionnement de l'analyseur de masse des particules APM 3601. . .                                                                                                   | 23        |
| FIGURE 2.6                                                  | Distribution des charges des particules d'un aérosol à l'équilibre de Boltzmann. . .                                                                                              | 24        |
| FIGURE 2.7                                                  | Variation de la concentration en particules en fonction de la vitesse de rotation des<br>électrodes de l'APM, pour un diamètre de particule donné. . . . .                        | 25        |
| FIGURE 2.8                                                  | Concentration en nombre de particules en fonction de la tension appliquée dans<br>l'APM. . . . .                                                                                  | 25        |
| FIGURE 2.9                                                  | Schéma du protocole opératoire pour la détermination de la masse volumique<br>effective des particules. . . . .                                                                   | 26        |
| FIGURE 2.10                                                 | Concentration en nombre de particules de graphite de diamètre équivalent en<br>mobilité électrique de 100 nm en fonction de la tension appliquée dans l'APM. . . . .              | 28        |
| FIGURE 2.11                                                 | Masse volumique effective en fonction du diamètre équivalent en mobilité<br>électrique pour les particules de graphite. . . . .                                                   | 28        |
| FIGURE 2.12                                                 | Morphologie des particules nanostructurées selon leur dimension fractale. . . . .                                                                                                 | 29        |
| FIGURE 2.13                                                 | Concentration en nombre des particules de PVAc de diamètre équivalent en<br>mobilité électrique de 100 nm en fonction de la tension appliquée dans l'APM. . . . .                 | 30        |
| FIGURE 2.14                                                 | Masse volumique effective en fonction du diamètre équivalent en mobilité<br>électrique pour les particules de PVAc. . . . .                                                       | 32        |
| FIGURE 2.15                                                 | Photo au microscope électronique en transmission des agglomérats de polyvinyle<br>acétate. . . . .                                                                                | 32        |
| FIGURE 2.16                                                 | Schéma de déduction du diamètre des particules primaires à partir du la masse<br>volumique du matériau et de la masse volumique du matériau oxydé. . . . .                        | 33        |
| FIGURE 2.17                                                 | Concentration en nombre et en masse (à partir de la masse volumique du matériau<br>et la masse volumique effective) selon la taille de particules, pour l'aérosol de Zn/Al. . . . | 34        |
| FIGURE 2.18                                                 | Schéma du montage expérimental pour déterminer la loi de charge d'un aérosol. . .                                                                                                 | 35        |
| FIGURE 2.19                                                 | Principe de fonctionnement du précipitateur électrostatique. . . . .                                                                                                              | 36        |
| FIGURE 2.20                                                 | Schéma des méthodes d'obtention de la valeur de la tension critique, $U_c$ . . . . .                                                                                              | 37        |
| FIGURE 2.21                                                 | Concentration et pénétration des particules selon la tension dans le précipitateur<br>électrostatique pour l'aérosol de PVAc chargé. . . . .                                      | 39        |

|                   |                                                                                                                                                                                                  |    |
|-------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| FIGURE 2.22       | Fraction de particules neutres pour l'aérosol de PVAc chargé. . . . .                                                                                                                            | 40 |
| FIGURE 2.23       | Nombre de charges élémentaires par particule selon la méthode de la tension critique et la méthode ELPI. . . . .                                                                                 | 41 |
| FIGURE 2.24       | Nombre de charges élémentaires pour les aérosols de cuivre, graphite et PVAc, chargés et avec leur charge naturelle. . . . .                                                                     | 41 |
| FIGURE 2.25       | Diagramme de parité entre le nombre de particules primaires déterminé expérimentalement et à travers les relations de Lall et Sorensen pour les aérosols de (a) cuivre et (b) graphite. . . . .  | 43 |
| FIGURE 2.26       | Nombre de charges élémentaires par particule primaire selon le diamètre équivalent en mobilité électrique des particules de graphite (a) et de cuivre (b) . . . . .                              | 44 |
| FIGURE 2.27       | Nombre de charges élémentaires par particule primaire selon le nombre de particules primaires composant une particule agglomérée de graphite avec sa charge naturelle. . . . .                   | 45 |
| <b>CHAPITRE 3</b> | <b>PERFORMANCES D'UNE COLONNE À BULLES</b>                                                                                                                                                       | 47 |
| FIGURE 3.1        | Distributeurs de gaz . . . . .                                                                                                                                                                   | 47 |
| FIGURE 3.2        | Régimes hydrodynamiques des colonnes à bulles. . . . .                                                                                                                                           | 48 |
| FIGURE 3.3        | Vitesse ascensionnelle des bulles dans un système eau-air. . . . .                                                                                                                               | 50 |
| FIGURE 3.4        | Schéma d'une colonne à bulles. . . . .                                                                                                                                                           | 53 |
| FIGURE 3.5        | Efficacité de collecte d'une colonne à bulles en fonction de la taille des particules, pour $Q_g = 10 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ , $h = 50 \text{ cm}$ et $d_b = 7,9 \text{ mm}$ . . . . . | 55 |
| FIGURE 3.6        | Schéma du banc d'essai OCEAN. . . . .                                                                                                                                                            | 56 |
| FIGURE 3.7        | Protocole 1 pour la mesure d'efficacité . . . . .                                                                                                                                                | 58 |
| FIGURE 3.8        | Mise en évidence du phénomène d'agglomération des particules. . . . .                                                                                                                            | 59 |
| FIGURE 3.9        | Protocole 2 pour la mesure d'efficacité . . . . .                                                                                                                                                | 60 |
| FIGURE 3.10       | Protocole 3 pour la mesure d'efficacité . . . . .                                                                                                                                                | 61 |
| FIGURE 3.11       | Schéma de la colonne remplie considérée comme un système en série. . . . .                                                                                                                       | 62 |
| FIGURE 3.12       | Suivi de la perte de charge de la colonne à bulles avec un fritté comme distributeur de gaz. . . . .                                                                                             | 63 |
| FIGURE 3.13       | Caractéristiques des plaques perforées testées dans la colonne à bulles. . . . .                                                                                                                 | 64 |
| FIGURE 3.14       | Perte de charge en fonction de la vitesse de l'air par orifice . . . . .                                                                                                                         | 65 |
| FIGURE 3.15       | Diagramme de parité pour les valeurs de la perte de charge des plaques perforées. . . . .                                                                                                        | 65 |
| FIGURE 3.16       | Perte de charge en fonction de la hauteur de liquide dans la colonne à bulles . . . . .                                                                                                          | 66 |
| FIGURE 3.17       | Efficacité globale de collecte de particules de cuivre pour les différentes plaques perforées. . . . .                                                                                           | 66 |
| FIGURE 3.18       | Influence des propriétés physicochimiques du liquide de collecte sur la taille des bulles et sur l'efficacité de collecte dans le domaine diffusionnel. . . . .                                  | 69 |
| FIGURE 3.19       | Influence de la hauteur du liquide de piégeage et du débit d'air à l'entrée de la colonne sur l'efficacité de collecte des particules ultrafines. . . . .                                        | 70 |
| FIGURE 3.20       | Influence de la charge électrique des nanoparticules de PVAc sur l'efficacité de collecte. . . . .                                                                                               | 71 |
| FIGURE 3.21       | Diagramme de parité entre les valeurs des diamètres des bulles observés à la caméra ultra-rapide et ceux calculés par différentes corrélations. . . . .                                          | 72 |
| FIGURE 3.22       | Comparaison entre les résultats expérimentaux et le modèle de Pich et Schütz. . . . .                                                                                                            | 72 |



|                                                                                                                                                                                                 |    |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| FIGURE 3.23 Diagramme de parité entre les valeurs des efficacités de collecte calculées par le modèle de Pich et les efficacités de collecte expérimentales dans le domaine diffusionnel. .     | 73 |
| FIGURE 3.24 Prédiction de l'efficacité de collecte . . . . .                                                                                                                                    | 74 |
| FIGURE 3.25 Schémas de la colonne dans ses différentes configurations . . . . .                                                                                                                 | 74 |
| FIGURE 3.26 Comparaison des efficacités de collecte des différentes configurations d'une colonne à bulles ( $Q = 4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ ) . . . . .                                 | 75 |
| FIGURE 3.27 Influence de la taille des billes de verre d'une colonne garnie sur l'efficacité de collecte des particules ultrafines. . . . .                                                     | 76 |
| FIGURE 3.28 Images de la colonne garnie avec des billes de verre de différentes tailles. . . . .                                                                                                | 76 |
| FIGURE 3.29 Influence de la hauteur de la colonne garnie sur l'efficacité de collecte des particules ultrafines. . . . .                                                                        | 77 |
| FIGURE 3.30 Influence de la masse volumique des billes d'une colonne garnie sur l'efficacité de collecte de particules . . . . .                                                                | 77 |
| FIGURE 3.31 Schéma de la configuration de la colonne à bulles avec une garnissage de hauteur variable immergé dans 20 cm de liquide de collecte. . . . .                                        | 78 |
| FIGURE 3.32 Efficacité de collecte de particules ultrafines d'un lit granulaire immergé de différentes tailles de billes en acier inoxydable. . . . .                                           | 79 |
| FIGURE 3.33 Influence de la hauteur du garnissage immergé sur l'efficacité de collecte . . . . .                                                                                                | 80 |
| FIGURE 3.34 Efficacité globale de collecte, perte de charge et diamètre de bulles pour les différentes hauteurs de garnissage immergé testées. . . . .                                          | 80 |
| FIGURE 3.35 Efficacité de collecte de particules ultrafines par une colonne à bulles sous l'influence de la hauteur d'eau déminéralisée avec 5 cm de garnissage immergé. . . . .                | 81 |
| FIGURE 3.36 Efficacité de collecte de particules ultrafines d'un lit granulaire immergé en fonction du débit d'air. . . . .                                                                     | 82 |
| FIGURE 3.37 Montage de la colonne à bulles dans le banc de métallisation pour la mesure de l'efficacité de collecte . . . . .                                                                   | 86 |
| FIGURE 3.38 Schéma de la configuration de la colonne à bulles avec 5 cm de billes inox de 1,5 mm de diamètre, immergées dans 20 cm de liquide de collecte. . . . .                              | 87 |
| FIGURE 3.39 Suivi de la perte de charge au cours du temps pour la colonne à bulles équipée de la plaque perforée 16-1/2 ou de la toile métallique Inox355. . . . .                              | 88 |
| FIGURE 3.40 Suivi de l'efficacité globale de collecte en masse. . . . .                                                                                                                         | 89 |
| FIGURE 3.41 Efficacité fractionnelle de collecte en nombre pour les particules issues de fumées de métallisation, de PVAc et de graphite. . . . .                                               | 89 |
| FIGURE 3.42 Évolution de la concentration en aval de la colonne à bulles pendant et après la génération. . . . .                                                                                | 90 |
| FIGURE 3.43 Distribution granulométrique de la suspension de fumées de métallisation sans et avec sonification . . . . .                                                                        | 92 |
| FIGURE 3.44 Variation de la granulométrie en milieu liquide, pour différentes concentrations (a) et pour différents volumes (b) de solutions de particules sous les effets des ultrasons. . . . | 93 |
| FIGURE 3.45 Comparaison de l'influence de différents temps de bullage . . . . .                                                                                                                 | 96 |
| FIGURE 3.46 Distribution granulométrique du surnageant et du dépôt d'une suspension de fumées de métallisation après 4 h de bullage. . . . .                                                    | 96 |

---

|                                                                                                                        |     |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| <b>ANNEXE B INSTRUMENTS DE GÉNÉRATION ET CARACTÉRISATION DES AÉROSOLS</b>                                              | 115 |
| FIGURE B.1 Principe de fonctionnement du générateur d'ions bipolaires Topas EAN 581. . . . .                           | 115 |
| FIGURE B.2 Principe de fonctionnement de l'électromètre pour aérosols TSI 3068B. . . . .                               | 116 |
| FIGURE B.3 Principe de fonctionnement du compteur optique de particules. . . . .                                       | 116 |
| FIGURE B.4 Schéma du fonctionnement du FMPS 3091. . . . .                                                              | 117 |
| FIGURE B.5 Schéma du fonctionnement de l'impacteur en cascade à basse pression Dekati ELPI. . . . .                    | 118 |
| FIGURE B.6 Principe de fonctionnement du nanoDMA 3085. . . . .                                                         | 118 |
| FIGURE B.7 Principe de fonctionnement du CNC 3776. . . . .                                                             | 119 |
| FIGURE B.8 Principe de fonctionnement de l'analyseur de mobilité aérodynamique des<br>particules APS TSI 3321. . . . . | 120 |

# NOMENCLATURE

## Acronymes

|       |                                                                     |
|-------|---------------------------------------------------------------------|
| APM   | Aerosol Particle Mass                                               |
| APS   | Aerodynamic Particle Sizer                                          |
| CPC   | Condensation Particle Counter                                       |
| DEAN  | Densité Effective des Aérosols Nanométriques                        |
| DMA   | Differential Mobility Analyzer                                      |
| LOCAN | Loi de Charge des Aérosols Nanométriques                            |
| LOPC  | Laser Optical Particle Counter                                      |
| OCEAN | Optimisation de la Collecte et Épuration des Aérosols Nanométriques |
| PVAc  | Polyvinyle Acétate                                                  |
| SMPS  | Scanning Mobility Particle Sizer                                    |

## Constantes

|     |                        |                                                      |
|-----|------------------------|------------------------------------------------------|
| $e$ | Charge élémentaire     | $1,602 \cdot 10^{-19} \text{ C}$                     |
| $k$ | Constante de Boltzmann | $1,381 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$ |

## Symboles grecs

|                   |                                                                        |                                  |
|-------------------|------------------------------------------------------------------------|----------------------------------|
| $\chi$            | Facteur de forme dynamique                                             |                                  |
| $\Delta P$        | Perte de charge                                                        | Pa                               |
| $\Delta P_{dist}$ | Perte de charge liée au distributeur de gaz                            | Pa                               |
| $\Delta \eta$     | Écart-type des valeurs expérimentales de l'efficacité de collecte      |                                  |
| $\eta$            | Efficacité de collecte des particules                                  |                                  |
| $\eta_L$          | Efficacité de collecte des particules dans le liquide                  |                                  |
| $\eta_p$          | Efficacité de rétention des particules du précipitateur                |                                  |
| $\eta_{CR}$       | Efficacité de collecte des particules de la colonne remplie de liquide |                                  |
| $\eta_{CV}$       | Efficacité de collecte des particules de la colonne vide               |                                  |
| $\mu_L$           | Viscosité dynamique du liquide                                         | $\text{Pa} \cdot \text{s}$       |
| $\Omega$          | Section de la colonne à bulles                                         | m                                |
| $\omega$          | Vitesse angulaire                                                      | $\text{rad} \cdot \text{s}^{-1}$ |
| $\rho_0$          | Masse volumique de référence                                           | $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$  |

|          |                                              |                                  |
|----------|----------------------------------------------|----------------------------------|
| $\rho_L$ | Masse volumique du liquide de collecte       | $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$  |
| $\rho_p$ | Masse volumique des particules               | $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$  |
| $\rho_e$ | Masse volumique effective des particules     | $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$  |
| $\sigma$ | Tension superficielle                        | $\text{N} \cdot \text{m}^{-1}$   |
| $\tau$   | Temps de relaxation de la particule          | s                                |
| $\nu_L$  | Viscosité cinématique du liquide de collecte | $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ |
| $\mu_g$  | Viscosité dynamique du gaz                   | $\text{Pa} \cdot \text{s}$       |

### Symboles latins

|               |                                                                          |                                         |
|---------------|--------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------|
| $\bar{n}$     | Nombre de charges élémentaires moyenne                                   |                                         |
| $a$           | Coefficient global d'absorption                                          |                                         |
| $a_D$         | Coefficient d'absorption par diffusion brownienne                        |                                         |
| $a_I$         | Coefficient d'absorption par inertie                                     |                                         |
| $a_S$         | Coefficient d'absorption par sédimentation                               |                                         |
| $B$           | Mobilité dynamique                                                       | $\text{s} \cdot \text{kg}^{-1}$         |
| $C_0$         | Concentration fractionnelle de particules dans une bulle à $t = 0$       | $\text{particules} \cdot \text{m}^{-3}$ |
| $C_i$         | Concentration fractionnelle de particules dans une bulle à l'instant $t$ | $\text{particules} \cdot \text{m}^{-3}$ |
| $C_{ELPI}$    | Concentration de particules donnée par l'ELPI                            | $\text{particules} \cdot \text{m}^{-3}$ |
| $C_{i,amont}$ | Concentration des particules en amont                                    | $\text{particules} \cdot \text{m}^{-3}$ |
| $C_{i,aval}$  | Concentration des particules en aval                                     | $\text{particules} \cdot \text{m}^{-3}$ |
| $C_{i,j}$     | Concentration fractionnelle de particules selon la tension               | $\text{particules} \cdot \text{m}^{-3}$ |
| $C_{sAPM}$    | Concentration des particules à la sortie de l'APM                        | $\text{particules} \cdot \text{m}^{-3}$ |
| $D$           | Coefficient de diffusion brownienne                                      | $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$        |
| $d_1$         | Diamètre de l'électrode interne du précipitateur électrostatique         | m                                       |
| $d_2$         | Diamètre de l'électrode externe du précipitateur électrostatique         | m                                       |
| $d_a$         | Diamètre aérodynamique des particules                                    | m                                       |
| $d_b$         | Diamètre des bulles                                                      | m                                       |
| $d_c$         | Diamètre de la colonne                                                   | m                                       |
| $d_{ev}$      | Diamètre équivalent en volume des particules                             | m                                       |
| $d_{me}$      | Diamètre équivalent en mobilité électrique des particules                | m                                       |
| $d_o$         | Diamètre de l'orifice                                                    | m                                       |
| $d_p$         | Diamètre des particules                                                  | m                                       |
| $dh$          | Variation de la hauteur du liquide                                       | m                                       |

|                   |                                                    |                                        |
|-------------------|----------------------------------------------------|----------------------------------------|
| $dN/dt$           | Flux de particules                                 | particules $\cdot$ s <sup>-1</sup>     |
| $E$               | Champ électrique                                   | V $\cdot$ m <sup>-1</sup>              |
| $F_D$             | Force de traînée                                   | N                                      |
| $F_{el}$          | Force électrique                                   | N                                      |
| $FN_i$            | Fraction de particules neutre                      | %                                      |
| $g$               | Accélération de la gravité                         | m $\cdot$ s <sup>-2</sup>              |
| $h$               | Hauteur du liquide de collecte                     | m                                      |
| $h_c$             | Hauteur de la colonne                              | m                                      |
| $I_{ELPI}$        | Débit de charge électrique des particules          | A                                      |
| $L$               | Longueur des électrodes                            | m                                      |
| $m_a$             | Masse de l'agglomérat de particules                | kg                                     |
| $n$               | Nombre de charges élémentaires par particule       |                                        |
| $N_b$             | Nombre de bulles                                   | #                                      |
| $n_{ELPI_{part}}$ | Nombre de charges par particule (ELPI)             |                                        |
| $n_{ELPI}$        | Nombre de charges (ELPI)                           |                                        |
| $P$               | Pénétration                                        |                                        |
| $P_B$             | Puissance dissipée                                 | W                                      |
| $P_h$             | Puissance énergétique                              | W                                      |
| $q$               | Charge électrique des particules                   | C                                      |
| $q_F$             | Facteur de qualité                                 | Pa <sup>-1</sup>                       |
| $Q_g$             | Débit d'air à l'entrée de la colonne à bulles      | m <sup>3</sup> $\cdot$ s <sup>-1</sup> |
| $Q_L$             | Débit du liquide à l'entrée de la colonne à bulles | m <sup>3</sup> $\cdot$ s <sup>-1</sup> |
| $Q_o$             | Débit d'air par orifice                            | m $\cdot$ s <sup>-3</sup>              |
| $Q_{ELPI}$        | Débit d'air traversant l'ELPI                      | m <sup>3</sup> $\cdot$ s <sup>-1</sup> |
| $r_1$             | Rayon du cylindre interne de l'APM                 | m                                      |
| $r_2$             | Rayon du cylindre externe de l'APM                 | m                                      |
| $r_c$             | Rayon central de l'APM                             | m                                      |
| $r_b$             | Rayon des bulles                                   | m                                      |
| $T$               | Température du gaz                                 | K                                      |
| $U_c$             | Tension critique                                   | V                                      |
| $u_b$             | Vitesse ascensionnelle d'une bulle                 | m $\cdot$ s <sup>-1</sup>              |
| $U_{c1}$          | Tension critique moyenne                           | V                                      |
| $U_{c2}$          | Tension critique médiane                           | V                                      |

---

|           |                                                |                                                      |
|-----------|------------------------------------------------|------------------------------------------------------|
| $u_g$     | Vitesse du gaz                                 | $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$                       |
| $U_{opt}$ | Tension optimale de l'APM                      | V                                                    |
| $u_{sg}$  | Vitesse superficielle du gaz                   | $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$                       |
| $u_{TE}$  | Vitesse de mobilité électrique d'une particule | $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$                       |
| $u_{TS}$  | Vitesse de sédimentation d'une particule       | $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$                       |
| $V_b$     | Volume d'une bulle                             | $\text{m}^3$                                         |
| $v_o$     | Vitesse de l'air par orifice                   | $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$                       |
| $Z$       | Mobilité électrique d'une particule            | $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{V}^{-1}$ |
| $Z_c$     | Mobilité électrique critique                   | $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{V}^{-1}$ |

### Paramètres adimensionnels

|        |                                |
|--------|--------------------------------|
| $Cu$   | Coefficient de Cunningham      |
| $Re_o$ | Nombre de Reynolds à l'orifice |

# Introduction

Les nanoparticules susceptibles de se retrouver dans l'air des lieux de travail et dans l'environnement, ont essentiellement deux origines : les (nano) particules manufacturées qui trouvent de plus en plus d'applications industrielles et les particules ultrafines générées par certains procédés de fabrication : fumées (combustion, soudage, etc.), brouillards d'huile, procédés de métallisation. Dans l'industrie, les procédés de métallisation par projection thermique sont utilisés afin de protéger la surface de pièces usinées contre différentes agressions (abrasion, usure, corrosions sèches ou humides) ou pour les isoler thermiquement ou électriquement [1]. Ce procédé repose sur la pulvérisation de fines particules de métal fondu par une source de chaleur (flamme ou arc électrique) au moyen d'un gaz vecteur (habituellement de l'air comprimé) sur la pièce à traiter. Cette technique est une source très importante de particules métalliques ultrafines (zinc, aluminium, étain, alliages). Si leur toxicité est encore très mal connue, l'exposition à ces particules doit être particulièrement contrôlée. En effet, différentes études ont mis en évidence que, pour une masse et une composition chimique données, les particules nanostructurées pouvaient présenter une plus grande toxicité que des particules microniques de même nature [2]. La mise en œuvre de moyens de protection adaptés apparaît par conséquent nécessaire, afin de protéger les personnes et l'environnement. Afin de limiter l'inhalation de ces particules, l'opérateur chargé de cette opération doit porter une protection personnelle (cagoule à adduction d'air) et travailler en cabines équipées d'un système de filtration de l'air avant son rejet à l'extérieur.

Les techniques de dépoussiérage les plus efficaces et les plus utilisées pour séparer des particules d'un fluide porteur restent actuellement les médias fibreux (souvent sous forme de cartouches plissées) constitués de fibres de taille voisine du micromètre. Le principal problème posé par la filtration industrielle des poussières réside dans le colmatage rapide des filtres qui nécessite des opérations régulières de décolmatage, généralement par injection d'air comprimé à contre-courant. L'expérience montre, que dans le cas de particules nanostructurées, la régénération des médias fibreux est loin d'être aussi performante que pour d'autres types de particules. Par ailleurs, le décolmatage peut être à l'origine d'une remise en suspension en aval des particules préalablement collectées par le média et d'une détérioration de la structure du filtre à l'origine de fuites pouvant entraîner une forte dégradation de l'efficacité [3] et ainsi nuire à l'objectif de sécurité des procédés, de l'environnement et/ou des personnes. Le colmatage du filtre est accentué dans le cas des procédés de métallisation du fait des concentrations en particules particulièrement élevées,  $10^8$  à  $10^9$  particules  $\cdot$  cm<sup>-3</sup>, supérieures à 100 mg  $\cdot$  m<sup>-3</sup> et des très fines particules émises (plus de 90 % des particules, en nombre, possèdent un diamètre inférieur à 100 nm). Ces fumées sont par conséquent très colmatantes [4].

L'objectif de cette étude est d'examiner les potentialités offertes par des procédés de séparation des particules autres que les médias fibreux pour l'épuration des fumées de métallisation. Dans cette optique, les colonnes à bulles pourraient s'avérer une alternative crédible aux filtres à fibres de par leur fonctionnement à perte de charge constante. Les avantages offerts par les colonnes à bulles sont la faible exigence d'entretien due à une construction simple et les faibles coûts initiaux d'installation. Par ailleurs, l'absence de remise en suspension de particules, puisque la collecte des particules ultrafines se fait en phase liquide limite, le risque d'inhalation des nanoparticules par les opérateurs lors des phases d'entretien et de maintenance. Le principal inconvénient est le phénomène de coalescence de bulles, lequel peut être réduit substantiellement par la présence d'un garnissage [5]. La taille nominale des grains formant le garnissage doit résulter d'un compromis entre les petites tailles qui favorisent l'efficacité du transfert de masse et les

plus gros garnissages qui augmentent la capacité de la colonne tout en diminuant la perte de charge [6]. La littérature est peu fournie sur le sujet et la majorité des études portent sur la collecte de particules grossières et microniques dans des colonnes à bulles [7, 8]. La performance des colonnes à bulles a été étudiée afin d'optimiser le dimensionnement (diamètre et hauteur de la colonne) et les conditions opératoires, telles que la vitesse de gaz qui a une influence directe sur la taille de bulles [8]. La nature et la hauteur du liquide de piégeage ont également été étudiées. Cependant, l'ensemble de ces études s'intéressent à la collecte de particules ayant des diamètres entre 1 et 10  $\mu\text{m}$ . Ces études montrent que l'efficacité de collecte des particules augmente exponentiellement avec la hauteur du liquide de piégeage et par conséquent avec le temps de séjour. On peut également observer que l'ajout d'un agent de surface dans le liquide induit une diminution de la taille des bulles et donc une augmentation de l'efficacité de collecte [9, 10].

Dans l'optique de remplacer les médias fibreux qui servent aujourd'hui pour la collecte de particules ultrafines issues de fumées de métallisation, nous avons réalisé des expériences pour, initialement caractériser les particules composant les aérosols et pouvoir comprendre leur comportement, et ensuite déterminer les performances de filtration d'une colonne à bulles. Puisque les aérosols composés de particules ultrafines issues de fumées de métallisation ont une concentration en nombre très importante, le rendant peu pratique pour déterminer les performances de filtration d'une colonne à bulles, nous avons réalisée des expériences avec des aérosols modèles composés de particules ultrafines de graphite (C), cuivre (Cu) et polyvinyle acétate (PVAc), pour ensuite, une fois le comportement de la colonne à bulles bien caractérisé, tester ses performances envers les particules ultrafines issues de fumées de métallisation.

Pour commencer, dans le **Chapitre 1** nous allons décrire le contexte de l'étude. Ensuite, les caractéristiques générales des particules ultrafines, leurs sources potentielles de génération, leurs effets sur la santé et leurs différentes méthodes existantes pour les collecter et ainsi protéger le personnel et l'environnement seront présentés.

Dans un deuxième temps, dans le **Chapitre 2**, nous allons concentrer notre attention sur deux propriétés clés des particules ultrafines : la masse volumique effective et le nombre de charges élémentaires par particule. Cette section nous permettra de comprendre le comportement spécifique des particules nanométriques.

Pour finir, le **Chapitre 3** sera focalisé sur la collecte des particules ultrafines par une colonne à bulles. Après avoir déterminé les conditions opératoires donnant les meilleures performances de filtration des aérosols modèles, nous évaluerons les performances de ce séparateur.

A la fin de l'étude nous pourrons donner une réponse à la question : ***Les laveurs : une alternative aux médias fibreux pour la collecte de particules ultrafines issues de fumées de métallisation ?***



# Contexte général de l'étude

Les nanoparticules susceptibles de se retrouver dans l'air des lieux de travail, ont essentiellement deux origines : les (nano) particules manufacturées qui trouvent de plus en plus d'applications industrielles et les particules ultrafines générées par certains procédés de fabrication. Si leur toxicité est encore très mal connue, l'exposition à ces particules doit être particulièrement contrôlée. En effet, différentes études ont mis en évidence que, pour une masse et une composition chimique données, les particules nanostructurées pouvaient présenter une plus grande toxicité que des particules microniques de même nature [2]. La mise en œuvre de moyens de protection adaptés apparaît par conséquent nécessaire, afin de protéger les personnes et l'environnement. Le principal problème posé par la filtration industrielle des poussières réside dans le colmatage rapide et irréversible des filtres.

L'objectif de ce chapitre est de décrire les caractéristiques générales des particules ultrafines, leur potentielle origine, leurs effets sur la santé et les différentes méthodes existantes pour les collecter ainsi que pour protéger le personnel et l'environnement.

## 1.1 Généralités sur les particules ultrafines

De par la définition donnée par la norme ISO/TS 27687:2008, un aérosol est une suspension de particules dans un gaz porteur [11]. Ces particules qui peuvent être d'origine liquide ou solide, ou un mélange des deux, présentent une vitesse terminale de chute négligeable (e.g.  $12 \mu\text{m} \cdot \text{min}^{-1}$  pour une particule de Zn/Al de 100 nm de diamètre). La diversité de ces particules touche autant les sources de particules (**phénomènes météorologiques**, **activités humaines**, **origine biologique**) que leur taille, pouvant aller de quelques dizaines de nanomètres pour les virus à quelques dizaines de micromètres pour les grains de pollen par exemple (cf. Figure 1.1).

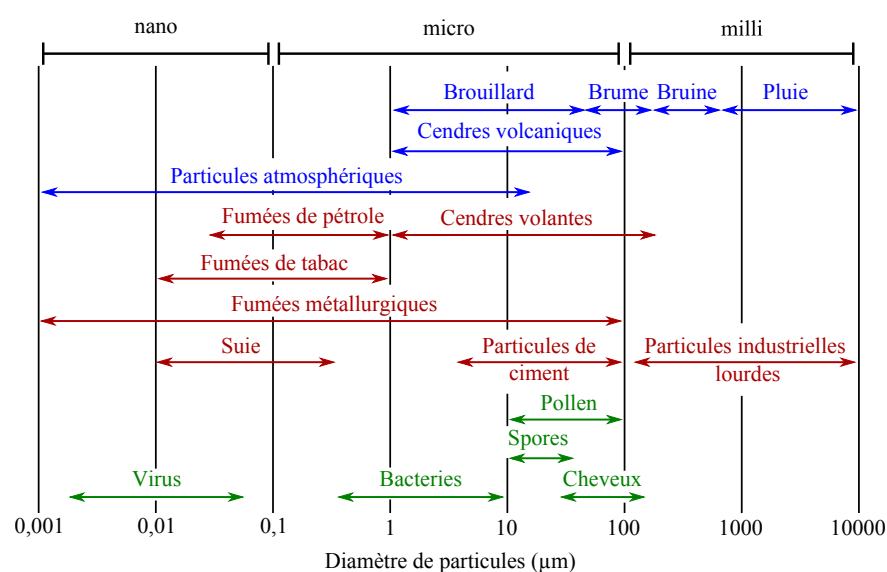


FIGURE 1.1 – Granulométrie des particules suivant leur origine [12].

La taille des particules est un paramètre très important puisqu'elle détermine le comportement de ces dernières lorsque celles-ci se trouvent en suspension dans un gaz. En effet, les particules évoluent de façon variable et sont gouvernées par différentes lois physiques selon leur taille [13]. Par exemple, les particules les plus fines subissent principalement le mouvement brownien, tandis que les particules microniques, sont influencées essentiellement par la force de gravité et l'inertie [14].

Par ailleurs, la majorité des particules présentes dans l'air résulte d'une agglomération ou agrégation de particules de plus petites tailles. La norme ISO/TS 27687:2008 [11] définit ces deux notions comme suit:

1. **Agrégat:** ensemble de particules comprenant des particules fortement liées ou fusionnées dont la surface externe peut être significativement plus petite que la somme des surfaces de chacun des composants. Les forces assurant la cohésion d'un agrégat sont des forces intenses, comme des liaisons covalentes ou des forces résultant d'un frittage ou d'un enchevêtrement physique complexe. Comme pour les agglomérats, les agrégats sont également appelés particules secondaires et les particules sources initiales sont appelées particules primaires.
2. **Agglomérat:** ensemble de particules faiblement liées, d'agrégats ou mélange des deux dont la surface externe résultante est similaire à la somme des surfaces de chacun des composants. Les forces assurant la cohésion d'un agglomérat sont des forces faibles, par exemple forces de Van der Waals, un simple enchevêtrement physique ou des forces électrostatiques. Les agglomérats sont également appelés particules secondaires et les particules sources sont appelées particules primaires. Ce phénomène d'agglomération des particules est aussi influencée par la concentration, la distribution granulométriques, la composition, la masse volumique et la forme de particules.

Il est important de signaler que ces définitions des termes agglomérat et agrégat varient selon les standards. Ainsi, comme l'ont mis en évidence Nichols et al. [15], les normes britanniques (BS) et internationales (ISO) donnent des définitions totalement opposées puisque la notion d'agglomérat de la norme britannique correspond à la notion d'agrégat de la norme internationale et inversement.

Les phénomènes à l'origine des collisions entre les particules sont généralement le mouvement brownien, les forces externes et les turbulences. Les modèles théoriques d'agglomération consistent à conserver le nombre de particules à la suite de la collision et de déterminer la fonction de fréquence de collision selon la granulométrie, la densité des particules et les paramètres du système [16].

Pour un aérosol composé de particules très fines ( $< 1 \mu\text{m}$ ), le gaz ne doit pas être traité comme un milieu continu mais comme un ensemble de molécules à grande vitesse qui rentrent en collision de façon aléatoire avec les particules [12, 13, 17]. L'espacement moyen entre les molécules du gaz, défini comme la distance moyenne parcourue par une molécule entre plusieurs collisions, est nommé le libre parcours moyen ( $\lambda$ ),

$$\lambda = \frac{2 \cdot \mu_g}{\rho_g} \cdot \sqrt{\frac{\pi \cdot M}{8 \cdot R \cdot T}} \quad (1.1)$$

Ce libre parcours moyen dépend de la viscosité dynamique ( $\mu_g$ ), de la masse volumique ( $\rho_g$ ) (qui est une fonction de la pression et de la température), de la température ( $T$ ) et de la masse molaire ( $M$ ) du gaz. Pour une température,  $T_r$ , de  $20^\circ\text{C}$  et une pression atmosphérique normale,  $P_r$ , de  $101\,325\text{ Pa}$ , le libre parcours moyen est donné par l'équation 1.2. Les constantes de cette équation sont égales à  $\lambda_r = 67,3\text{ nm}$ .

$$\lambda = \lambda_r \cdot \frac{T}{T_r} \cdot \frac{P_r}{P} \cdot \frac{1 + 110,4/T_r}{1 + 110,4/T} = 65\text{ nm} \quad (1.2)$$

Le nombre de Knudsen ( $Kn$ ), rapport entre le libre parcours moyen et le rayon de particule, permet de rendre compte de la continuité du milieu.

$$Kn = 2 \cdot \frac{\lambda}{d_p} \quad (1.3)$$

Le milieu est continu quand la valeur de  $Kn$  est inférieure à 1. Le système gaz/solide peut alors être décrit par les variables d'état classiques. Le milieu sera intermédiaire pour une valeur de  $Kn$  autour de 1 et sera en domaine moléculaire pour des valeurs de  $Kn$  supérieures à 1. Plus le nombre de Knudsen est élevé, plus les collisions entre les molécules du gaz porteur se font négligeables par rapport aux collisions gaz/solide et le milieu ne peut plus être considéré comme continu.

Fuchs (1964) [9] estime que la fréquence de collision peut être obtenue à partir du coefficient de diffusion des particules. Ainsi, la fonction de fréquence de collision est une expression dérivée de la théorie cinétique des gaz en supposant que les particules sont des sphères.

Dans le cas de l'agglomération brownienne, les particules rentrent en collision en raison de leurs différences de vitesses. Si cette différence de vitesse est produite par des forces externes (gravité, électriques, ...), nous parlons d'agglomération cinématique.

Si les particules qui rentrent en collision sont solides et n'ont pas assez de temps pour coalescer avant de rentrer à nouveau en collision, les structures de type fractal commencent à se former. Ces structures sont généralement constituées de petites particules presque sphériques et de même taille appelées particules primaires. La dimension fractale ( $D_f$ ) d'un agglomérat donne notamment des informations sur sa compacité, ainsi un agglomérat dense et sphérique aura une dimension fractale proche de 3 [18]. Des expériences et simulations numériques ont montré que le processus d'agglomération dominé par le mouvement brownien a tendance à produire des agglomérats avec une dimension fractale assez faible, dans la gamme  $1,6 < D_f < 2,2$ . Ces structures ouvertes rentrent en collision et augmentent leur taille beaucoup plus rapidement que des particules sphériques de même volume, spécialement dans le régime moléculaire. Dans un milieu continu, les sections transversales accrues et la diminution de la mobilité brownienne se compensent, elles n'ont donc pas beaucoup d'influence sur les fréquences de collision [19].

Les théories de la physique des aérosols sont établies, dans la plupart de cas, pour des particules sphériques ce qui permet de caractériser leur taille par un unique paramètre, le diamètre  $d_p$ . Cependant, comme nous venons de le voir les aérosols habituellement rencontrés sont loin d'avoir des formes idéales, et la définition de la dimension d'un agglomérat/agrégat devient plus complexe. Par conséquent, la notion de diamètre équivalent est introduite. Ainsi, le diamètre équivalent est défini comme le diamètre d'une sphère ayant la même propriété physique spécifique ou le même comportement que la particule de forme irrégulière mesurée [12, 13]. Pendant cette étude, les principaux diamètres équivalents utilisés seront les suivants :

- **Diamètre de Stokes ( $d_s$ ):** Le diamètre de Stokes est le diamètre d'une sphère qui a la même vitesse de sédimentation et la même masse volumique que la particule.
- **Diamètre équivalent en volume ( $d_{ev}$ ):** Le diamètre équivalent en volume est défini comme le diamètre d'une sphère qui a le même volume que la particule considérée.
- **Diamètre aérodynamique ( $d_a$ ):** Le diamètre aérodynamique est le diamètre d'une sphère ayant la même vitesse de sédimentation que la particule et une masse volumique égale à  $1 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ .
- **Diamètre de mobilité électrique ( $d_{me}$ ):** Le diamètre de mobilité électrique d'une particule est défini comme le diamètre d'une particule monochargée qui a la même mobilité électrique que la particule.

## 1.2 Sources des particules ultrafines

Les nanoparticules susceptibles de se retrouver dans l'air des lieux de travail, ont essentiellement deux origines: les (nano) particules manufacturées qui trouvent de plus en plus d'applications industrielles et les particules ultrafines (PUF) et nanoparticules générées par certains procédés de fabrication: moteurs à combustion, incinérateurs, fumées métalliques (soudage, coupage, projection thermique,...).

Les nanoparticules manufacturées sont destinées à des usages industriels, tels que les oxydes de zinc, la silice, l'alumine, le dioxyde de titane, le noir de carbone... Tandis que les particules ultrafines sont des émissions secondaires issues de procédés industriels, par exemple: les émissions moteurs diesel, les fumées de soudage...

Les particules ultrafines, définies généralement comme des particules avec un diamètre aérodynamique inférieur à 100 nm, ont tendance à se former par nucléation, conversion entre le gaz et les particules et par évaporation. La plupart des particules ultrafines présentes dans un lieu de travail sont principalement produites par nucléation ou par la combustion des produits ou à partir de vapeurs saturées provenant de procédés tels que la fusion, le soudage, l'ablation laser, etc., [20–22]. De plus, les particules ultrafines peuvent être générées pendant des opérations mécaniques telles que le broyage, la découpe et le polissage [23].

**Tableau 1.1** – Procédés susceptibles de générer des particules ultrafines [24].

| Type de procédés    | Sources potentielles d'émission secondaire                                                                                                                                                                                                                                                                                      |
|---------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Procédés thermiques | <ul style="list-style-type: none"> <li>– Fonderie et affinage des métaux (acier, aluminium, fer...)</li> <li>– Métallisation (galvanisation...)</li> <li>– Soudage et gougeage</li> <li>– Coupage de métaux (laser, torche thermique...)</li> <li>– Traitement thermique de surface (laser, projection thermique...)</li> </ul> |
| Procédés mécaniques | <ul style="list-style-type: none"> <li>– Usinage</li> <li>– Ponçage</li> <li>– Perçage</li> <li>– Polissage...</li> </ul>                                                                                                                                                                                                       |
| Combustions         | <ul style="list-style-type: none"> <li>– Émissions de moteur diesel, essence ou gaz</li> <li>– Centrale d'incinération, thermique, crémation</li> <li>– Fumage de produits alimentaires</li> <li>– Chauffage au gaz...</li> </ul>                                                                                               |

Nous portons un intérêt particulier aux particules ultrafines issues des procédés dont la finalité n'est pas la production de nanoparticules mais dont la mise en œuvre en génère. Le tableau 1.1 synthétise quelques procédés, sources d'émissions de particules.

Pendant cette étude nous nous sommes intéressés aux procédés de projection thermique qui présentent l'inconvénient d'émettre de grandes quantités de PUF toxiques.

La projection thermique regroupe l'ensemble des procédés de revêtement de surface, pour lesquels un matériau d'apport est fondu par une source de chaleur, puis projeté sur la surface à revêtir sur laquelle il se solidifie. On peut séparer les procédés de projection thermique en deux familles, selon la source de chaleur utilisée: flamme ou arc électrique. Le procédé de métallisation par flamme consiste à introduire un matériau, sous forme de poudre, au centre d'une flamme oxy-combustible produite par un chalumeau et de le véhiculer grâce à l'énergie cinétique transmise par les gaz de combustion. La méthode par arc électrique consiste à générer un arc électrique entre deux fils d'un métal d'apport. Le métal fondu dans l'arc est ensuite atomisé et propulsé par un jet d'air comprimé sur le substrat. 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. Le chauffage et la fonte se produisent entre les deux fils constituant le matériau d'apport. Tous deux chargés électriquement avec des polarités opposées et alimentés pour maintenir un arc constant [4,25].

Le Service des Etudes et des Statistiques Industrielles (SESSI) en 2007, a mis en évidence qu'il existe, en France, environ 310 entreprises de plus de 20 personnes qui réalisent des traitements métalliques des surfaces ce qui représente 17500 personnes potentiellement exposées aux fumées de métallisation.

### 1.3 Effets sur la santé

Les fumées produites, mélangées à de l'air chaud, sont formées (en proportions variables suivant le procédé) de gaz et de poussières dont les dimensions sont en quasi-totalité inférieures au micromètre et qui, de fait, sont susceptibles d'atteindre la région alvéolaire de l'appareil respiratoire [25,26].

Les travailleurs peuvent être exposés aux fumées par inhalation, ingestion et par le contact de la peau. Ces trois modes d'exposition peuvent avoir des effets sur la santé, mais l'inhalation reste la principale voie d'exposition. Afin d'évaluer l'exposition réelle, des mesures de la concentration de particules peuvent être réalisées dans la partie interne de l'équipement de protection individuelle (EPI) que porte l'opérateur. Cependant, il est important de noter que la totalité de la masse collectée lors des échantillonnages ne correspond pas aux fumées métalliques. Liden et Surakka (2009) ont montré que l'exposition réelle aux fumées de métallisation représente entre 25 et 55 % de la masse collectée et la fraction restante correspond aux résidus du broyage et des éclaboussures [27]. Les travailleurs peuvent également être exposés par ingestion et par contact avec la peau. Ceci doit être pris en compte lors de l'évaluation de l'exposition, puisque des travailleurs peuvent manger avec les mains sales ou ingérer des aliments contaminés. Cette voie est importante car le cancer du poumon a notamment été associé à la consommation humaine de l'eau potable contenant des niveaux élevés d'arsenic et de chrome [28].

Après leur déposition, les nanoparticules semblent transloquer facilement vers des sites extra pulmonaires et atteignent alors différents organes cibles. Deux mécanismes ont été identifiés [29]:

- La transcytose à travers l'épithélium du système respiratoire dans l'interstitium<sup>a</sup>, ce qui permet d'atteindre le système sanguin directement ou par les lymphatiques et conduit à la distribution de ces nanomatériaux dans tout l'organisme.
- Le passage par les nerfs sensitifs présents dans l'épithélium des voies aériennes, puis la translocation axonale vers les ganglions et les structures du système nerveux central.

---

a. Interstitium pulmonaire: tissu conjonctif soutenant les axes broncho-vasculaires, les cloisons inter-lobulaires, le tissu sous-pleural et les cloisons inter-alvéolaires

De plus, des études épidémiologiques suggèrent que ces dépôts peuvent être à l'origine de maladies pulmonaires, cardiovasculaires et du système immunitaire [30, 31]. Il est évident qu'il existe une relation entre les effets sur la santé et les concentrations de particules, et Oberdörster et al., ont été les premiers à avoir établi une corrélation entre la concentration en nombre de particules et leur toxicité [32]. Ils ont réalisé des expériences avec des rats et ont montré que les inflammations pulmonaires étaient plus importantes lorsque la concentration numérique de particules de polytetrafluoroéthylène de 20 nm de diamètre augmentait. De plus, la possibilité d'un lien entre la surface de la particule et la réponse inflammatoire a été démontrée par Donaldson et al. [33].

Le dépôt des particules en suspension dans le système respiratoire dépend des propriétés physico-chimiques de l'aérosol (la taille, la forme, la surface, le caractère hygroscopique et hydrosoluble et la composition chimique), mais aussi de l'anatomie de l'appareil respiratoire [34]. On distingue habituellement cinq mécanismes de dépôt [29]:

- la sédimentation, liée à la gravité agissant sur les particules ;
- l'impaction inertielle, qui caractérise le comportement des particules massives ;
- l'interception, qui se produit lorsqu'une particule entre en contact avec une surface ;
- la diffusion, liée au mouvement aléatoire des particules très fines ;
- l'attraction électrostatique, lorsque les particules sont chargées.

Les particules inhalées peuvent se déposer de différentes façons à l'intérieur du corps humain [35–38]. La figure 1.2 montre en fonction de leur diamètre, les différentes zones de dépôt des particules dans les voies respiratoires et le mécanisme physique associé à ce dépôt. Nous pouvons observer une zone de faible dépôt des particules de 100 nm. Cela correspond, comme pour l'efficacité de collecte de particules par des médias fibreux, à la zone où aucun des phénomènes de dépôt n'est prépondérant.

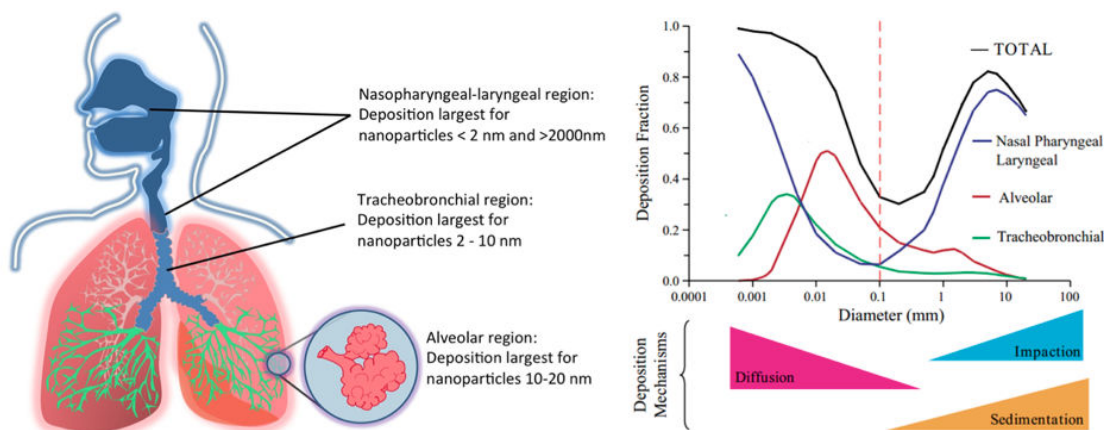


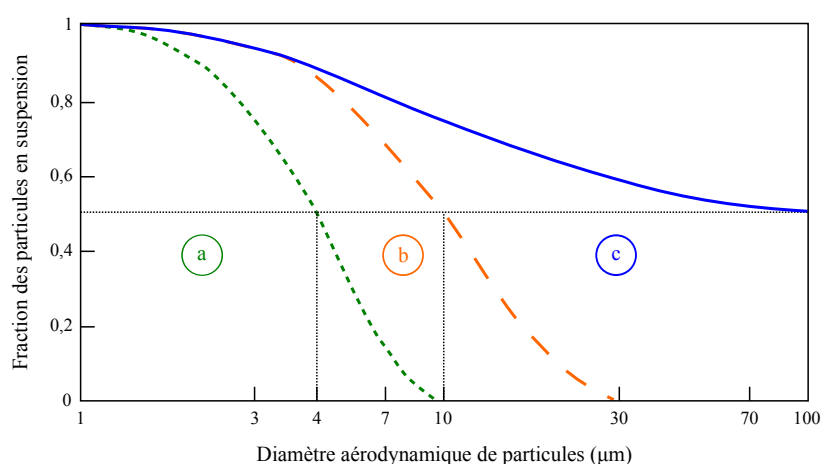
FIGURE 1.2 – Dépôt de particules dans les voies respiratoires selon le mécanisme de dépôt [39].

## 1.4 Valeurs limites d'exposition

De par les concentrations élevées générées par les procédés de métallisation, le niveau d'empoussièrement des lieux de travail (cabines) dans lesquels s'effectuent ces différentes opérations (soudage, découpe, métallisation) peut être très élevé et atteindre plusieurs dizaines de  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ . Actuellement, il n'existe pas de réglementation spécifique applicable aux particules ultrafines. Il faut, alors appliquer les règles générales de prévention du risque chimique définies par les articles R. 4412-1 à R.

4412-58 du Code du travail. Il faut aussi adopter les règles particulières de prévention du risque chimique pour les activités impliquant des nanomatériaux cancérogènes, mutagènes et reprotoxiques de catégorie 1 et 2 définies par les articles R. 4412-59 à R. 4412-93 du Code du travail.

L'évaluation du risque pour l'homme s'effectue à partir de la totalité de ce qui peut être inhalé par le système respiratoire (fraction inhalable) ou de sous-fractions déterminées dans le cas d'aérosols connus pour leurs effets locaux (fraction alvéolaire, par exemple). Ces fractions sont numériquement définies dans la norme européenne EN 481, en accord avec l'Organisation internationale de normalisation (ISO) et la Conférence Américaine des Hygiénistes Industriels Gouvernementaux (ACGIH) comme suit (cf. Figure 1.3),



**FIGURE 1.3** – Fraction de particules susceptibles d'être inhalées selon leur diamètre aérodynamique. a : Alvéolaire ( $d_a$  médian = 4  $\mu\text{m}$ ); a + b : Thoracique ( $d_a$  médian = 10  $\mu\text{m}$ ); a + b + c : Inhalable ( $d_a$  médian = 100  $\mu\text{m}$ ). [40]

En France, il n'existe pas de valeur limite d'exposition professionnelle spécifique pour les particules ultrafines, mais une réflexion est en cours au niveau international pour la mise en place de VLEP adaptées aux PUF. Ces valeurs limites d'exposition sont actuellement définies sur huit heures pour différents types de poussières [41]:

- Poussières réputées « sans effet spécifique »: 10  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$  pour la fraction inhalable et 5  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$  pour la fraction alvéolaire,
- Fumées de soudage: 5  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$  pour la fraction inhalable,
- Graphite (sous forme non fibreuse): 2  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$  pour la fraction alvéolaire,
- Dioxyde de titane: 10  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$  pour la fraction inhalable,
- Noir de carbone: 3,5  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ ,
- Oxydes et sels métalliques (oxyde de zinc, oxyde de fer, carbonate de calcium, oxyde de nickel...): valeurs entre 5 et 10  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ .

Aux États Unis, l'ACGIH et l'Institut National de la Sécurité au Travail et de Santé (NIOSH) recommandent des VLEPs pour les particules nanométriques comme suit,

- Poussières réputées « sans effet spécifique » : 10  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$  pour la fraction inhalable et 3  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$  pour la fraction alvéolaire,
- Nanotubes de carbone: 7  $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$  exprimée en carbone élémentaire,
- Dioxyde de titane: 0,3  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$  pour la fraction alvéolaire cancérogène ( $d_a \leq 100 \mu\text{m}$ ) et 2,4  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$  pour la fraction alvéolaire non cancérogène ( $d_a \geq 100 \mu\text{m}$ )



L'organisme allemand responsable de la sécurité et de la santé au travail (IFA), fourni, quant à lui, les préconisations suivantes:

- Poussières réputées « sans effet spécifique »:  $10 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$  ( $4 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$  en discussion) pour la fraction inhalable et  $3 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$  ( $1,5 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$  en discussion) pour la fraction alvéolaire. Ces valeurs ne s'appliquent pas aux nanomatériaux.
- Fumées métalliques ( $1 \text{ nm} \leq d_a \leq 100 \text{ nm}$ ):  $20\,000 \text{ particules} \cdot \text{cm}^{-3}$  pour la fraction inhalable,
- Nanotubes de carbone:  $20\,000 \text{ particules} \cdot \text{cm}^{-3}$ ,
- Nanofibres:  $0,01 \text{ fibres} \cdot \text{cm}^{-3}$ ,
- Nanomatériaux granulaires biopersistants:  $40\,000 \text{ particules} \cdot \text{cm}^{-3}$

Le BSi, au Royaume Uni, a fixé des BL (Benchmark levels) pour 4 classes de nanomatériaux :

- Nanomatériaux fibreux:  $0,01 \text{ fibres} \cdot \text{cm}^{-3}$  (par référence à l'amiante),
- Nanomatériaux insolubles ou peu solubles: Concentration en masse :  $VLE_{macro} \cdot 0,066^b$  ou concentration en particules:  $20\,000 \text{ particules} \cdot \text{cm}^{-3}^c$ ,
- Nanomatériaux solubles: Concentration en masse:  $TLV_{macro} \cdot 0,5$ .

Des valeurs limites d'exposition professionnelle spécifiques à des matériaux sous forme de poussières microniques ou de fumées se trouvent dans le tableau 1.3.

**Tableau 1.2** – Valeurs limites d'exposition professionnelle spécifiques à des matériaux sous forme de poussières micrométriques ou de fumées nanométriques [40].

| Nanomatériaux le plus courants           | VLEP particules micrométriques en France ( $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) | VLEP particules micrométriques dans autres pays ( $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) | VLEP fumées nanométriques en France ( $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) | VLEP fumées nanométriques en autres pays ( $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) |
|------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------|
| Argent                                   | 0,1<br>(Ag métallique)                                                       | 0,01–0,1                                                                            | —                                                                       | —                                                                            |
| Oxyde de fer ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) | 10<br>(oxyde rouge synthétique)                                              | 3,5–5<br>(en Fe inhalable)<br>3–6<br>(alvéolaire)                                   | 5                                                                       | 3,5–5                                                                        |
| Dioxyde de titane                        | 10<br>(en Ti)                                                                | 5–10<br>(inhalable)<br>3–4<br>(alvéolaire)                                          | —                                                                       | —                                                                            |
| Alumine                                  | 10                                                                           | 2,5–10<br>(inhalable)<br>1,2–6<br>(alvéolaire)                                      | 5<br>(fumées de soudage)                                                | 1,2<br>(alvéolaire)<br>5<br>(fumées de soudage)                              |

b.  $0,066 = TLV_{nano}/TLV_{micro}$  selon proposition du NIOSH pour le  $\text{TiO}_2$ , dans le projet initial ( $0,1 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}/1,5 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ ). Dans sa recommandation finale, le NIOSH a relevé les valeurs: le rapport est en fait de 0,125.

c. Concentration en particules au dessus du bruit de fond, si pas de  $VLE_{macro}$ . La pollution urbaine en Grande Bretagne se situe entre  $20\,000$  et  $50\,000 \text{ particules} \cdot \text{cm}^{-3}$ . Le diamètre des particules à compter n'est pas précisé.



| Nanomatériaux le plus courants | VLEP particules micrométriques en France ( $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) | VLEP particules micrométriques dans autres pays ( $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) | VLEP fumées nanométriques en France ( $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) | VLEP fumées nanométriques en dans autres pays ( $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) |
|--------------------------------|------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|
| Oxyde de zinc                  | 10                                                                           | 2 (ACGIH TLV)<br>10 (STEL)<br>(alvéolaire)                                          | 5                                                                       | 0,1<br>(Allemagne 2009)<br>5 (NIOSH TLV)<br>10 (STEL)                             |
| Carbonate de calcium           | 10                                                                           | 10<br>(inhalable)<br>4<br>(alvéolaire)                                              | —                                                                       | —                                                                                 |

Afin d'assurer la protection des travailleurs contre les risques d'inhalation des fumées de soudage, il est donc nécessaire de capter ces dernières à leur source d'émission [25,26]. Pour ce faire, la mise en œuvre de protection individuelle, mais également de protection collective est indispensable.

## 1.5 Collecte de particules ultrafines par des médias fibreux

A faibles concentrations de poussières, les médias fibreux restent la technique de filtration la plus économique pour collecter des particules submicroniques avec une haute efficacité. Ils sont utilisés dans de nombreuses applications telles que la protection respiratoire, le traitement de l'air dans les effluents de fonderie ou les centrales nucléaires, la collecte des poussières dans les centrales électriques et les salles blanches, etc.

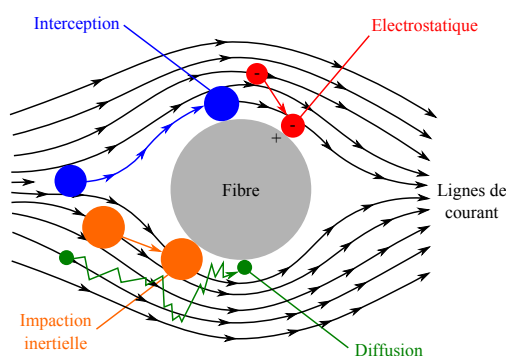


FIGURE 1.4 – Mécanismes de collecte des particules dans un média fibreux.

Durant la filtration à l'aide d'un média fibreux, les particules sont capturées à la surface et également dans la profondeur de la structure poreuse. Les particules peuvent être collectées au moyen des différents mécanismes représentés dans la figure 1.4 [12, 13, 42]. L'efficacité de collecte de chaque mécanisme est principalement dépendante de la taille des particules, de la vitesse superficielle du gaz porteur et la taille des fibres.

La collecte des particules par diffusion se produit quand les particules, grâce à leur mouvement brownien, rentrent en collision avec les fibres. La diffusion et donc l'efficacité de collecte, deviennent plus importantes avec la diminution du diamètre des particules, en particulier pour les diamètres inférieurs 100 nm.

Par ailleurs, même si la trajectoire d'une particule ne s'écarte pas de la ligne de courant, une particule sera collectée si la distance entre son centre et le centre du collecteur (fibre, gouttelette, ...) est inférieure ou égale à la somme des rayons. Ce mécanisme, nommé interception, agit principalement sur les particules de taille comprise entre 100 et 300 nm, lesquelles possèdent un faible mouvement d'inertie et peuvent suivre les lignes de courant.

Les particules se déplaçant dans le flux peuvent ne pas suivre les lignes de courant en raison notamment de leur inertie. Si la courbure d'une ligne de courant est suffisamment grande et la masse d'une particule suffisamment élevée, la particule peut s'écarter assez loin de la ligne de courant et entrer en collision avec la surface du support. L'impaction inertielle dépend des propriétés des particules à séparer (taille, masse volumique) et ce mécanisme devient significatif pour les particules de quelques centaines de nanomètres. Cependant les mécanismes dépendent également des propriétés du fluide (vitesse) et des filtres (la compacité et le diamètre des fibres jouent notamment sur la vitesse interstitielle et la courbure des lignes de courant).

La collecte des particules par des effets électrostatiques n'a lieu que si la force d'attraction électrostatique entre les charges des particules et celles du média fibreux est suffisamment importante pour attirer les particules vers les fibres. Finalement, les mécanismes les moins importants sont la sédimentation et le tamisage.

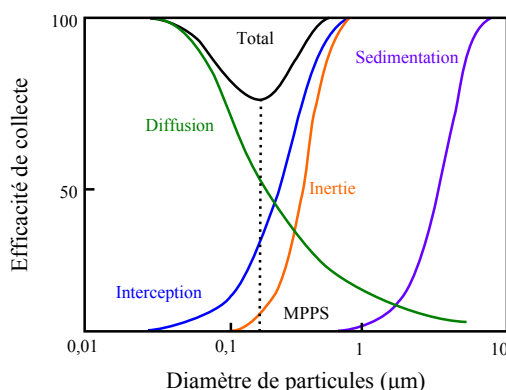


FIGURE 1.5 – Mécanismes de collecte des particules neutres dans un média fibreux [12]

L'efficacité totale de collecte (somme de tous les mécanismes) dépend ainsi de la taille des particules et présente une zone de forte pénétration aux alentours de 300 nm (MPPS) qui correspond à la taille de particules pour laquelle aucun mécanisme n'est prépondérant (cf. Figure 1.5).

On peut distinguer deux grandes familles de filtres, les filtres à manches (ou poches) et les filtres à cartouches (ou cassettes). Ces filtres peuvent fonctionner en continu ou non et pour des installations fonctionnant en aspiration ou refoulement.

#### Filtres à manches

Un filtre à manches est constitué d'un caisson fermé à sa base par une trémie, dans lequel sont suspendues des manches filtrantes en feutre ou en tissu ouvertes à une extrémité. Les gaz chargés de poussières pénètrent dans la partie basse du caisson et rencontrent un déflecteur qui permet dans un premier temps de séparer les grosses particules. Ils traversent ensuite les manches de l'extérieur vers l'intérieur.

Les poussières sont retenues sur la surface extérieure des manches sous forme de couche, appelée gâteau de filtration. Ainsi, l'efficacité globale de collecte est liée à la fois à la séparation des poussières par l'élément filtrant et à l'adhérence des poussières au média filtrant. Les gaz épurés remontent à l'intérieur des manches et sont évacués dans la partie supérieure du filtre. Le filtre peut fonctionner soit en dépression avec un ventilateur situé en aval du filtre, soit en surpression. En se déposant par couches sur les manches, les poussières forment un filtre supplémentaire, augmentant ainsi l'efficacité de filtration. Tout se passe comme si le tissu ne servait que de support à une couche de poussières qui, elle, joue le rôle de filtre [43].

#### Filtres à cartouches

Les cartouches filtrantes sont constituées de média fibreux plissés, généralement mis en œuvre sous forme cylindrique. Cette technologie de filtre permet de proposer de grande surface de filtration pour un faible encombrement et des pertes de charges générées plus faibles pour un même débit à traiter. En effet, l'opération de plissage permet d'augmenter la surface du filtre mis en forme dans une canalisation de section donnée, et permet ainsi de diminuer la vitesse de filtration de l'air au niveau du filtre, réduisant de ce fait les pertes de charges. Les paramètres de plissages : hauteur, angle et espacement des plis, doivent alors être optimisés de sorte à minimiser la perte de charge [44].

De nombreuses études ont été réalisées avec l'objectif de caractériser les performances des filtres à manches ou à cartouches vis-à-vis de particules ultrafines. Les performances d'un filtre à fibres peuvent être influencés par la nature des particules, leur taille, ainsi que les conditions opératoires (humidité relative, température, débit de filtration, ...) [45–48], mais globalement nous pouvons conclure que l'efficacité de collecte des particules ultrafines par des médias fibreux est de l'ordre de 95 à 99 % [3, 45–57].

La collecte de particules par des médias fibreux provoque un colmatage progressif du filtre ce qui se traduit à une augmentation progressive de la perte de charge et de l'efficacité.

Pour ces deux types de filtres, lorsque la perte de charge atteint une valeur limite au-delà de laquelle les coûts opérationnels seraient trop importants, une opération de décolmatage s'impose par l'une des techniques suivantes:

- Secouage (vibrations mécaniques) ;
- Injection d'un grand volume d'air à contre-courant sous faible pression ;
- Injection d'un petit volume d'air à contre-courant sous haute pression (décolmatage pneumatique).

Ces actions provoquent le décollement du gâteau de particules. Celui-ci chute dans une ou plusieurs trémies constituant la partie basse du caisson et il est évacué. Ce décolmatage est effectué à intervalles de temps réguliers ou avec une cadence asservie au maintien de la perte de charge.

Les études réalisées montrent que les opérations de décolmatage permettent de régénérer les filtres et de retrouver des valeurs de perte de charge proches de celle du média fibreux neuf, pour les premiers cycles. Il est en effet impossible d'obtenir la valeur de la perte de charge du média fibreux à l'état neuf car des particules restent toujours soit à la surface soit dans la profondeur des médias. Cette perte de charge résiduelle aura donc tendance à augmenter au cours des cycles colmatage/décolmatage. [50, 52, 58–65].

Le procédé de décolmatage peut être mis en œuvre jusqu'à ce que les éléments de filtration deviennent irrémédiablement encrassés et doivent être remplacés [66, 67]. De plus, de par les forces d'adhésion importantes mises en jeu, dans le cas des PUF, le décolmatage devient rapidement inopérant. Par ailleurs,

ce décolmatage peut être à l'origine d'une remise en suspension en aval des particules préalablement collectées par le média et d'une détérioration de la structure du filtre à l'origine de fuites pouvant entraîner une forte dégradation de l'efficacité [3] et ainsi nuire à l'objectif de sécurité des procédés, de l'environnement et/ou des personnes.

Actuellement, la recherche s'oriente vers l'amélioration des techniques de décolmatage du filtre [58] (précoating, optimisation des pressions de décolmatage), cependant il s'avère intéressant d'étudier de nouvelles techniques de séparation de particules ultrafines d'un gaz porteur. Dans cette optique, nous nous orientons vers des séparateurs de type colonne à bulles qui pourraient s'avérer une alternative crédible aux filtres à fibres de par leur fonctionnement à perte de charge constante. Un des avantages de ces séparateurs est qu'ils ne nécessitent pas d'opération de décolmatage et donc ne présentent aucun risque de remise en suspension de particules nanométriques. Actuellement très peu de données existent sur le sujet. La collecte de particules microniques dans des colonnes à bulles et à spray a été étudiée par quelques auteurs. Néanmoins, les résultats manquent pour s'assurer de l'efficacité de ces systèmes d'épuration vis-à-vis des nanoparticules et plus particulièrement des particules contenues dans les fumées issues des procédés de métallisation.

# Caractérisation des particules ultrafines

Cette étude s'intéressant à la collecte de particules ultrafines dans une colonne à bulles, il est important, dans un premier temps, de parfaitement caractériser les aérosols employés notamment en termes de concentration et de distribution granulométrique. La distribution granulométrique pour un aérosol est fortement corrélée au phénomène d'agglomération. En effet, le mouvement brownien et les forces d'adhésion des particules sont à l'origine de la formation des agglomérats [14]. Ainsi, selon la concentration, les particules rentrent en collision entre elles et sous l'effet des forces d'adhésion forment des agglomérats de taille plus ou moins importante. Le résultat de ce mécanisme est une décroissance continue de la concentration en nombre des particules, couplée à une augmentation de la taille moyenne des particules formant l'aérosol.

Une autre propriété influencée par l'agglomération est la masse volumique des particules, laquelle évoluera en fonction de la structure de l'agglomérat. Ainsi, un agglomérat sphérique, très compact, aura presque la même masse volumique qu'une des particules qui le compose, tandis qu'un autre de forme irrégulière, présentant une structure plus ouverte, aura une masse volumique effective<sup>a</sup> significativement inférieure à celle prédite à partir de sa composition chimique [12]. La raison pour laquelle nous avons mené des expériences afin de déterminer la masse volumique effective de particules est que cette propriété influence grandement les mécanismes de collecte des particules.

La force électrique agissant sur les particules d'un aérosol ainsi que leur charge électrique ont également une influence sur leur collecte, du fait de leur mobilité électrique. Ainsi, des techniques de filtration ont été développées pour profiter de cette propriété et favoriser la collecte des particules (électrofiltres). Dans notre étude, avant d'évaluer l'influence de la force électrique sur la performance de collecte d'une colonne à bulles, nous avons déterminé la charge électrique des particules pour chaque type d'aérosol étudié. Ainsi, il a été possible d'établir les conditions optimales d'opération permettant de favoriser leur collecte dans le liquide de piégeage.

## 2.1 Granulométrie des aérosols

Les aérosols peuvent être classifiés en deux catégories selon la distribution des tailles de particules [68]. Un aérosol est considéré comme mono dispersé lorsqu'il est composé de particules qui ont presque toutes la même taille, avec un écart-type géométrique ( $\sigma_g = d_{50}/d_{16}$ ) inférieur à 1,2. Tandis qu'un aérosol polydispersé est un mélange de particules de différentes tailles. Il existe des paramètres statistiques pour caractériser les distributions des aérosols; parmi lesquels le mode de l'aérosol, i.e., le diamètre correspondant à la particule la plus représentée dans la distribution; la moyenne, i.e., le diamètre moyen de la population de particules; la taille médiane correspondant à la taille pour laquelle 50 % des particules ont une dimension supérieure; et finalement, le diamètre géométrique, correspondant à la pondération du logarithme de chaque taille par le nombre de particules qu'elle contient. Par ailleurs, un écart-type géométrique peut être calculé afin d'estimer la variation de distribution par rapport à la taille moyenne.

---

a. La masse volumique effective est définie ici comme le rapport de la masse de l'agglomérat sur son volume équivalent en mobilité électrique.

La directive 98/24/CE [69] concernant la protection de la santé et de la sécurité des travailleurs contre les risques liés à des agents chimiques sur les lieux de travail, indique que dans les locaux pollués (i.e. les lieux où des substances dangereuses ou gênantes sont émises), les concentrations moyennes en poussières inhalables ( $da \leq 100 \mu\text{m}$ ) et alvéolaires ( $da \leq 4,25 \mu\text{m}$ ) inhalées par une personne, évaluées sur une période de 8 heures de travail, ne doivent pas dépasser respectivement  $10 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$  d'air, pour les poussières dites « sans effets spécifiques ». Concernant les poussières « à effet spécifique », telles que la silice, l'amiante et le plomb, des valeurs limites d'exposition professionnelle (VLEP) particulières sont spécifiées [40]. Les valeurs limites d'exposition à la silice varient de  $0,1$  à  $0,05 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$  sur 8 heures selon la forme de la silice cristalline (quartz ou cristobalite/tridymite). Pour l'amiante, la concentration moyenne de fibres d'amiante dans l'air ne doit pas dépasser  $0,1 \text{ fibres} \cdot \text{m}^{-3}$  sur une heure de travail. La concentration en vapeurs, fumées et poussières de plomb dans l'air ne doit pas dépasser  $150 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$  en moyenne sur 40 heures. Cette réglementation définie en termes de concentration massique n'est pas pertinente pour les particules nanométriques. En effet, de par leur petite taille, des concentrations massiques faibles peuvent conduire à des concentrations en nombre élevées. En conséquent, dans le cas de particules ultrafines, il semble plus approprié d'exprimer la concentration de l'aérosol en nombre de particules par unité de volume d'air ( $\text{particules} \cdot \text{cm}^{-3}$  ou  $\text{particules} \cdot \text{m}^{-3}$ ). Dans ce paragraphe nous allons déterminer les granulométries de fumées de métallisation et de trois aérosols modèles, ainsi que leur concentration fractionnelle (concentration en nombre de particules en fonction de leur diamètre).

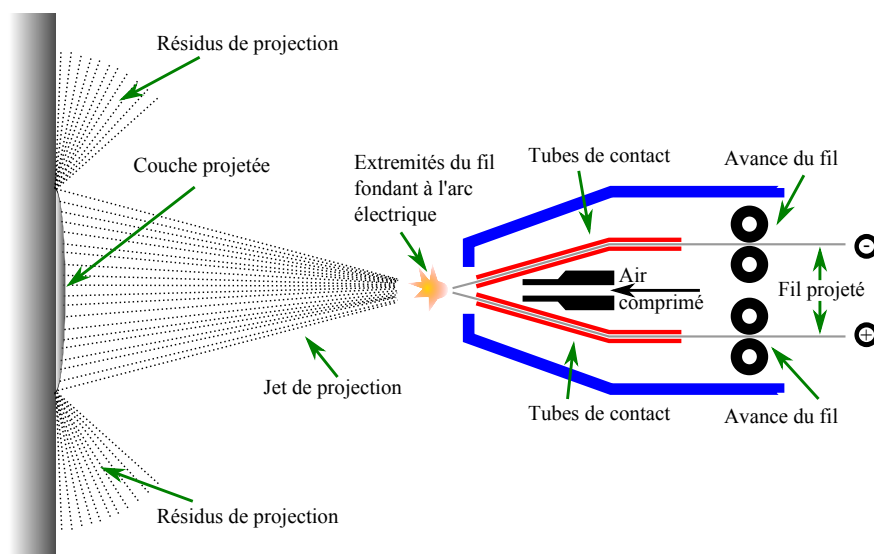


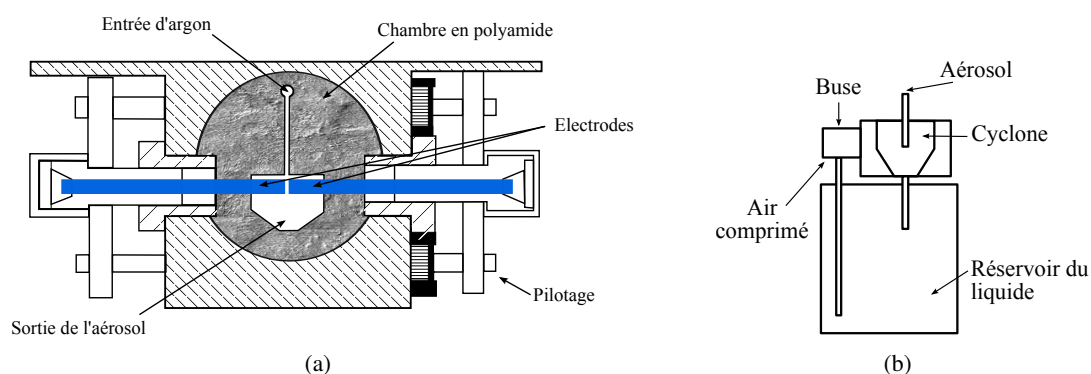
FIGURE 2.1 – Schéma de principe de la projection de fil à l'arc électrique.

Un système automatique de projection thermique par arc électrique (Margarido M25) composé de deux fils d'un alliage Zn (85 %)/Al (15 %) ( $\phi$  2 mm–120 A) a été mis en place sur un banc de métallisation à échelle semi-industrielle pour générer des PUF. Le principe de ce procédé consiste à créer un arc électrique entre deux fils de matériau d'apport afin de le fondre [1, 70, 71]. Il sera ensuite projeté grâce à un flux d'air sur un support en rotation (cf. Figure 2.1). Le pistolet à arc électrique est constitué d'un bras qui permet de faire des mouvements verticaux afin d'assurer une application homogène du matériau sur le support pendant plusieurs heures d'opération. Dans ce cas, la température de fusion peut atteindre  $6000^\circ\text{C}$ . 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 et sont très variés : zinc, aluminium, cuivre, molybdène, alliages... Au cours de ces dernières années, de nouveaux matériaux apparaissent sur le marché : les fils fourrés qui sont en réalité des alliages de type NiCrAl, NiMoAl, FeCrCMn, des fils à base de carbures de

chrome ou de tungstène, des composites AlSi chargés en graphite. Ce procédé est principalement utilisé dans les secteurs de l'automobile et de l'aéronautique. Plus de 90 % des particules constituant les fumées de métallisation sont formées par vaporisation des fils du matériau d'apport [72]. Les particules ultrafines sont formées par condensation de la vapeur métallique. Environ 1 % du matériau d'apport se condense sous forme de nanoparticules d'oxyde métallique lesquelles rentreront en collision entre elles et donneront lieu à des agglomérats de particules [73]. En conclusion, les particules composant les fumées de métallisation peuvent être classifiées dans trois groupes selon leur taille : les particules ultrafines ( $0,01 < d_p < 0,1 \mu\text{m}$ ), fines ( $0,1 < d_p < 2,5 \mu\text{m}$ ) et les grosses ( $d_p > 2,5 \mu\text{m}$ ) [74]. Un système d'aspiration permet de récupérer les particules ultrafines émises par ce procédé, qui constitueront notre aérosol d'étude.

Parallèlement, nous utiliserons trois aérosols poly-dispersés modèles (particules de cuivre (Cu), de graphite (C) et de Polyvinyle acétate (PVAc)), lesquels permettront de tester l'efficacité de collecte de la colonne à bulles sur une large gamme de taille et, ainsi, de déterminer des conditions optimales d'opération. Par la suite, la colonne sera placée dans le banc de métallisation afin d'évaluer ses performances vis-à-vis des fumées de métallisation constituées de particules de Zn/Al. L'intérêt d'utiliser des aérosols modèles réside notamment dans la possibilité de parfaitement maîtriser les conditions de génération et donc la concentration et la distribution de tailles des particules.

Les aérosols de cuivre et de graphite sont produits par un générateur de particules PALAS GFG 1000, capable de générer des agglomérats par décharge électrique entre deux électrodes [75] (taille moyenne des aérosols formés comprise entre 20 et 150 nm, selon les conditions opératoires et le matériau). Deux électrodes, de 6 mm de diamètre environ, sont espacées approximativement 2 mm au sein d'une chambre en polyamide, illustrée dans la figure 2.2(a). L'étincelle nécessaire à la production des particules est fournie par la décharge d'un condensateur (tension de claquage de plusieurs kV), lui-même chargé par une source haute tension, dont le courant de sortie est réglable. Au fur et à mesure de leur consommation, un système automatique maintient l'espace inter-électrode constant, assurant au GFG 1000 un régime de fonctionnement et une génération particulièrement stable et reproductible.



**FIGURE 2.2** – Générateurs d'aérosols: (a) Schéma de la chambre de génération du GFG 1000. (b) Schéma du principe de fonctionnement du générateur Palas AGK 2000.

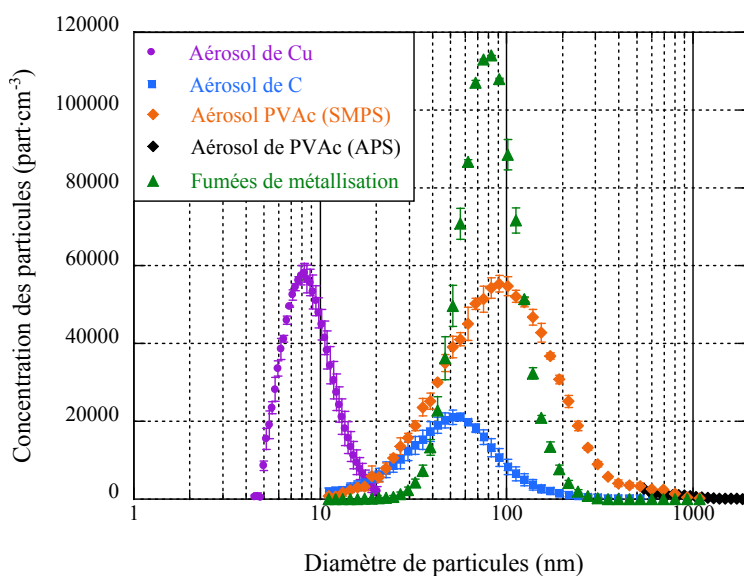
Afin d'éviter une possible oxydation des électrodes, un courant d'argon est amené entre les électrodes. L'aérosol formé dans l'étincelle, par vaporisation, est évacué par ce même courant d'argon et va être condensé pour former de petites particules, qui vont s'agglomérer plus ou moins en fonction de la concentration. Cette agglomération peut être en partie réduite et contrôlée par dilution de l'aérosol obtenu dans un courant d'air comprimé de haute pureté.

L'aérosol de PVAc est quant à lui généré par un générateur PALAS AGK 2000, qui produit des aérosols à partir de suspensions liquides. La taille de particules peut être comprise entre 5 nm et 15  $\mu\text{m}$  en fonction de la concentration de la suspension [76, 77] et de la pression employée (et donc du débit d'air) pour la génération. Le fonctionnement de ce générateur nécessite en effet une alimentation en air comprimé et la pression d'opération est régulée en entrée (cf. Figure 2.2(b)). La suspension de PVAc de concentration connue est nébulisée et un cyclone placé à la sortie du nébuliseur permet de séparer les gouttelettes les plus grosses afin de générer un aérosol ultrafin. La distribution granulométrique et la concentration des particules varient selon les conditions de génération, raison pour laquelle nous les avons maintenues constantes au cours des différents essais (cf. Tableau 2.1).

**Tableau 2.1** – Conditions de génération pour les particules de cuivre, graphite et polyvinyle acétate.

|                                    | Type d'aérosol |          |                    |
|------------------------------------|----------------|----------|--------------------|
|                                    | Cuivre         | Graphite | Polyvinyle acétate |
| Pression d'air comprimé (bar)      | 1,5            | 1,5      | 2,0                |
| Pression d'argon (bar)             | 1,0            | 1,0      | —                  |
| Fréquence d'étincelle (Hz)         | 500            | 300      | —                  |
| Concentration de la solution (%wt) | —              | —        | 5                  |

Afin de connaître la distribution granulométrique et la concentration des aérosols, nous utilisons deux types d'analyseurs de mobilité électrique (SMPS). Ces granulomètres mesurent le diamètre de mobilité électrique des nanoparticules à l'aide d'un classifieur de mobilité électrique (DMA TSI 3080 avec une source radioactive et DMA Grimm 55900 avec une source à effet couronne Grimm 5520) et un compteur de noyaux de condensation (CPC TSI 3776 et CPC Grimm 5403). Nous utilisons, également, un spectromètre (APS TSI 3321) qui détermine le temps de vol des particules pour les classer selon leur diamètre aérodynamique. Les principes de fonctionnement des granulomètres sont décrits en détail dans l'annexe B.2.



**FIGURE 2.3** – Concentration des particules en fonction du diamètre équivalent en mobilité électrique pour les aérosols testés.



La figure 2.3 montre la concentration des particules en fonction du diamètre équivalent en mobilité électrique pour les trois aérosols modèles pour les conditions opératoires décrites précédemment, ainsi que pour les fumées de métallisation. Afin de présenter les concentrations obtenues par l'APS sur la même figure que celles obtenues par le SMPS, nous avons converti les diamètres aérodynamiques en diamètres équivalents en mobilité électrique par la méthode décrite dans la section suivante (cf. Section 2.2).

La distribution granulométrique des aérosols de graphite et de PVAc est du même ordre de grandeur que les fumées de métallisation, c'est la raison pour laquelle nous utiliserons ce type de particules pour la détermination des conditions optimales d'opération de la colonne à bulles. De plus, la composition différente de ces deux aérosols va permettre d'identifier une possible influence de la nature des particules sur l'efficacité de collecte. L'aérosol de cuivre permet d'élargir la gamme de taille afin d'évaluer la performance de collecte de la colonne vis-à-vis des particules ultrafines et nanostructurées ( $d_p < 20$  nm). Le tableau 2.2 réunit les différentes tailles caractéristiques des distributions granulométriques de ces quatre aérosols.

**Tableau 2.2** — Diamètres caractéristiques des distributions granulométriques des aérosols employés au cours de cette étude.

| Type d'aérosol     | Diamètres des particules (nm) |       |        |             | Écart-type géométrique |
|--------------------|-------------------------------|-------|--------|-------------|------------------------|
|                    | Mode                          | Moyen | Médian | Géométrique |                        |
| Cuivre             | 8,2                           | 9,1   | 8,3    | 8,7         | 1,3                    |
| Graphite           | 56,4                          | 57,8  | 46,4   | 48,1        | 1,7                    |
| Polyvinyle acétate | 91,4                          | 100,0 | 89,1   | 90,9        | 1,6                    |
| Alliage Zn/Al      | 82,8                          | 85,6  | 75,0   | 79,2        | 1,4                    |

## 2.2 Masse volumique effective des particules

La masse volumique d'un corps est la masse de l'unité de volume de ce corps. C'est donc le rapport entre la masse totale de la matière considérée et son volume. On distingue plusieurs types de masses volumiques [78]: la *masse volumique absolue* ou *vraie*: quand le volume considéré ne prend en compte ni la porosité fermée<sup>b</sup> ni la porosité ouverte<sup>c</sup>; elle correspond donc à la masse volumique du matériau et la *masse volumique apparente*: quand le volume considéré inclut les porosités ouvertes et fermées.

L'instabilité des aérosols fait que les particules qui les composent rentrent en collision grâce au mouvement brownien, conduisant à leur agglomération [14]. Ainsi, la masse volumique des agglomérats n'est pas liée directement à la composition chimique des particules qui les composent, mais également à sa structure. En conséquence, il est nécessaire d'introduire la notion de masse volumique effective [12]. La masse volumique effective ( $\rho_e$ ) est définie comme le rapport entre la masse ( $m_a$ ) et le volume équivalent en mobilité électrique de l'agglomérat:

$$\rho_e = \frac{6 \cdot m_a}{\pi \cdot d_{me}^3} \quad (2.1)$$

Avec  $d_{me}$  le diamètre équivalent en mobilité électrique. A noter que pour une particule sphérique et non poreuse, la masse volumique effective est équivalente à la masse volumique du matériau. La masse volumique effective est nécessaire pour la conversion des diamètres équivalents et donc la comparaison des

b. Porosité fermée: pores isolés à l'intérieur de la matière, non débouchant en surface.

c. Porosité ouverte: pores communicant avec la surface.

résultats obtenus par différents granulomètres. De plus, ce paramètre est indispensable pour convertir une distribution de particules en nombre en distribution en masse, qui est la métrique actuellement utilisée dans la réglementation pour exprimer l'exposition aux particules [79, 80]. Pendant notre étude, connaître cette propriété s'est avéré indispensable car nous utilisons deux types de granulomètres; un SMPS, qui donne une concentration fractionnelle en nombre selon le diamètre de mobilité électrique des particules et un APS, lequel donne cette même information mais selon le diamètre aérodynamique. Afin de pouvoir comparer nos résultats, nous choisissons de convertir le diamètre aérodynamique en diamètre de mobilité électrique. Les diamètres aérodynamique ( $d_a$ ), et équivalent en mobilité électrique ( $d_{me}$ ), sont liés au diamètre équivalent en volume ( $d_{ev}$ ), et dépendent du facteur dynamique de forme ( $\chi$ ), ainsi [13, 17],

$$d_a^2 = d_{ev}^2 \cdot \frac{1}{\chi} \cdot \frac{Cu(d_{ev}) \cdot \rho_p}{Cu(d_a) \cdot \rho_0} \quad (2.2)$$

$$d_{me} = d_{ev} \cdot \chi \cdot \frac{Cu(d_{me})}{Cu(d_{ev})} \quad (2.3)$$

Avec,  $Cu$  le coefficient de Cunningham qui permet de tenir compte du glissement des molécules de gaz à la surface de la particule et  $\rho_p$  et  $\rho_0$  respectivement, les masses volumiques de la particule et de référence ( $= 1000 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ). Lorsque le diamètre des particules devient du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen ( $\lambda$ ) des molécules de gaz porteur, le milieu ne peut plus être considéré comme continu. L'introduction du coefficient correctif de Cunningham,  $Cu$ , permet de tenir compte de ce comportement. De ce fait, en régime intermédiaire, les particules chutent à une vitesse plus importante que celle prédite par la loi de Stokes. Ce facteur traduit donc la diminution de la force de frottement du gaz sur une sphère en mouvement. Le coefficient de Cunningham dépend du nombre de Knudsen. Millikan [81] a proposé d'utiliser une expression exponentielle à trois paramètres adimensionnels ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ) pour définir ce coefficient:

$$Cu = 1 + Kn \cdot \left[ \alpha + \beta \exp\left(\frac{-\gamma}{Kn}\right) \right] \quad (2.4)$$

Où  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  sont des constantes déterminées expérimentalement et dépendant du système étudié. Le tableau 2.3 rassemble plusieurs valeurs des paramètres ainsi, que le matériau et la taille des particules utilisés pour obtenir les résultats.

**Tableau 2.3** – Valeurs expérimentales des constantes du coefficient de Cunningham en conditions standards de pression (101,3 kPa) et température (23 °C)

| Auteurs                        | Matériau                             | Diamètre (nm)             | $\alpha$ | $\beta$ | $\gamma$ |
|--------------------------------|--------------------------------------|---------------------------|----------|---------|----------|
| Millikan (1923) [81]           | Gouttes d'huile                      | 245 à 2600                | 1,209    | 0,406   | 0,893    |
| Davies (1945) [82]             | Gouttes d'huile                      | 245 à 2600                | 1,234    | 0,393   | 1,080    |
| Allen et Raabe (1982) [83]     | Gouttes d'huile                      | 245 à 2600                | 1,155    | 0,471   | 0,596    |
| Allen et Raabe (1982) [84]     | PSL <sup>a</sup><br>PVT <sup>b</sup> | 800, 1180 et 4600<br>2080 | 1,142    | 0,558   | 0,999    |
| Buckley et Loyalka (1989) [85] | Gouttes d'huile                      | 245 à 2600                | 1,099    | 0,518   | 0,425    |
| Rader (1990) [86]              | Gouttes d'huile                      | 245 à 2600                | 1,209    | 0,441   | 0,781    |
| Hutchins et al. (1995) [87]    | PSL<br>PVT                           | 1000 à ~2200              | 1,231    | 0,469   | 1,178    |
| Kim et al. (2005) [88]         | PSL                                  | 19,90, 100,7 et 269       | 1,165    | 0,483   | 0,997    |
| Jung et al. (2012) [89]        | PSL                                  | 19,62, 63,9 et 101,8      | 1,165    | 0,480   | 1,001    |

a. Polystyrene Latex

b. Polyvinyle Toluene

Les valeurs des paramètres déterminées par Jung et al. (2012) [89] sont adaptées aux particules entre 20 et 100 nm, granulométrie proche de celle de nos aérosols d'essais. C'est la raison pour laquelle leurs coefficients ont été utilisés tout au long de l'étude.

En injectant  $d_{ev}$  de l'expression 2.3 dans l'équation 2.2, nous obtenons,

$$d_a^2 = d_{me}^2 \cdot \frac{1}{\chi^3} \cdot \frac{Cu(d_{ev})^3}{Cu(d_{me})^2 \cdot Cu(d_a)} \cdot \frac{\rho_p}{\rho_0} \quad (2.5)$$

Connaissant les expressions 2.1 et 2.3, la masse volumique effective ( $\rho_e$ ) d'un agglomérat de particules peut s'exprimer par,

$$\rho_e = \rho_p \cdot \left( \frac{1}{\chi} \cdot \frac{Cu(d_{ev})}{Cu(d_{me})} \right)^3 \quad (2.6)$$

Ainsi, l'expression 2.5 peut s'exprimer de façon simplifiée,

$$d_{me} = d_a \cdot \left( \frac{Cu(d_a)}{Cu(d_{me})} \cdot \frac{\rho_0}{\rho_e} \right)^{1/2} \quad (2.7)$$

Nous utilisons cette dernière équation pour effectuer la conversion des diamètres aérodynamiques en diamètres équivalents en mobilité électrique et ainsi, pouvoir comparer les valeurs de l'efficacité de collecte obtenues par les granulomètres SPMS et APS.

Les techniques classiques de détermination de la masse volumique que sont les pycnomètres [90,91], les cellules de Millikan [9] et la combinaison des techniques de microscopie et centrifugation des aérosols [77], sont relativement longues et coûteuses et non adaptées à la détermination de la masse volumique effective. Au contraire, les techniques récemment développées fournissent in situ, en continu et en temps réel des données électroniques, permettant de remonter à la masse volumique effective. Ces techniques utilisent typiquement les diamètres aérodynamique et de mobilité électrique des particules pour déterminer leur masse volumique effective [92–99], paramètre qui permet de rendre compte de la morphologie des aérosols. Généralement, les méthodes emploient, en série ou en parallèle, un analyseur de mobilité électrique (DMA)(SMPS [100]) qui sélectionne les particules selon leur diamètre de mobilité électrique et un impacteur en cascade (ELPI [101]) qui mesure l'intensité de la charge portée par les particules selon leur diamètre aérodynamique, mesure qui permet de déduire la concentration des particules selon leur diamètre aérodynamique. L'association de ces deux appareils en parallèle permet de déterminer la distribution granulométrique des particules selon leur diamètre équivalent en mobilité électrique et selon leur diamètre aérodynamique. La masse volumique effective est ensuite acquise en utilisant une procédure d'ajustement pour les deux distributions de taille [102].

L'association en série, capable de mesurer  $\rho_e$  en « en ligne », développée par Keskinen et al. [103], reportée par Lehmann en 2004 [104], utilise le DMA et l'impacteur en cascade en série pour convertir les signaux électriques de l'impacteur en une concentration en masse [105–107] et ainsi remonter à  $\rho_e$ . Cette méthode sélectionne les particules d'une taille donnée en fonction de leur mobilité électrique à l'aide d'un DMA, puis selon leur diamètre aérodynamique par un impacteur en cascade à basse pression (ELPI) (e.g. [108–111]). Cependant, ce couplage présente certaines limitations. Ainsi, la basse résolution de l'ELPI et la probabilité que des particules d'un certain diamètre se déposent sur plusieurs étages de l'impacteur [112] sont à l'origine d'imprécisions qui ne peuvent être résolues que par l'utilisation d'algorithmes d'inversion complexes [113]. De plus, le débit d'échantillonnage élevé de

l'ELPI ( $10 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  contre 0,3 ou 1,5 pour le DMA) engendre la nécessité de diluer l'aérosol à la sortie du DMA ce qui peut être à l'origine d'un biais supplémentaire. D'autres méthodes ont été employées avec, par exemple, le couplage en parallèle d'un analyseur de diamètre aérodynamique (APS) et d'un impacteur en cascade [114]. En 1999, Kerminen et al. [115] ont quant à eux employé un analyseur de mobilité électrique des particules (SMPS [116]) et un impacteur en cascade pour déterminer la masse volumique effective des particules. Bien que plusieurs méthodes pour obtenir la masse volumique effective des particules aient été développées auparavant, aucune n'est assez rapide pour donner une mesure en temps réel, sachant que connaître les variations de la masse volumique effective des particules en temps réel serait très utile pour la surveillance des processus industriels et les mesures de gaz d'échappement des moteurs diesel.

En 2002, McMurry et al. ont décrit une nouvelle technique pour mesurer la relation entre la mobilité électrique et la masse des particules [117]. La méthode implique en premier lieu la sélection des particules selon leur mobilité électrique à l'aide d'un DMA et ensuite la mesure de leur masse via un APM (Aerosol Particle Mass Analyzer), développé par Ehara en 1996 [118]. Pour les particules sphériques, ce couplage permet de déterminer directement la masse volumique des particules. Pour les particules non sphériques, bien que la masse volumique effective ne puisse pas être obtenue directement, ces mesures fournissent des informations permettant son calcul. Cette méthode a été utilisée par Park et al., en 2003, pour déterminer la masse volumique effective des particules diesel [119]. Ku et al. [120], en 2006, ont utilisé ce couplage pour déterminer les propriétés structurales des nanofibres de graphite pour une étude toxicologique. En 2012, Ku et Kulkarni [121], ont comparé cette technique à trois autres, avec pour objectif la mesure de la surface des particules. En 2012, Liu et al. ont employé le couplage DMA-APM pour connaître la masse volumique des particules et ensuite déterminer leur porosité [122].

Finalement, en 2013 Charvet et al. ont déterminé la masse volumique effective de particules sphériques de Di-Ethyl-Hexyl-Sebacate afin de valider un protocole opératoire, employé pour déterminer la valeur de la masse volumique effective pour des particules nanostructurées de constantan, cuivre, graphite, fer, argent et titanium et des agglomérats de Zn/Al, issus de fumées de métallisation [123, 124]. Bien que les expériences puissent être longues, cette technique est assez simple à mettre en place car, contrairement au couplage DMA-ELPI, elle ne nécessite pas de dilution de l'aérosol après le DMA étant donné que les deux appareils fonctionnent au même débit.

Afin de connaître les caractéristiques des particules employées au cours de notre étude (cuivre, graphite, polyvinyle acétate (PVAc) et fumées de métallisation), nous avons utilisé le couplage DMA-APM pour déterminer leur masse volumique effective et disposer de cette information pour la conversion du diamètre aérodynamique des particules en diamètre équivalent en mobilité électrique et ainsi pouvoir comparer les distributions granulométriques obtenues par les différents appareils de mesure. De plus, cette caractérisation des particules nous sera également utile pour le calcul du temps de relaxation; paramètre qui intervient lors de la collecte de particules par voie liquide, à travers les mécanismes de sédimentation et d'impaction inertielle (cf. Équations 3.14 et 3.15 de la section 3.1.2).

### 2.2.1 Détermination de la masse volumique effective des aérosols nanostructurés

Le banc d'expériences DEAN (Densité Effective des Aérosols Nanométriques) schématisé sur la figure 2.4 est constitué de 4 parties.

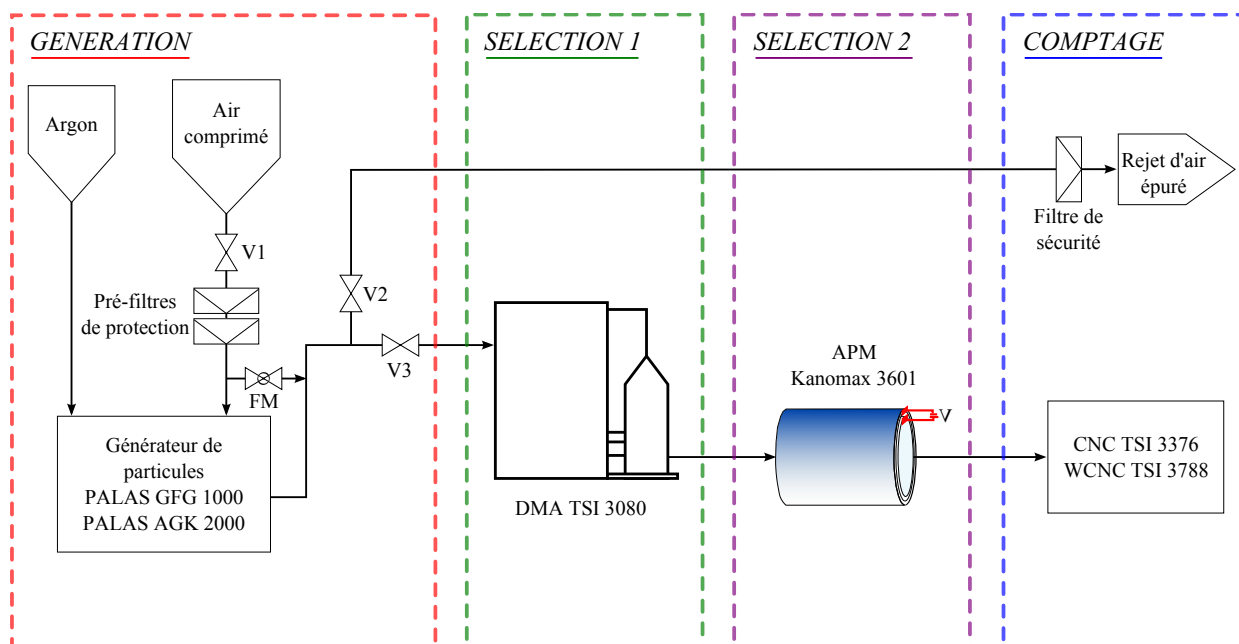


FIGURE 2.4 — Schéma du banc d'expériences DEAN.

La **génération** des particules ultrafines solides polydispersées de diamètre inférieur au micromètre est réalisée par deux voies: soit sous courant d'argon par un générateur PALAS GFG 1000, lequel permet de produire des nanoparticules solides polydispersées de diamètre compris entre 5 et 20 nm pour les électrodes de cuivre (Cu) et entre 20 et 400 nm pour les électrodes de graphite (C); soit par la nébulisation d'une solution de polyvinyle acétate (PVAc) à travers le générateur PALAS AGK 2000 afin d'obtenir des particules dont la taille est comprise entre 11 et 1000 nm de diamètre. Une **première sélection** des nanoparticules est réalisée par un analyseur de mobilité électrique (DMA TSI 3080 avec une source radioactive) lequel classe les particules selon leur diamètre équivalent en mobilité électrique. Ensuite l'aérosol mono-dispersé en termes de mobilité électrique est soumis à une **deuxième sélection**, laquelle est effectuée par un analyseur de masse des particules (APM, Kanomax 3601). A la sortie de ce second appareil, les particules possèdent donc une même masse et une même mobilité électrique. Leur concentration en nombre est ensuite mesurée par un compteur de noyaux de condensation (CPC TSI 3776 ou WCPC TSI 3788) (cf. Annexe B.2).

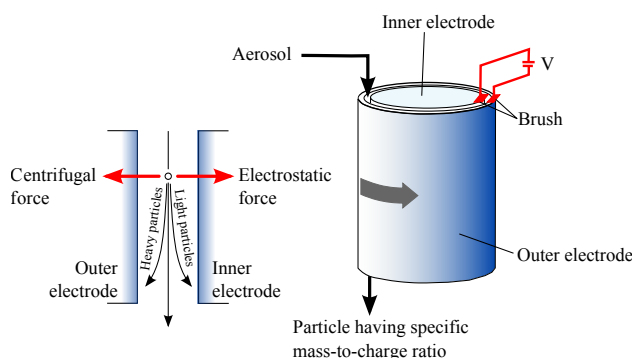


FIGURE 2.5 — Principe du fonctionnement de l'analyseur de masse des particules APM 3601.

L'analyseur de masse des aérosols (APM, Kanomax 3601) classe les particules de l'aérosol en fonction du ratio masse/charge. Le principe de fonctionnement de l'APM, développé par Ehara et al. en

1996 [118], est illustré dans la figure 2.5. Les particules de l'aérosol, préalablement sélectionnées dans le DMA (et donc chargées), sont introduites dans l'espace annulaire entre deux électrodes cylindriques coaxiales de rayon  $r_1$  égal à 24 mm pour le cylindre interne et  $r_2$  égal à 25 mm pour l'externe. Les deux cylindres tournent à la même vitesse angulaire ( $\omega$ ) autour de leur axe. Les particules présentes dans l'espace annulaire sont ainsi soumises à une force centrifuge due à la rotation des cylindres et à une force électrostatique créée par la tension appliquée entre les deux électrodes. Seules les particules pour lesquelles ces deux forces sont en équilibre vont traverser toute la longueur (100 mm) inter-électrode et vont sortir de l'espace annulaire.

La première étape du protocole de mesure de la masse volumique effective consiste à amener les particules préalablement générées à un état de charge connu, appelé équilibre de Boltzmann (équilibre de charges avec des ions bipolaires) à l'aide d'une source de neutralisation. Cette source peut être à rayons X (TSI 3087) ou une source radioactive  $^{85}\text{Kr}$  (TSI 3077). Cet équilibre de Boltzmann peut être atteint, au sein de l'aérosol, par deux processus compétitifs [13]:

- les particules préalablement chargées vont progressivement perdre leur charge à mesure que les ions s'y fixent sous l'action de la force électrostatique et de l'agitation thermique.
- les particules de l'aérosol initialement neutres vont acquérir une certaine charge.

D'après l'équilibre de Boltzmann, qui traduit la fraction de particules d'une taille donnée portant  $n$  charges élémentaires, plus le diamètre de particule  $d_p$  diminue, plus la fraction de particules neutres ( $fN$ ) augmente, comme le montre la figure 2.6 [13].

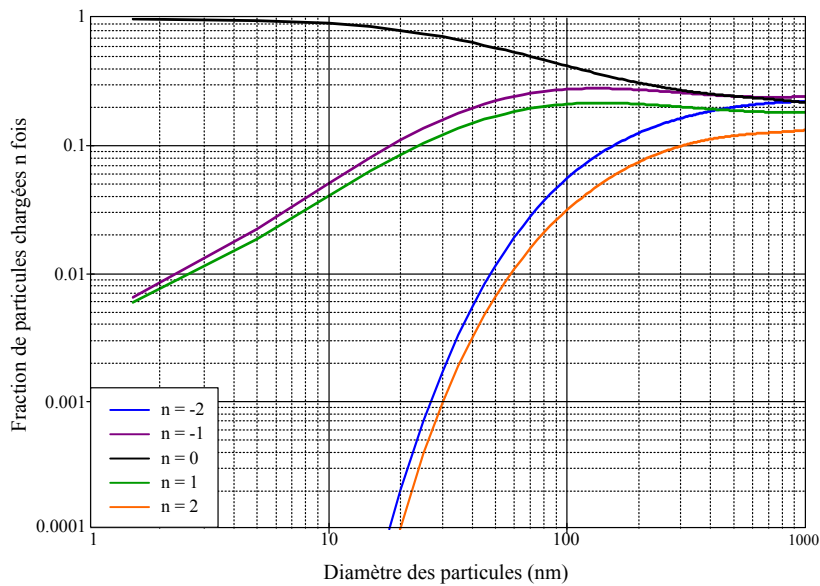
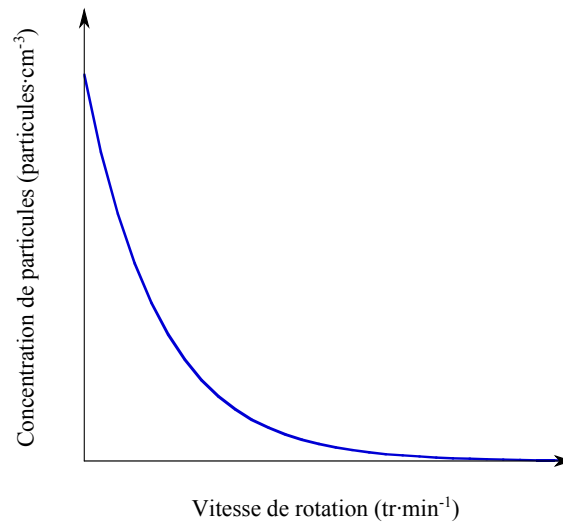


FIGURE 2.6 – Distribution des charges des particules d'un aérosol à l'équilibre de Boltzmann.

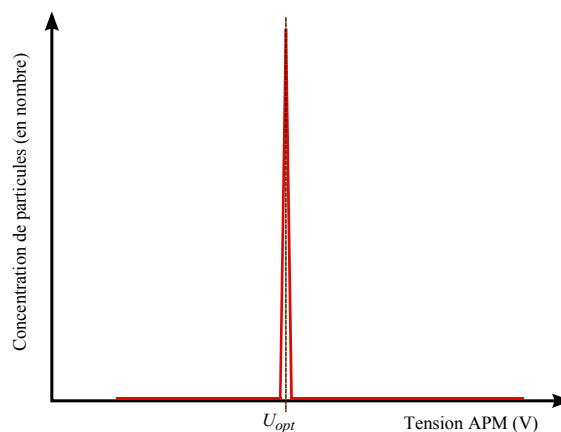
L'aérosol préalablement « neutralisé » rentre dans le DMA où les particules sont classifiées selon leur diamètre de mobilité électrique. La vitesse de rotation de l'APM est augmentée graduellement (sans appliquer de tension entre les électrodes) jusqu'à ce que la concentration des particules à la sortie de l'APM ( $C_{sAPM}$ ) soit nulle (cf. Figure 2.7).



**FIGURE 2.7** – Variation de la concentration en particules en fonction de la vitesse de rotation des électrodes de l’APM, pour un diamètre de particule donné.

Une fois sélectionnée, cette vitesse de rotation est maintenue constante et une augmentation progressive de la tension entre les électrodes est réalisée. Les particules traversant l’espace inter-électrode vont être alors soumises aux forces centrifuge ( $F_c$ ) et électrostatique ( $F_{el}$ ), qui agissent en sens opposé. La concentration des particules (en nombre) est obtenue par un CNC, pour chaque tension appliquée.

La courbe représentant la concentration en nombre à la sortie du couplage DMA–APM en fonction de la tension appliquée entre les électrodes de l’APM, peut être utilisée pour déterminer la tension optimale ( $U_{opt}$ ) pour une vitesse de rotation sélectionnée (cf. Figure 2.8). Quand la force centrifuge excède la force électrostatique ( $U < U_{opt}$ ), les particules sont collectées sur l’électrode externe, tandis que quand la force électrostatique excède la force centrifuge ( $U > U_{opt}$ ), les particules sont collectées sur l’électrode interne [118]; en conséquence, seules les particules pour lesquelles les forces centrifuge et électrostatique sont en équilibre sortiront de l’appareil. Ainsi, l’aérosol à la sortie de l’APM est constitué de particules chargées de masse et mobilité électrique connues.



**FIGURE 2.8** – Concentration en nombre de particules en fonction de la tension appliquée dans l’APM.

La masse des particules sélectionnées à la sortie de l'APM peut être déterminée à partir de l'équilibre entre les forces centrifuge et électrostatique,

$$F_c = m_a \cdot r_c \cdot \omega^2 \quad (2.8)$$

$$F_{el} = n \cdot e \cdot E \quad (2.9)$$

$$F_c = F_{el} \quad (2.10)$$

$$m_a \cdot r_c \cdot \omega^2 = n \cdot e \cdot E = \frac{n \cdot e \cdot U_{opt}}{r_c \cdot \ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)} \quad (2.11)$$

Avec,  $m_a$  la masse de l'agglomérat,  $E$  le champ électrique et  $r_c = (r_1 + r_2)/2$  le rayon central. Si on considère que la charge électrique des particules ( $q = n \cdot e$  avec  $n$  le nombre de charges par particule, et  $e$  la charge élémentaire), est connue, alors l'APM travaille comme un classifieur de masse des particules. La masse de l'agglomérat de particules,  $m_a$ , est dérivée de l'équilibre des forces, ainsi,

$$m_a = \frac{q \cdot U_{opt}}{r_c^2 \cdot \omega^2 \cdot \ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)} \quad (2.12)$$

Connaissant la masse de l'agglomérat et son diamètre équivalent en mobilité électrique (sélectionné dans le DMA), la masse volumique effective ( $\rho_e$ ) peut ensuite être déterminée [125] selon l'équation 2.1.

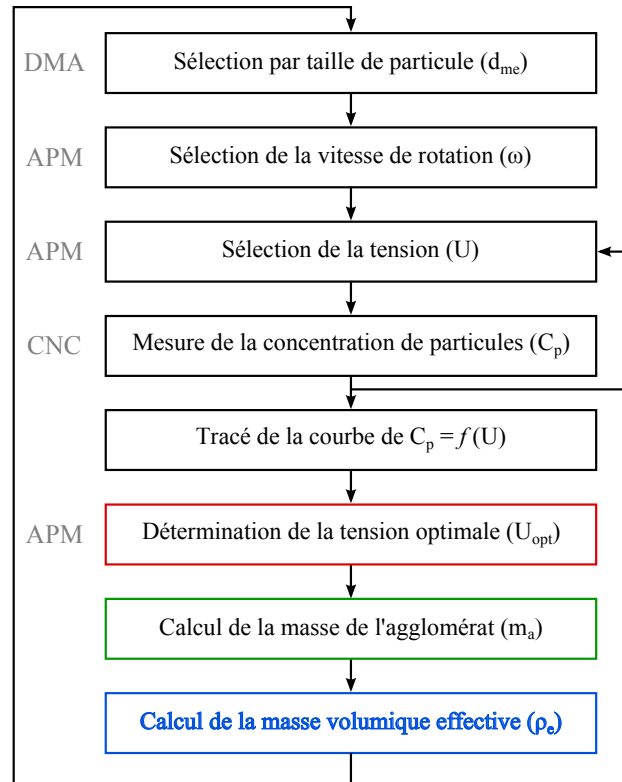


FIGURE 2.9 — Schéma du protocole opératoire pour la détermination de la masse volumique effective des particules.



La figure 2.9 schématise le protocole opératoire et permet d'observer clairement chaque étape de l'expérience.

### 2.2.2 Résultats

Afin de déterminer la masse volumique effective des aérosols utilisés tout au long de cette étude, nous avons appliqué ce protocole à des aérosols constitués d'agglomérats de graphite et de polyvinyle acétate. Les résultats concernant les agglomérats de cuivre et de Zn/Al (particules issus des fumées de métallisation) sont issus d'expériences réalisées antérieurement au sein du laboratoire.

#### 2.2.2.1 Masse volumique effective de l'aérosol de graphite

Conformément au protocole opératoire décrit précédemment, pour chaque diamètre de particules sélectionné au sein du DMA, nous avons déterminé la vitesse de rotation de l'APM pour laquelle la concentration de particules devient nulle ( $C_{sAPM} = 0$ ) (cf. Tableau 2.4).

**Tableau 2.4** – Vitesses optimales de rotation de l'APM selon le diamètre équivalent en mobilité électrique des agglomérats de graphite.

| Diamètre équivalent en mobilité électrique ( $d_{me}$ ) (nm) | 80     | 100    | 120    | 150    | 200    | 300    | 400    |
|--------------------------------------------------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| Vitesse de rotation ( $\text{tr} \cdot \text{min}^{-1}$ )    | 14 500 | 14 200 | 14 000 | 13 500 | 12 700 | 11 800 | 11 000 |

La décantation centrifuge des particules étant liée à leur masse et donc à leur taille, il n'est pas surprenant d'observer une diminution de la vitesse de rotation optimale avec l'augmentation de la taille des particules.

Une fois déterminée la vitesse de rotation de travail pour un diamètre de particules donné, nous augmentons progressivement la tension appliquée entre les électrodes de l'APM et réalisons une mesure de la concentration en particules pour chaque tension. La figure 2.10 illustre la distribution des particules de diamètre équivalent en mobilité électrique égal à 100 nm selon la tension appliquée entre les électrodes de l'APM. Il est important de noter que pour chaque tension, la concentration est mesurée durant environ une minute et que par conséquent chaque point correspond à la moyenne d'une soixantaine de concentrations particulaires.

Nous pouvons observer une certaine dispersion des concentrations à la sortie de l'APM comparativement à la théorie (cf. figure 2.8). En effet, nous ne devrions observer des particules à la sortie de l'APM que pour une seule et même tension (en fait pour un seul couple tension/vitesse de rotation). Cette écart peut s'expliquer par la fonction de transfert du DMA [106] qui conduit à sélectionner non pas uniquement des particules de 100 nm mais une distribution de particules centrée sur 100 nm et avec un très faible écart-type. De plus, l'APM possède lui aussi une fonction de transfert notamment due au fait que l'ensemble des particules ne sont pas injectées précisément au centre de l'espace inter-annulaire [126]. Par conséquent, l'association DMA-APM permet de sélectionner une distribution de masse et non une seule et unique masse d'agglomérat.

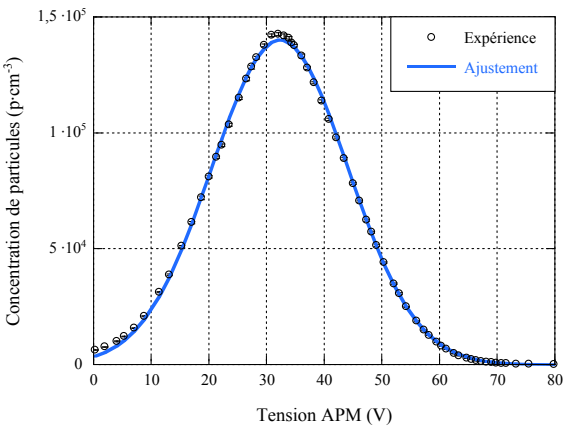


FIGURE 2.10 – Concentration en nombre de particules de graphite de diamètre équivalent en mobilité électrique de 100 nm en fonction de la tension appliquée dans l’APM.

La tension optimale est définie comme la médiane de la loi normale d’ajustement des données expérimentales, i.e. la tension pour laquelle un maximum de particules quitte l’APM. Cette procédure est appliquée à différents diamètres équivalents en mobilité électrique (cf. Tableau 2.5).

Tableau 2.5 – Tensions optimales de l’APM selon le diamètre équivalent en mobilité électrique des agglomérats de graphite.

| Diamètre équivalent en mobilité électrique (nm)           | 80     | 100    | 120    | 150    | 200     | 300     | 400     |
|-----------------------------------------------------------|--------|--------|--------|--------|---------|---------|---------|
| Vitesse de rotation ( $\text{tr} \cdot \text{min}^{-1}$ ) | 14 500 | 14 200 | 14 000 | 13 500 | 12 700  | 11 800  | 11 000  |
| Tension optimale (V)                                      | 20,970 | 32,311 | 46,381 | 67,885 | 106,468 | 194,875 | 275,416 |

Les valeurs de la tension optimale, obtenues pour chaque diamètre de mobilité électrique, ont permis de calculer la masse volumique effective des agglomérats de graphite (selon les équations 2.1 et 2.12) et de les comparer aux valeurs théoriques du matériau. Les résultats sont illustrés par la figure 2.11.

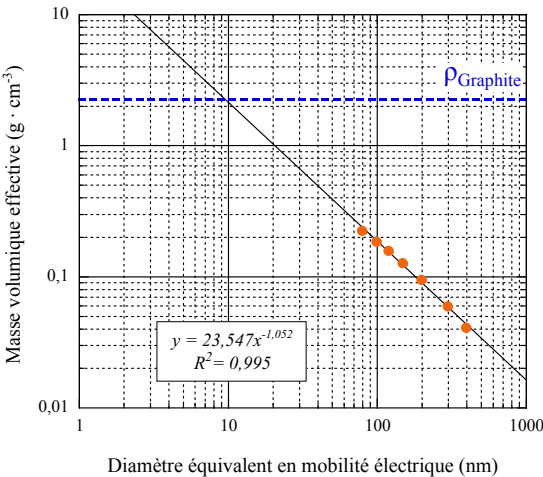


FIGURE 2.11 – Masse volumique effective en fonction du diamètre équivalent en mobilité électrique pour les particules de graphite.

Ce graphique de la masse volumique effective des particules de graphite en fonction du diamètre de mobilité met en évidence une masse volumique effective très nettement inférieure à la masse volumique du graphite ( $2250 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ). A partir des définitions des différentes masses volumiques décrites auparavant, la faible valeur de la masse volumique effective par rapport à celle du matériau s’explique par la présence de

porosités (ouvertes) dans les agglomérats. De plus, à partir de ces résultats il est possible de remonter au diamètre des particules primaires ( $d_{pp}$ ) composant les agglomérats. En effet, ces particules primaires étant considérées comme sphériques et non poreuses, la masse volumique effective égalera la masse volumique du matériau.

Ainsi, le diamètre des particules primaires des agglomérats de graphite est de 9,3 nm. Afin de confirmer la relation liant la masse volumique au diamètre des particules primaires ( $g \cdot cm^{-3}$  avec  $d_{me}$  en nm) de graphite nous l'avons comparé aux résultats de Charvet et al. [123] (cf. Tableau 2.6) qui s'avèrent très similaires. L'écart peut s'expliquer par l'extrapolation de la fonction liant le diamètre des particules à la masse volumique effective vers des diamètres très faibles

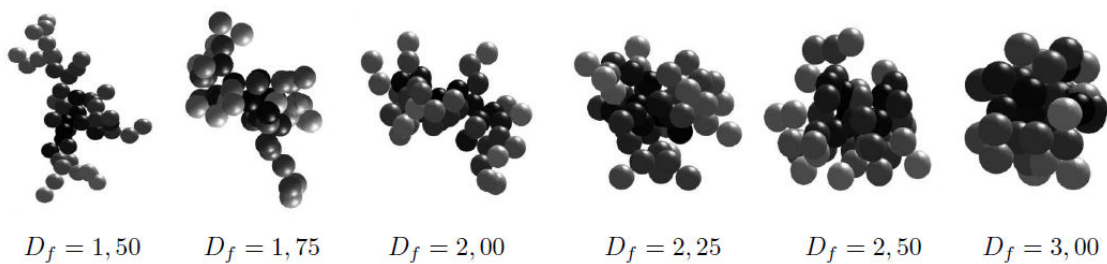
**Tableau 2.6** – Comparaison de la masse volumique effective et des diamètres des particules primaires de graphite avec des valeurs de la littérature.

|                      | Masse volumique effective ( $g \cdot cm^{-3}$ ) | Diamètre des particules primaires (nm) |
|----------------------|-------------------------------------------------|----------------------------------------|
| Ce travail           | $\rho_e = 23,547 \cdot d_{me}^{-1,052}$         | 9,3                                    |
| Charvet et al. [123] | $\rho_e = 20,135 \cdot d_{me}^{-1,020}$         | 8,6                                    |

La masse volumique effective peut également s'exprimer de la façon suivante :

$$\rho_e = \frac{6 \cdot k_m}{\pi \cdot d_{pp}^{D_m-3}} \cdot d_{me}^{D_m} \quad (2.13)$$

Avec  $k_m$  un préfacteur fractal et  $D_m$  la dimension fractale qui permet de rendre compte de la morphologie de l'agglomérat (Shapiro et al. 2012 [127]). Le coefficient  $D_m$  obtenu ici (égal à 2) est caractéristique d'agglomérats relativement « ouverts » (cf. Figure 2.12 [128]) et est similaire aux résultats compilés par Sorensen [129] dans sa revue de la littérature; celui-ci mettant en évidence un « mass-mobility exponent »<sup>d</sup> proche de 2,2 pour les agrégats en régime intermédiaire ( $0,1 < Kn < 10$ , i.e. approximativement  $10 < d_p < 1000$ ).



**FIGURE 2.12** – Morphologie des particules nanostructurées selon leur dimension fractale [128].

### 2.2.2.2 Masse volumique effective de l'aérosol de PVAc

A présent, nous nous intéressons à la détermination de la masse volumique effective des particules de PVAc. Dans un premier temps, nous déterminons la vitesse optimale de rotation (i.e. la vitesse angulaire pour laquelle  $C_{sAPM} = 0$ ) pour chaque diamètre de particule sélectionnée dans le DMA. Le tableau 2.7 met en évidence, comme pour les agglomérats de graphite, une vitesse de rotation qui diminue avec l'augmentation de la taille des particules.

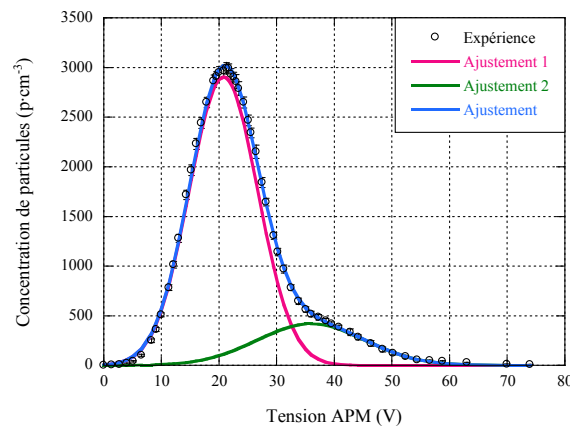
d. A noter que Sorensen (2011) préconise l'emploi du terme « mass-mobility exponent », étant donné que par définition la dimension fractale lie la masse de l'agglomérat à son diamètre de giration et non à son diamètre équivalent en mobilité électrique.

**Tableau 2.7** – Vitesses optimales de rotation de l'APM selon le diamètre équivalent en mobilité électrique des particules de PVAc.

| Diamètre équivalent en mobilité électrique (nm)           | 35   | 50   | 75   | 100  | 130  | 150  | 200  | 300  |
|-----------------------------------------------------------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| Vitesse de rotation ( $\text{tr} \cdot \text{min}^{-1}$ ) | 8500 | 8000 | 6500 | 4500 | 4100 | 3500 | 3000 | 2500 |

Par la suite, cette vitesse angulaire optimale de l'APM est maintenue constante et l'augmentation progressive de la tension appliquée permet d'obtenir la figure suivante (ici pour des particules de 100 nm de diamètre équivalent en mobilité électrique). Contrairement aux agglomérats de graphite, l'évolution de la concentration en particules de PVAc à la sortie de l'APM en fonction de la tension ne suit pas une loi normale. Néanmoins, une déconvolution des données obtenues permet de mettre en évidence la présence de deux pics et donc de deux tensions optimales lors de cette expérience (cf. Figure 2.13).

Ces différents pics, ajustés par des lois normales, sont attribués aux états de charge des particules sélectionnées dans le DMA. En effet après passage dans la source de neutralisation, si l'aérosol a une charge électrique globalement neutre, il est constitué d'un mélange de particules neutres et chargées: mono-chargées ( $n = 1$ ), bi-chargées ( $n = 2$ ), tri-chargées ( $n = 3$ ), etc. (cf. Figure 2.6). Le DMA sélectionnant les particules chargées en fonction de leur mobilité électrique, les particules en sortie de l'appareil seront majoritairement mono-chargées et de 100 nm de diamètre, mais des particules multi-chargées de même mobilité électrique et de diamètre supérieur peuvent également être présentes dans cet aérosol. Ce comportement a également été observé pour des particules de DEHS, par Charvet et al. [124].

**FIGURE 2.13** – Concentration en nombre des particules de PVAc de diamètre équivalent en mobilité électrique de 100 nm en fonction de la tension appliquée dans l'APM.

Pour confirmer l'hypothèse d'une présence de particules multi-chargées, des calculs ont été menés afin d'obtenir les tensions optimales théoriques ( $U_{opt,T}$ ) des particules multi-chargées et les comparer aux valeurs expérimentales issues de la déconvolution des différents pics. Pour ce faire, nous savons que toutes les particules quittant le DMA ont la même mobilité électrique ; propriété qui dépend notamment de la viscosité du gaz porteur ( $\mu_g$ ), du diamètre des particules ( $d_p$ ) et du facteur de correction de Cunningham ( $Cu$ ),

$$Z = \frac{n \cdot e \cdot Cu}{3 \cdot \pi \cdot \mu_g \cdot d_p} \quad (2.14)$$

Afin de déterminer le diamètre des particules de même mobilité électrique ( $Z$ ) mais portant plus d'une charge élémentaire, un calcul par itérations successives a été utilisé. Ainsi, la première ligne du tableau 2.8 présente les diamètres des particules multi-chargées de PVAc ayant la même mobilité électrique qu'une

particule mono-chargée de 100 nm de diamètre équivalent en mobilité électrique. Une fois les diamètres des particules mono-, bi-, tri- et quadri-chargées, calculés, nous utilisons la masse volumique du matériau (ici  $1 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$  pour des particules de PVAc) pour déterminer la masse de la particule (cf. troisième ligne du tableau 2.8)

$$m_{a,T} = \frac{\pi \cdot d_p^3}{6} \cdot \rho_p \quad (2.15)$$

Ensuite, à partir des valeurs des rayons caractéristiques de l'APM ( $r_c$ ,  $r_1$  et  $r_2$ ), de la vitesse angulaire obtenue expérimentalement pour les particules de 100 nm de diamètre équivalent en mobilité électrique, de la masse de l'agglomérat ( $m_{a,T}$ ) et de son nombre de charges élémentaires, la valeur de la tension optimale pour les particules multi-chargées peut être calculée ainsi,

$$U_{opt,T} = \frac{m_{a,T} \cdot r_c^2 \cdot (2 \cdot \pi \cdot \omega)^2 \cdot \ln(r_2/r_1)}{n \cdot e} \quad (2.16)$$

Les résultats permettent d'observer que pour les particules de PVAc de 100 nm de diamètre équivalent, les tensions optimales sont respectivement de 18 V, 31 V, 45 V et 60 V pour les particules mono-chargées, bi-chargées, tri-chargées et quadri-chargées (cf. Tableau 2.8). Ces tensions optimales théoriques sont relativement proches des valeurs expérimentales obtenues (cf. Figure 2.13) et permettent de valider la présence de particules bi-chargées.

**Tableau 2.8** – Diamètre, masse et tension optimale des particules multi-chargées ayant une mobilité électrique identique à une particule de 100 nm de diamètre équivalent en mobilité électrique.

|                                                                 | Nombre de charges élémentaires |           |           |           |
|-----------------------------------------------------------------|--------------------------------|-----------|-----------|-----------|
|                                                                 | 1                              | 2         | 3         | 4         |
| $d_p$ (nm)                                                      | 100,00                         | 151,67    | 196,48    | 238,14    |
| $Z$ ( $\mu\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{V}^{-1}$ ) | 26 489,11                      | 26 489,11 | 26 489,11 | 26 489,11 |
| $m_{a,T}$ (fg)                                                  | 0,52                           | 1,83      | 3,97      | 7,07      |
| $U_{opt,T}$ (V)                                                 | 17,78                          | 31,03     | 44,96     | 60,02     |
| $U_{opt,exp}$ (V)                                               | 19,86                          | 32,99     | —         | —         |

Le léger écart entre valeurs théoriques et expérimentales s'explique par les incertitudes de mesures et sans doute en partie par l'utilisation de la valeur de la masse volumique du matériau qui, dans le cas des agglomérats non-sphériques, diffère de la masse volumique effective. A noter que des particules tri- voire quadri-chargées sont sans doute également présentes en sortie d'APM mais à des concentrations tellement faibles qu'elles n'apparaissent pas lors du tracé de la concentration en fonction de la tension appliquée entre les électrodes de l'APM.

Ce protocole de calculs a été appliqué à l'ensemble des diamètres de particules sélectionnés de façon à vérifier que la tension optimale déterminée expérimentalement correspond bien au pic des particules mono-chargées et donc que l'on peut utiliser une valeur de  $n$  (nombre de charges élémentaires) égale à l'unité lors du calcul de la masse de la particule (cf. Equation 2.12).

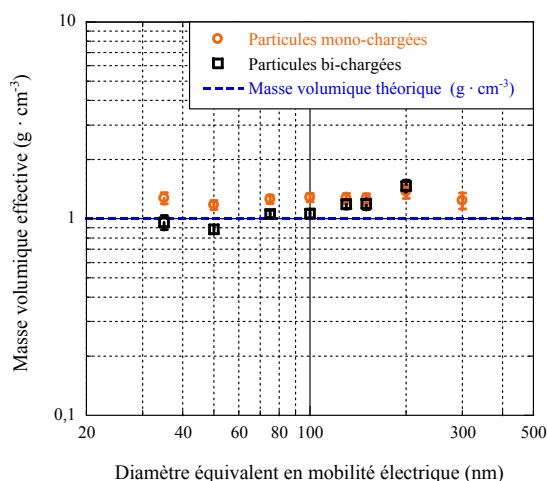


FIGURE 2.14 — Masse volumique effective en fonction du diamètre équivalent en mobilité électrique pour les particules de PVAc.

Après calculs, les masses volumiques effectives des particules de PVAc (cf. Figure 2.14) obtenues sont relativement constantes et proches de la valeur de la masse volumique du matériau quel que soit le diamètre de mobilité électrique. Cette observation permet de conclure sur la sphéricité des particules de PVAc, sphéricité confirmée par des photos prises à l'aide d'un microscope électronique en transmission (cf. Figure 2.15). De plus, les valeurs théoriques et expérimentales de la tension optimale pour chaque diamètre sont aussi très similaires, ce qui confirme la sphéricité des agglomérats de PVAc (cf. Tableau 2.8). Ce cliché permet néanmoins d'observer que les particules de PVAc sont en réalité des agglomérats sphériques, composés de particules sphériques. Ces particules sphériques étant elles-mêmes issus de l'agglomération de particules primaires sphériques.

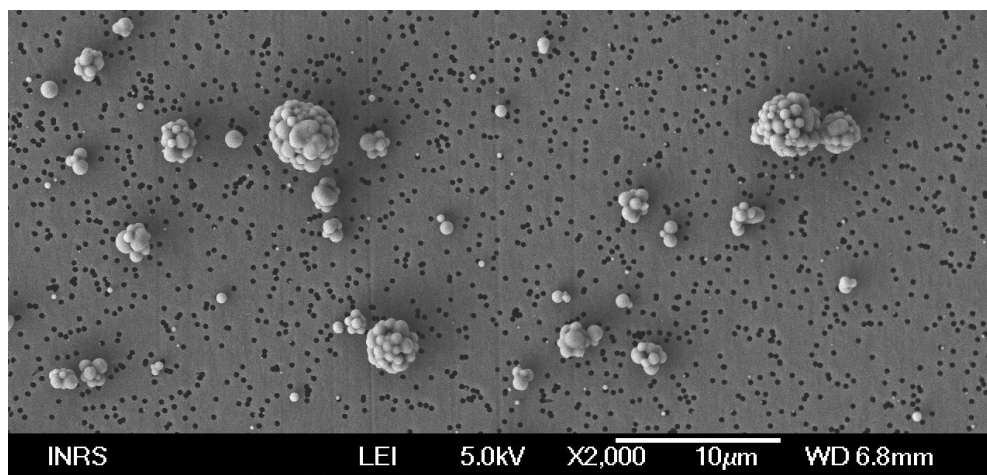


FIGURE 2.15 — Photo au microscope électronique en transmission des agglomérats de polyvinyle acétate.

Du fait de la sphéricité des agglomérats de PVAc, nous nous attendions à des valeurs de la masse volumique effective inférieures à celles du matériau d'un facteur correspondant à la porosité interne des agglomérats. Les valeurs de densité effective légèrement supérieures à la masse volumique du matériau peuvent cependant s'expliquer soit par la présence d'impuretés (sels) lors de la préparation de la solution aqueuse de PVAc, même si l'eau utilisée pour cet effet est filtrée avant d'être utilisée, soit par des impuretés présentes dans le liquide de PVAc concentré.

### 2.2.3 Synthèse

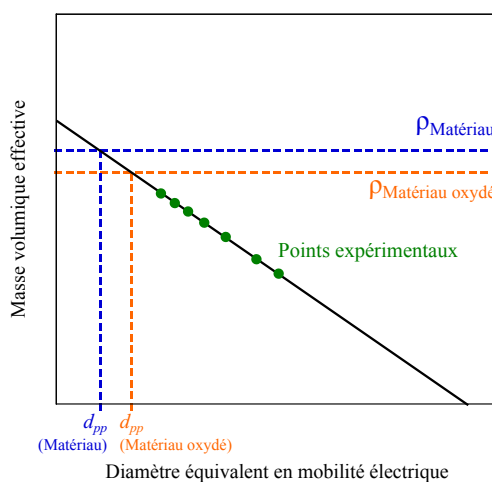
Les précédentes expériences réalisées sur le graphite et le PVAc, nous ont permis de mieux caractériser les aérosols employés lors de cette étude en termes de masse volumique effective. Nous avons pu déterminer la taille des particules primaires composant les agglomérats des différents aérosols (cf. Tableau 2.9).

**Tableau 2.9** – Masse volumique effective ( $\rho_e$ ), masse volumique du matériau ( $\rho_m$ ) et diamètres des particules primaires ( $d_{pp}$ ) des différents aérosols caractérisés.

|                           | $\rho_e$ (g · cm <sup>-3</sup> )        | $\rho_m$ (g · cm <sup>-3</sup> ) | $d_{pp}$ (nm) |
|---------------------------|-----------------------------------------|----------------------------------|---------------|
| <b>Graphite</b>           | $\rho_e = 23,547 \cdot d_{me}^{-1,052}$ | 2,25                             | 9,3           |
| <b>Polyvinyle acétate</b> | $\rho_e = 1,27$                         | 1,00                             | —             |
| <b>Cuivre [124]</b>       | $\rho_e = 15,528 \cdot d_{me}^{-0,826}$ | 8,92                             | 2,0–3,2       |
| <b>Zn/Al [123]</b>        | $\rho_e = 48,164 \cdot d_{me}^{-0,941}$ | 5,70                             | 9,7           |

Le diamètre équivalent en mobilité électrique est exprimé en nm dans les expressions de la masse volumique effective.

A noter que pour les particules de cuivre, nous obtenons une gamme de  $d_{pp}$ . Ces deux tailles extrêmes correspondent au calcul en considérant respectivement la masse volumique du matériau (Cu) et la masse volumique de matériau oxydé ( $Cu_2O$ ) (cf. Figure 2.16).



**FIGURE 2.16** – Schéma de déduction du diamètre des particules primaires à partir de la masse volumique du matériau et de la masse volumique du matériau oxydé.

Ces résultats permettront par la suite la conversion de diamètre aérodynamique en diamètre équivalent en mobilité électrique mais également la conversion de distributions granulométriques en nombre en distributions granulométriques en masse. A titre d'exemple, la figure 2.17 présente la distribution granulométrique en nombre obtenue expérimentalement et celles en masse calculées à partir de la masse volumique effective ( $\rho_e$ ) et la masse volumique du matériau ( $\rho_m$ ) pour les particules issues de fumées de métallisation.



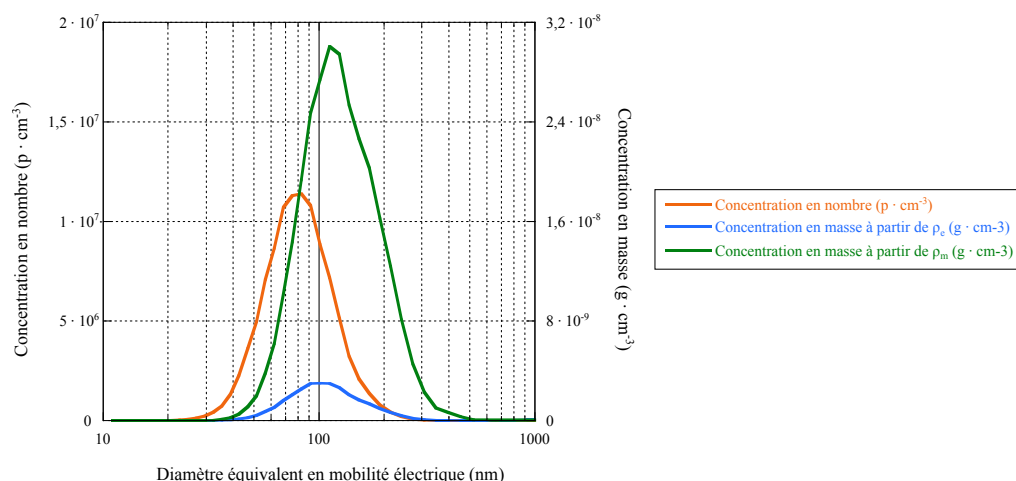


FIGURE 2.17 — Concentration en nombre et en masse (à partir de la masse volumique du matériau et la masse volumique effective) selon la taille de particules, pour l'aérosol de Zn/Al.

Nous pouvons observer que les granulométries en masse calculées à partir de  $\rho_e$  et  $\rho_m$  sont décalées de seulement quelques nanomètres. Par contre, nous observons un écart de concentration très important entre les deux calculs (surestimation de la concentration avec la masse volumique du matériau) d'où l'intérêt de connaître la masse volumique effective (cf. Tableau 2.10).

Tableau 2.10 — Diamètre modal et concentration totale des aérosols, en nombre et en masse (calculées à partir de la masse volumique effective ( $\rho_e$ ) et la masse volumique du matériau ( $\rho_m$ )).

| Type d'aérosol     | En nombre           |                                                   | En masse ( $\rho_e$ ) |                                           | En masse ( $\rho_m$ ) |                                           |
|--------------------|---------------------|---------------------------------------------------|-----------------------|-------------------------------------------|-----------------------|-------------------------------------------|
|                    | $d_{modal}$<br>(nm) | Concentration<br>(particules · cm <sup>-3</sup> ) | $d_{modal}$<br>(nm)   | Concentration<br>(μg · cm <sup>-3</sup> ) | $d_{modal}$<br>(nm)   | Concentration<br>(μg · cm <sup>-3</sup> ) |
| Graphite           | 91,4                | $2,9 \cdot 10^6$                                  | 135,8                 | $3,4 \cdot 10^{-4}$                       | 162,5                 | $6,0 \cdot 10^{-3}$                       |
| Polyvinyle acétate | 56,4                | $3,1 \cdot 10^5$                                  | 111,9                 | $1,3 \cdot 10^{-6}$                       | 109,1                 | $7,6 \cdot 10^{-7}$                       |
| Cuivre             | 8,2                 | $1,2 \cdot 10^6$                                  | 8,8                   | $1,3 \cdot 10^{-6}$                       | 11,8                  | $5,5 \cdot 10^{-6}$                       |
| Zn/Al              | 82,8                | $1,0 \cdot 10^8$                                  | 101,1                 | $2,8 \cdot 10^{-2}$                       | 111,9                 | $2,8 \cdot 10^{-1}$                       |

## 2.3 Charge électrique des particules

La charge électrique d'un aérosol, a beaucoup d'influence sur la mobilité des particules comparativement aux autres propriétés de transport (gravité, diffusion, gradient thermique). Pour les particules fortement chargées, la force électrostatique peut être jusqu'à mille fois plus importante que la force de gravité [13]. Par conséquent, il est nécessaire de connaître la charge des particules d'un aérosol pour pouvoir déterminer son comportement lors de sa collecte, de son transport ou de son dépôt.

Les forces électrostatiques interviennent notamment dans la capture des particules lorsque celles-ci possèdent une charge électrique opposée à leur collecteur. Ce mécanisme permet d'augmenter notablement l'efficacité de filtration des particules qui ne sont pas capturées par les autres mécanismes de collecte (diffusion brownienne, interception directe, impaction inertielle).



Certaines méthodes de dépoussiérage ont ainsi été développées en s'appuyant sur cette propriété. De nombreux auteurs ont notamment étudié la collecte des particules par des filtres à fibres (électret) à travers des études paramétriques [46, 130–135] Kirsch [131]. L'électrofiltration granulaire a également été investiguée tant au niveau théorique entre autres par Kallio et al. [136] et Shapiro et al. [134, 137] qu'au niveau expérimental. Ces études ont notamment étudié l'influence de la charge du lit granulaire (Baker et al. [138]) ou l'influence de la charge des particules (Bémer et al. [139]). Parallèlement, les performances des précipitateurs électrostatiques ont également été analysées, de façon théorique (Ylatalo et al. [140]) mais également expérimentale [141–145].

Puisque la charge des particules est une propriété qui peut avoir une influence sur l'efficacité de collecte de nombreuses techniques de dépoussiérage, il est impératif de déterminer si ce paramètre peut avoir une influence sur l'efficacité de séparation de notre colonne à bulles. Deux méthodes permettant de déterminer le nombre de charges élémentaires par particule, une méthode développée par Brown [146], et une autre dérivée des travaux d'Ouf et Sillon [147], seront décrites et appliquées à nos aérosols de PVAc, cuivre et graphite.

### 2.3.1 Détermination de la charge électrique des aérosols nanométriques

Le banc d'expériences LOCAN (Loi de Charge des Aérosols Nanométriques) (Figure 2.18) employé pour déterminer le nombre de charges élémentaires des particules d'un aérosol est composé de trois parties.

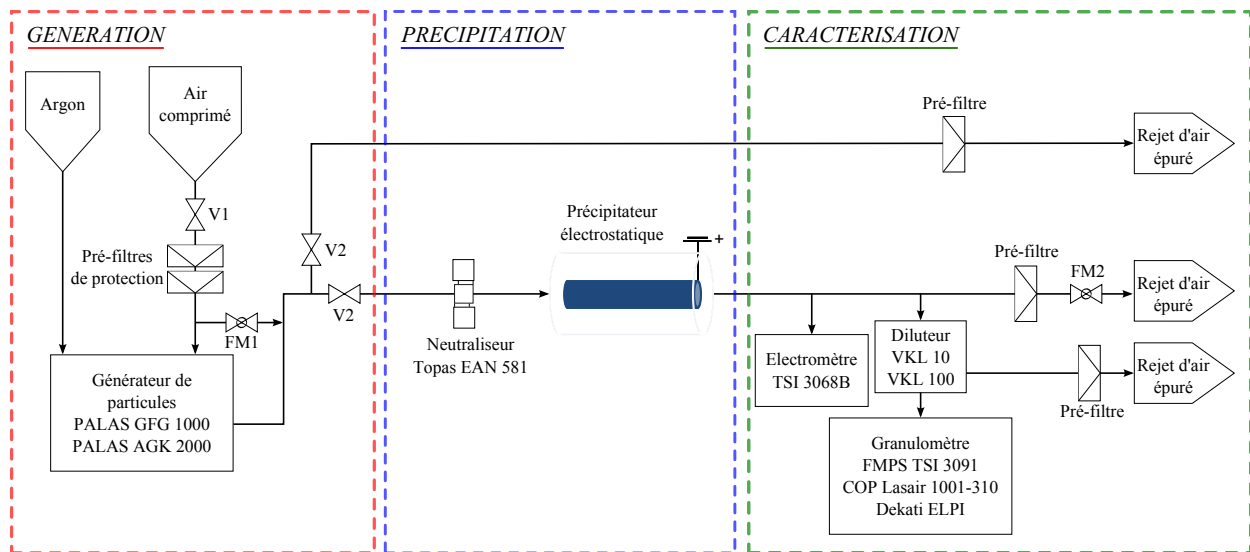


FIGURE 2.18 — Schéma du montage expérimental pour déterminer la loi de charge d'un aérosol.

L'aérosol généré est dirigé vers la zone de **précipitation**, où les particules sont préalablement neutralisées ou chargées (positivement ou négativement) par un générateur d'ions bipolaires à effet corona (Topas EAN 581). Suite à cette étape, les particules pénètrent dans un précipitateur électrostatique connecté à une alimentation haute tension continue, stabilisée, positive et ajustable entre 0 et 7,5 kV. Ce précipitateur électrostatique, fabriqué au laboratoire, est constitué de deux électrodes cylindriques coaxiales. Le diamètre  $d_1$  de l'électrode interne et  $d_2$  de l'électrode externe sont respectivement de 1,5 et 3,5 cm, alors que la longueur  $L$  du précipitateur est égale à 27 cm (cf. Figure 2.19).



FIGURE 2.19 — Principe de fonctionnement du précipitateur électrostatique.

Un précipitateur électrostatique utilise la capacité qu'a une particule à se déplacer dans un champ électrique pour la collecter. Les deux étapes clés sont dans un premier temps, la charge de l'aérosol (à l'aide du Topas EAN 581) puis dans un second temps sa soumission à un champ électrique. Ainsi, seules les particules dont la mobilité électrique est inférieure à une mobilité critique ne seront pas collectées et sortiront du précipitateur [77].

Après passage dans le précipitateur, les particules non retenues entrent dans la zone de **caractérisation** où elles sont échantillonnées et analysées au moyen :

- d'un électromètre TSI 3068B qui mesure la charge globale de l'aérosol,
- d'un compteur optique (COP) (PMS LASAIR 1001 ou 310), couplé à deux diluteurs, (PALAS VKL 10) qui permet de déterminer la concentration en nombre selon le diamètre optique des particules,
- d'un impacteur électrique en cascade à basse pression (ELPI, Electrical Low Pressure Impactor Dekati®) qui mesure un signal électrique directement proportionnel à la concentration en nombre, selon le diamètre aérodynamique des particules,
- d'un analyseur de mobilité électrique FMPS 3091 qui fournit la concentration numérique des particules selon leur diamètre équivalent en mobilité électrique.

Le débit traversant le précipitateur est mesuré par un débitmètre massique (Brooks Instruments, 0 – 50 L · min<sup>-1</sup>) placé à la sortie. Les principes de fonctionnement des instruments sont décrits en détail dans l'annexe B.

### 2.3.2 Protocole expérimental pour la mesure de la loi de charge des particules

Les valeurs de concentration numérique des particules à l'entrée ( $C_{amont}$ ) et à la sortie ( $C_{aval}$ ) du précipitateur sont nécessaires pour déterminer la pénétration ( $P$ ) des particules qui est définie comme le rapport entre la concentration en nombre de particules à la sortie du précipitateur sur celle mesurée à l'entrée. La pénétration correspond donc à la fraction de particules qui n'ont pas été retenues par le précipitateur à une tension donnée (cf. Équation 2.17).

$$P = \frac{C_{aval}}{C_{amont}} \quad (2.17)$$

Le COP et le FMPS sont utilisés en parallèle pour connaître la distribution granulométrique des particules à l'aval du précipitateur à une tension donnée. La concentration des particules en amont n'est pas mesurée directement, mais considérée comme égale à la valeur mesurée en aval pour une tension nulle appliquée au précipitateur. Cette méthode de détermination de la concentration en amont permet de s'affranchir d'éventuels dépôts de particules par diffusion à l'intérieur du précipitateur, dépôts qui pourraient être à l'origine de biais lors du calcul de la pénétration. Le nombre de charges élémentaires d'une particule ( $n$ ), est calculé à partir de l'équation 2.18 [12], qui est fonction de la viscosité dynamique de l'air ( $\mu_g$ ), du diamètre de particules ( $d_p$ ), de la mobilité électrique critique ( $Z_c$ ), de la charge élémentaire ( $e$ ) et du coefficient de Cunningham ( $Cu$ ).

$$n = \frac{3 \cdot \pi \cdot \mu_g \cdot d_p \cdot Z_c}{e \cdot Cu} \quad (2.18)$$

La mobilité électrique critique des particules,  $Z_c$ , sera déterminée grâce à l'équation 2.19 [148], laquelle dépend du débit d'air ( $Q$ ), des paramètres du précipitateur (diamètres et longueur) et de la tension critique des particules ( $U_c$ ).

$$Z_c = \frac{Q}{2 \cdot \pi \cdot L \cdot U_c} \ln\left(\frac{d_2}{d_1}\right) \quad (2.19)$$

La tension critique peut être déduite de la courbe de pénétration des particules en fonction de la tension. Brown (1997) [146] décrit deux méthodes pour déterminer la tension critique, c'est à dire la tension à laquelle une particule d'une mobilité électrique donnée précipitera. Pour cela il a considéré un précipitateur constitué de plaques parallèles dans lequel entre un débit d'air chargé de particules. Sous l'hypothèse d'un régime laminaire entre les plaques et d'une distribution uniforme des particules à l'entrée du précipitateur, une particule chargée suivra une trajectoire donnée en fonction de sa mobilité électrique  $Z$ . Ainsi, la pénétration des particules de l'aérosol est considérée comme une fonction de la mobilité électrique et les particules, quel que soit le signe de leur charge, seront collectées en fonction de la valeur absolue de leur mobilité électrique. Seulement les particules neutres (i.e. possédant une mobilité électrique nulle) traverseront le dispositif avec une efficacité de 100 %. Ainsi, Brown a proposé les méthodes suivantes,

1. Méthode de la mobilité électrique moyenne: la tension critique,  $U_{c1}$ , est donnée par l'intersection entre l'axe des abscisses et la droite tangente à la pénétration à l'origine (tension appliquée égale à zéro). Cette valeur correspond à la tension à laquelle une particule de mobilité électrique moyenne serait collectée dans le précipitateur.
2. Méthode de la mobilité électrique médiane: la tension critique,  $U_{c2}$ , correspond à la valeur de la tension définie à partir de la tangente à la courbe de pénétration dont l'intersection avec l'axe des ordonnées se situe à 50 %, ce qui correspond à la tension à laquelle une particule avec la mobilité électrique médiane précipite. La valeur obtenue peut être supérieure ou inférieure à la moyenne, en fonction de la forme de la distribution.

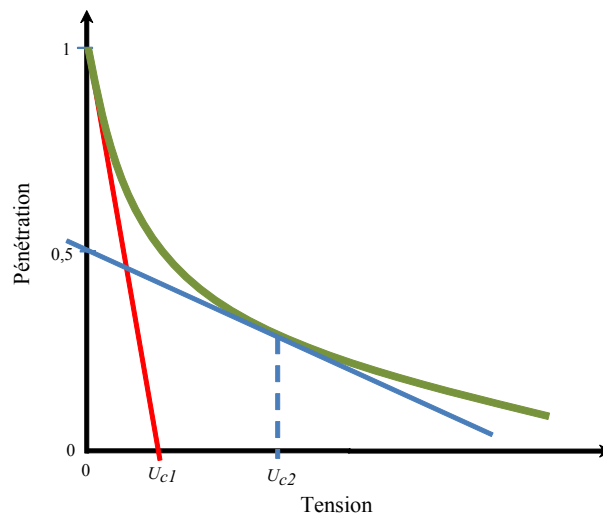


FIGURE 2.20 – Schéma des méthodes d'obtention de la valeur de la tension critique,  $U_c$ .

La figure 2.20 illustre les deux méthodes de détermination de la tension critique. Dans cette étude, seule la méthode de la mobilité électrique moyenne sera utilisée car la déduction d' $U_{c2}$  est sujette à une trop grande imprécision compte tenu des incertitudes des mesures. Ce protocole sera par la suite nommé méthode de la tension critique.

Cette loi de charge obtenue à l'aide du précipitateur sera comparée à celle dérivée de la méthode basée sur l'emploi d'un ELPI (Ouf et Sillon (2009)) [147]. Le banc d'expériences se réduit alors aux zones de génération et de caractérisation. Les aérosols générés sont mesurés deux fois par l'ELPI selon le protocole suivant:

1. Chargeur à effet corona **activé**:

Le chargeur corona de l'ELPI va amener les particules à un état de charge connu avant qu'elles ne pénètrent dans la zone d'impaction. Les particules sont collectées sur les différents étages de l'impacteur en fonction de leur diamètre aérodynamique, et le courant généré par l'ensemble des particules collectées sur chaque étage d'impaction est mesuré. Ce courant étant proportionnel au nombre de particules collectées par impaction, nous obtenons la concentration en nombre de particules selon leur diamètre aérodynamique ( $C_{ELPI}$ ).

$$C_{ELPI} = \frac{\text{Nombre de particules}}{\text{Volume d'échantillonnage}} \quad (2.20)$$

2. Chargeur à effet corona **éteint**:

Les particules, avec leur état de charge naturelle, sont collectées sur chaque étage de l'ELPI. Les valeurs de courant mesuré ( $I_{ELPI}$ ) sur chaque étage sont donc liées directement à la charge des particules.

$$I_{ELPI} = \frac{\text{Charge électrique de particules}}{\text{Temps}} \quad (2.21)$$

A partir de ces deux informations nous pouvons déduire le nombre de charges élémentaires par particule ( $n_{ELPI_{part}}$ ). En effet, le débit de charge électrique des particules est lié directement au nombre de charges élémentaires ( $n_{ELPI}$ ) et à la charge élémentaire ( $e$ ), ainsi,

$$I_{ELPI} = \frac{n_{ELPI} \cdot e}{\text{Temps}} \quad (2.22)$$

Le débit d'échantillonnage de l'ELPI ( $Q_{ELPI}$ ) équivaut au volume d'échantillonnage qui traverse les étages de l'impacteur en fonction du temps.

$$Q_{ELPI} = \frac{\text{Volume d'échantillonnage}}{\text{Temps}} \quad (2.23)$$

En injectant les équations 2.20 et 2.23 dans l'expression 2.22,  $I_{ELPI}$  s'écrit comme suit,

$$I_{ELPI} = \frac{n_{ELPI} \cdot e \cdot Q_{ELPI} \cdot C_{ELPI}}{\text{Nombre de particules}} \quad (2.24)$$

Finalement, nous obtenons une expression nous permettant de déterminer le nombre de charge élémentaires par particule,

$$n_{ELPI_{part}} = \frac{n_{ELPI}}{\text{Nombre de particules}} = \frac{I_{ELPI}}{e \cdot Q_{ELPI} \cdot C_{ELPI}} \quad (2.25)$$

### 2.3.3 Résultats et discussion

Auparavant, des techniques de dépoussiérage ont montré que la charge des particules peut avoir une influence très importante sur l'efficacité de collecte, alors nous nous sommes intéressés à déterminer la charge des particules soumise à une charge électrique très importante, afin d'évaluer une possible influence sur la collecte de particules par une colonne à bulles.

Les lois de charge des aérosols de PVAc, de cuivre et de graphite ont été déterminées dans deux conditions; d'une part, pour les particules à leur charge naturelle et d'autre part après exposition de l'aérosol à un environnement chargé en ions positifs (intensité maximale de 40 fA sur le neutraliseur Topas EAN 581). La charge globale de l'aérosol, mesurée grâce à l'électromètre dans les deux conditions expérimentales, donne des valeurs de  $-460$  fA et de  $+670$  fA pour respectivement les particules naturellement chargées et soumises à un environnement riche en ions positifs.

Au cours des expériences, nous faisons varier la tension appliquée dans le précipitateur électrostatique et relevons, grâce au compteur optique, la concentration fractionnelle de particules (en nombre), notée  $C_{i,j}$  avec  $i$  chaque diamètre de particule et  $j$  chaque tension appliquée. La figure 2.21(a) illustre les paliers de concentration obtenus pour les particules de PVAc soumises à un environnement chargé en ions positifs. De façon à ne pas surcharger le graphique, seuls trois diamètres de particules de PVAc (300, 500 et 700 nm) ont été représentés.

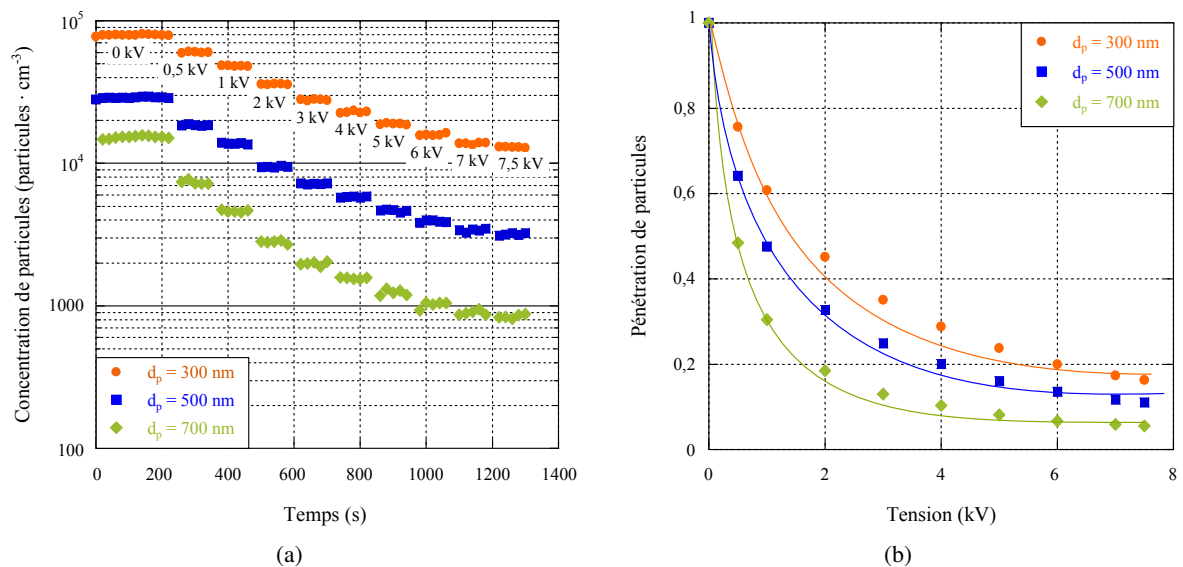


FIGURE 2.21 – Variation de (a) la concentration et de (b) la pénétration des particules selon la tension dans le précipitateur électrostatique.

Le premier palier de concentration ( $C_{i,0}$ ) correspond à la totalité des particules de diamètre  $d_{pi}$  qui sort du précipitateur (i.e. à l'aérosol initial amputé des éventuelles pertes diffusionnelles). Les valeurs de concentration des autres paliers correspondent quant à elles à la quantité de particules non retenues dans l'appareil à la tension appliquée. A partir de ces valeurs de concentrations, nous pouvons calculer la pénétration fractionnelle des particules, selon la tension appliquée dans le précipitateur électrostatique (cf. Équation 2.26 et Figure 2.21(b)).

$$P_{i,j} = \frac{C_{i,j}}{C_{i,0}} \quad (2.26)$$

Pour chaque taille de particule, une diminution de la concentration particulaire et par conséquent de la pénétration est mise en évidence lors de l'augmentation de la tension appliquée au précipitateur. Cela signifie que les particules d'une taille considérée ne possèdent pas toute le même état de charge et que certaines, faiblement chargées, ne sont retenues qu'en présence d'une forte tension électrique. La tension maximale applicable, sans formation d'arcs électriques, étant de 7,5 kV, nous émettons l'hypothèse que les particules non collectées dans le précipitateur à cette tension ne portent pas de charge électrique. Ainsi, les valeurs de pénétration pour la tension égale à 7,5 kV pour chaque diamètre de particules constituent la fraction de particules neutres ( $FN_i = P_{i,7,5}$ ) (cf. Figure 2.22).

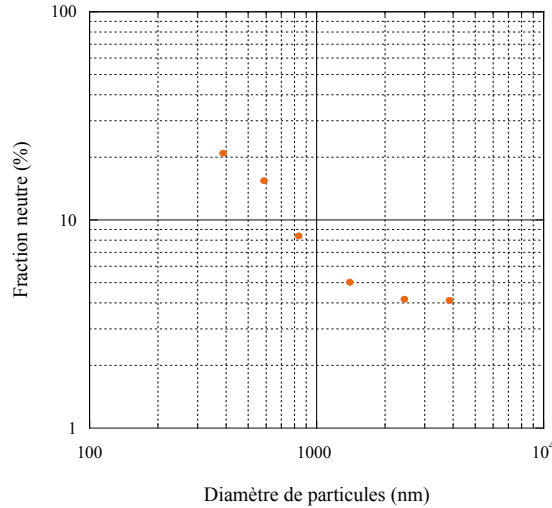


FIGURE 2.22 – Fraction de particules neutres pour l'aérosol de PVAc chargé.

Nous pouvons observer que la fraction de particules neutres augmente avec la diminution de leur taille, ce qui s'explique par la diminution de la surface des particules. En effet, il existe une charge électrique maximale pouvant être acquise par une particule correspondant à un nombre de charges élémentaires compris entre  $1 \cdot 10^5$  et  $5 \cdot 10^5$  pour une particule de  $1 \mu\text{m}$ . Cette charge limite dépend de la taille et de la morphologie de la particule (agglomérats), de sa nature liquide ou solide, de sa polarisabilité [12, 147]. La tendance observée, à savoir une diminution de la fraction de particules neutres avec la taille, est donc similaire à celle de la figure 2.6, qui montre la fraction de particules chargées selon leur diamètre à l'équilibre de Boltzmann. A partir des évolutions de la pénétration en fonction de la tension (cf. Figure 2.21(b)), nous pouvons appliquer la méthode de la mobilité électrique moyenne développée par Brown [146] pour obtenir la valeur de la tension critique ( $U_c$ ), laquelle est utile pour déterminer le nombre de charges élémentaires par particule ( $n_i$ ) (cf. Équations 2.18 et 2.19).

Les résultats obtenus pour les particules de PVAc préalablement chargées positivement (cf. Figure 2.23) montrent que la charge des particules augmente avec le diamètre. Cette évolution était attendue dans la mesure où la surface de contact entre particules et ions est plus importante pour les particules les plus volumineuses. Par ailleurs, cette loi de charge des particules de PVAc obtenue à l'aide du COP (méthode de la tension critique) a été comparée à la loi de charge obtenue par le biais de l'ELPI (méthode ELPI). Nous observons que, dans l'intervalle des diamètres commun aux deux appareils, le nombre de charges élémentaires par particule est très similaire ce qui permet de valider notre protocole de mesure. Cette comparaison entre les deux lois de charge, l'une exprimée en fonction d'un diamètre optique et la seconde en fonction d'un diamètre aérodynamique, est ici rendue possible par le fait que les particules de PVAc sont quasi-sphériques et de densité proche de l'unité.

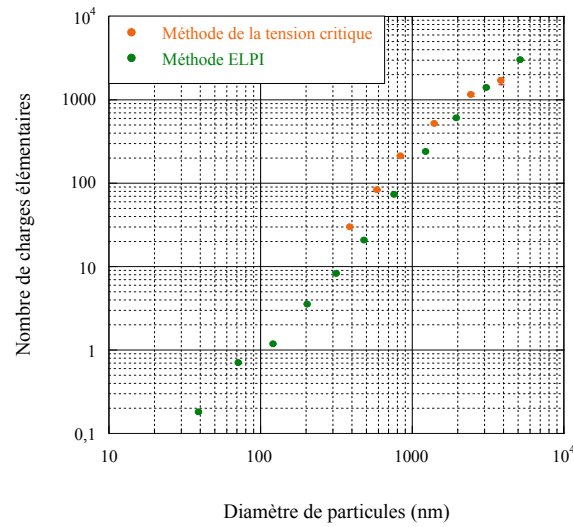


FIGURE 2.23 – Nombre de charges élémentaires par particule selon la méthode de la tension critique et la méthode ELPI.

Les figures précédentes illustrent, pas-à-pas, le protocole de mesure (méthode de la tension critique) employé pour la détermination de la loi de charge d'un aérosol de PVAc chargé positivement. Cette même procédure, validée par la méthode mettant en œuvre l'ELPI, a pu être appliquée aux trois aérosols modèles (graphite, cuivre et PVAc) à leur charge naturelle et après les avoir soumis à un environnement chargé d'ions positifs. La figure 2.24 présente la distribution du nombre de charges élémentaires par particule pour ces trois aérosols et dans les deux conditions de charge.

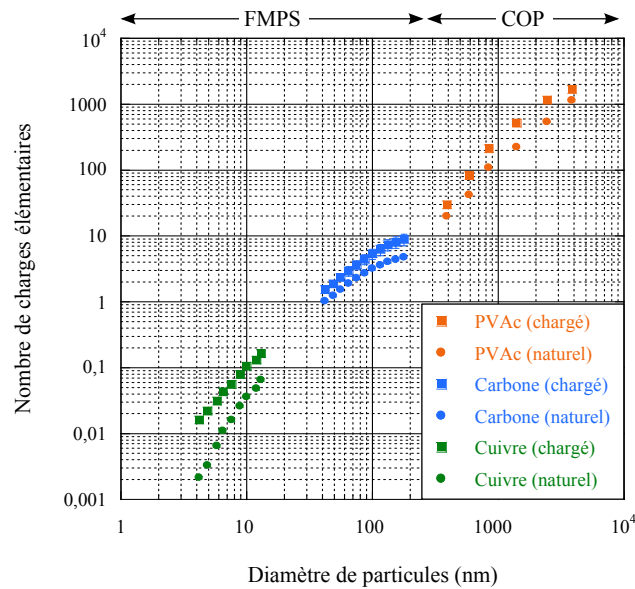


FIGURE 2.24 – Nombre de charges élémentaires pour les aérosols de cuivre, graphite et PVAc, chargés et avec leur charge naturelle.

A partir de ces résultats, nous observons que le nombre de charges élémentaires est proportionnel au diamètre des particules et est d'autant plus important que l'aérosol est soumis à une charge importante. Cette courbe permet de connaître les valeurs des constantes pour la loi de charge de chaque l'aérosol à chaque condition opératoire.

$$n = \exp(b) \cdot d_p^m \quad (2.27)$$

Avec  $b$  l'ordonnée à l'origine,  $m$  la pente de la droite et  $d_p$  le diamètre optique (COP) ou équivalent en mobilité électrique (FMPS) des particules en nanomètres. De plus, la charge moyenne par particule de l'aérosol ( $\bar{n}$ ) peut être déterminée par:

$$\bar{n} = \frac{\sum_{i=0} (Cch_i \cdot n_i)}{\sum_{i=0} Cch_i} \quad (2.28)$$

Avec  $Cch_i$  la concentration fractionnelle de particules chargées, déterminée à partir de la concentration fractionnelle à 0 kV et la fraction de particules neutres,

$$Cch_i = Cch_{i,0} \cdot (1 - FN_i) \quad (2.29)$$

Le tableau 2.11 récapitule les valeurs de la charge élémentaire moyenne et la loi de charge pour chaque aérosol dans son état de charge naturelle et après avoir été exposé à un environnement chargé en ions positifs. Il est important de noter que pour l'aérosol composé de particules issues de fumées de métallisation, l'expérience de détermination du nombre de charges élémentaires n'a pas pu être réalisée de par la difficulté de mise en place du protocole opératoire sur le banc de métallisation de l'INRS.

**Tableau 2.11** – Récapitulatif des états de charges des différents aérosols modèles.

| Type d'aérosol     | Loi de charge                               |                                             | Nombre moyen de charges élémentaires de l'aérosol |                 |
|--------------------|---------------------------------------------|---------------------------------------------|---------------------------------------------------|-----------------|
|                    | Charge naturelle                            | Charge positive                             | Charge naturelle                                  | Charge positive |
| Cuivre             | $n = 0,3 \cdot 10^{-4} \cdot d_{me}^{3,02}$ | $n = 9 \cdot 10^{-4} \cdot d_{me}^{2,05}$   | 0,02                                              | 0,04            |
| Polyvinyle acétate | $n = 7 \cdot 10^{-4} \cdot d_{COP}^{1,76}$  | $n = 10 \cdot 10^{-4} \cdot d_{COP}^{1,74}$ | 59,07                                             | 126,57          |
| Graphite           | $n = 192 \cdot 10^{-4} \cdot d_{me}^{1,09}$ | $n = 147 \cdot 10^{-4} \cdot d_{me}^{1,26}$ | 1,76                                              | 2,78            |

Le diamètre équivalent en mobilité électrique est exprimé en nm dans les expressions de la loi de charge électrique.

En conclusion, l'établissement des lois de charge de ces aérosols nous sera utile pour par la suite évaluer l'effet des charges des particules sur les performances des systèmes de collecte par voie humide.

## 2.4 Nombre de charges élémentaires par particule primaire

Par ailleurs, pour les aérosols dont nous possédons la loi de charge et la masse volumique effective, nous pouvons déterminer le nombre de charges élémentaires par particule primaire ( $n_{pp}$ ) constituant l'agglomérat. En effet, la masse de l'agglomérat d'une taille donnée correspondant à la masse de l'ensemble des particules primaires, il est possible de calculer le nombre de particules primaires par agglomérat:

$$m_a = N_{pp} \cdot m_{pp} \quad (2.30)$$

Or, dans le cas de l'aérosol de graphite,

$$m_a = \frac{\rho_e \cdot \pi \cdot d_{me}^3}{6} = \frac{(23,547 \cdot d_{me}^{-1,052}) \cdot \pi \cdot d_{me}^3}{6} \quad (2.31)$$



Soit,

$$N_{pp} = \frac{(23,547 \cdot d_{me}^{-1,948})}{\rho_{\text{graphite}} \cdot d_{pp}^3} \quad (2.32)$$

Ainsi nous avons calculé le nombre de particules primaires pour l'aérosol composé de particules de cuivre et de graphite et avons comparé les résultats aux valeurs obtenues à partir des équations de la littérature développées par Lall et Friedlander (2006) et Sorensen (2011). La figure 2.25 permet d'observer une bonne correspondance entre les valeurs du nombre de particules primaires par agglomérat, calculé à partir de la masse volumique effective obtenue expérimentalement, et les corrélations proposées par Lall et Friedlander et Sorensen [129, 149].

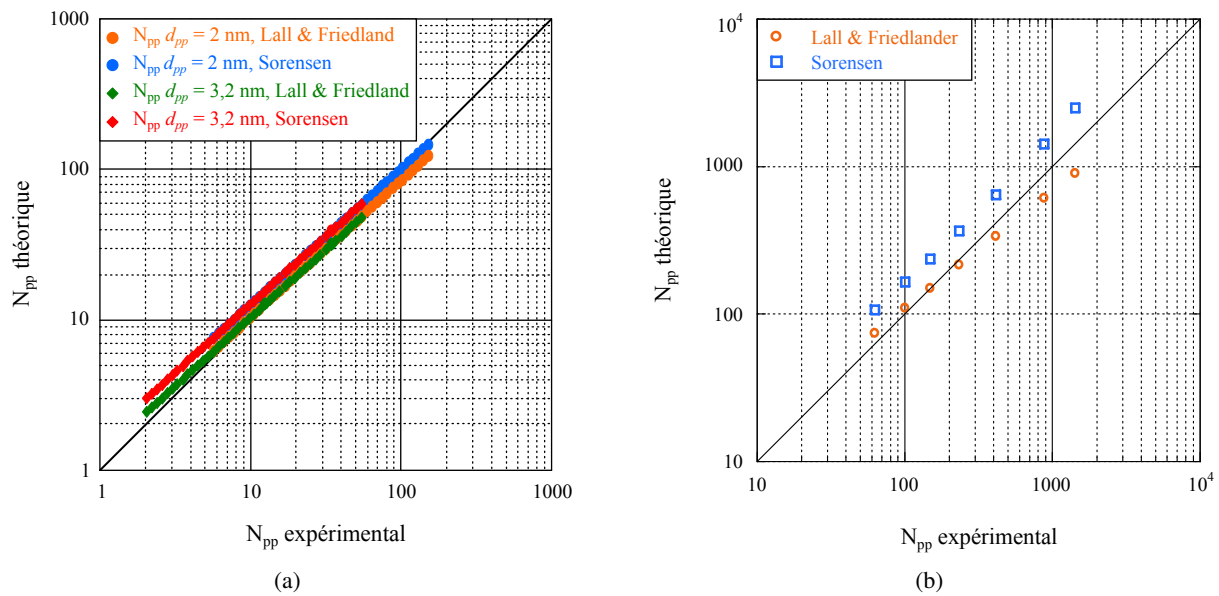


FIGURE 2.25 – Diagramme de parité entre le nombre de particules primaires déterminé expérimentalement et à travers les relations de Lall et Sorensen pour les aérosols de (a) cuivre et (b) graphite.

La relation 2.33 développée par Lall et Friedlander (2006) [149] définit le nombre de particules primaires présentes dans un agglomérat comme une fonction du diamètre de mobilité électrique, du coefficient de Cunningham et de la force de traînée (adimensionnelle) de l'agglomérat ( $d_{me}$ ,  $Cu(d_{me})$  et  $c^*$  respectivement). Ainsi que du libre parcours moyen du gaz ( $\lambda$ ) et du diamètre des particules primaires ( $d_{pp}$ ), comme suit,

$$N_{pp} = \frac{d_{me}}{Cu(d_{me})} \cdot \frac{3 \cdot \pi \lambda}{c^* \cdot d_{pp}^2} \quad (2.33)$$

La deuxième expression utilisée (cf. Equation 2.34 a été développée par Sorensen (2011) [129]. L'auteur exprime le nombre de particules primaires d'un agglomérat, comme une fonction du diamètre de mobilité électrique ( $d_{me}$ ), du diamètre des particules primaires ( $d_{pp}$ ) et d'une constante ( $x$ ), laquelle peut prendre des valeurs entre 0,46 et 0,56 selon le régime des particules ( $Knu$ ),

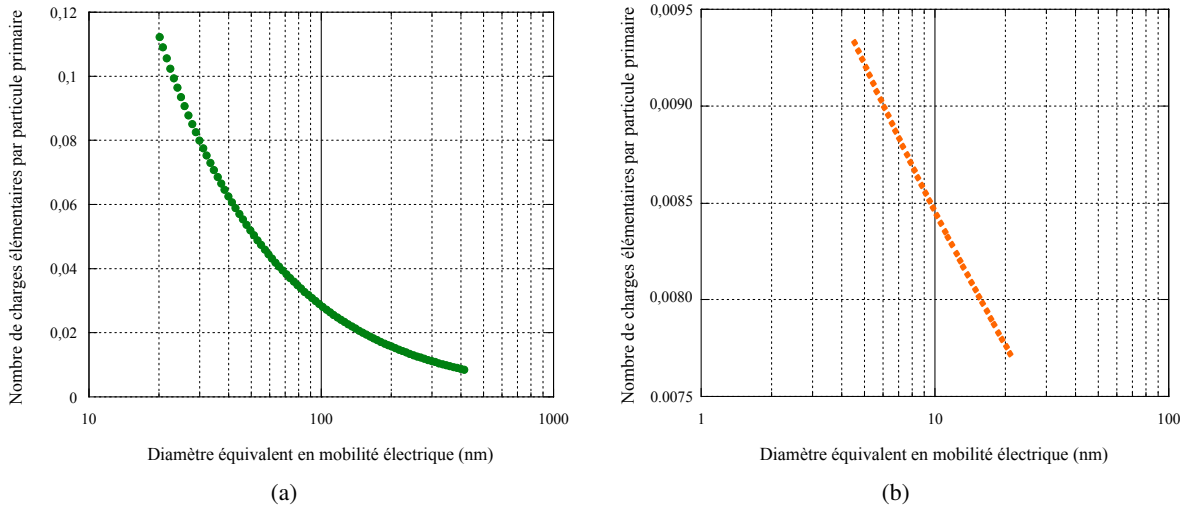
$$N_{pp} = \left( \frac{d_{me}}{d_{pp} \cdot 10^{(-2 \cdot x + 0,92)}} \right)^{1/x} \quad (2.34)$$

A savoir que pour réaliser ces calculs nous avons pris une valeur de  $c^*$  égale à 9,17 typique des agglomérats avec orientation aléatoire, et une valeur de  $x$  égale à 0,51 afin de trouver le nombre moyen de particules primaires présentes dans l'agglomérat.

De plus, à partir de la loi de charge du graphite et de l'équation 2.35, il vient :

$$n_{e,pp} = \frac{n}{N_{pp}} = 8,154 \cdot 10^{-4} \cdot \rho_{\text{graphite}} \cdot d_{pp}^3 \cdot d_{me}^{-0,858} \quad (2.35)$$

La figure 2.26 présente le nombre de charges élémentaires par particule primaire selon le diamètre équivalent en mobilité électrique des particules de graphite et de cuivre.



**FIGURE 2.26** — Nombre de charges élémentaires par particule primaire selon le diamètre équivalent en mobilité électrique des particules de graphite (a) et de cuivre (b)

Nous pourrions attendre un nombre de charges élémentaires par particule primaire constant quel que soit le diamètre des agglomérats. Néanmoins, la figure montre une diminution exponentielle de ce paramètre avec l'augmentation du diamètre, ce qui signifie que la charge globale de l'agglomérat est inférieure à la somme des charges des particules primaires qui le composent. Ce phénomène pourrait s'expliquer par la présence de charge uniquement sur la surface de l'enveloppe des agglomérats. En considérant que les particules primaires ne peuvent pas porter plus d'une charge étant donné leur taille, nous pouvons calculer le nombre de particules primaires qui doivent porter une charge de façon à obtenir la même valeur que la charge totale de l'agglomérat. La figure 2.27 donne une idée du nombre de particules primaires sur l'enveloppe de l'agglomérat et donc de sa forme.

Nous pouvons observer une augmentation du nombre de particules primaires portant une charge élémentaire  $e$  avec l'augmentation de la taille de l'agglomérat (augmentation du  $N_{pp}$ ). Ce que signifie une augmentation de la charge globale de l'agglomérat avec l'augmentation de son diamètre et cela est en accord avec les données obtenues lors des expériences.

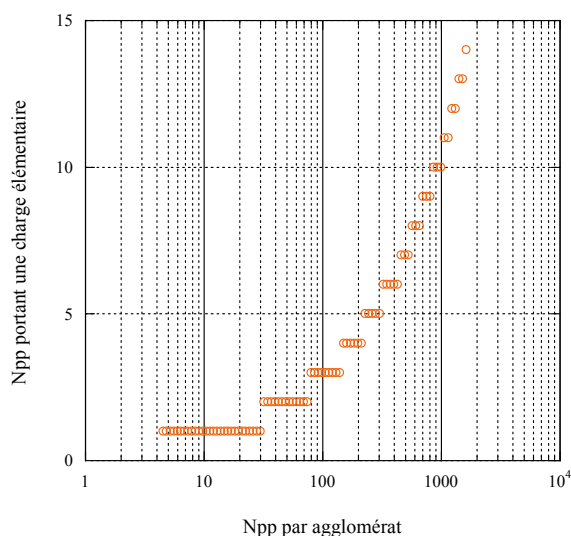


FIGURE 2.27 — Nombre de charges élémentaires par particule primaire selon le nombre de particules primaires composant une particule agglomérée de graphite avec sa charge naturelle.

## 2.5 Conclusion

L'objectif de ce chapitre était de caractériser les aérosols qui seront utilisés pour étudier les performances de collecte d'une colonne à bulles. Au travers des expériences pour la détermination de la masse volumique effective des particules, nous avons notamment vu que les agglomérats de PVAc sont plutôt sphériques et compacts, ce qui veut dire que la masse volumique effective est très proche de la masse volumique du matériau. Tandis que pour les aérosols de Cu, C et Zn/Al, la masse volumique effective est fonction du diamètre des agglomérats et est d'autant plus faible que celui-ci est important. Par ailleurs, la détermination des états de charge des aérosols modèles (Cu, C et PVAc) a mis en évidence que le nombre de charges par particule est lié non seulement à leur taille mais aussi à leur nature. Ainsi, un aérosol de cuivre présente une charge électrique plus faible que l'aérosol de graphite et celle de ce dernier est inférieure à la loi de charge des particules de PVAc (cf. Tableau 2.12).

Tableau 2.12 — Caractéristiques des aérosols employés au cours de cette étude.

| Type d'aérosol     | Mode (nm) | Masse volumique effective ( $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ) | Diamètre des particules primaires (nm) | Loi de charge (charge naturelle)            |
|--------------------|-----------|---------------------------------------------------------------|----------------------------------------|---------------------------------------------|
| Cuivre             | 8,2       | $\rho_e = 15,528 \cdot d_{me}^{-0,826}$                       | 2,0–3,2                                | $n = 0,3 \cdot 10^{-4} \cdot d_{me}^{3,02}$ |
| Graphite           | 56,4      | $\rho_e = 23,547 \cdot d_{me}^{-1,052}$                       | 9,3                                    | $n = 192 \cdot 10^{-4} \cdot d_{me}^{1,09}$ |
| Polyvinyle acétate | 91,4      | $\rho_e \approx 1,27$                                         | —                                      | $n = 7 \cdot 10^{-4} \cdot d_{COP}^{1,76}$  |
| Alliage Zn/Al      | 82,8      | $\rho_e = 48,164 \cdot d_{me}^{-0,941}$                       | 9,7                                    | —                                           |



# Performances d'une colonne à bulles

L'objectif de ce chapitre est d'examiner les potentialités offertes par des procédés de séparation des particules autres que les médias fibreux pour l'épuration des fumées de métallisation. Dans cette optique, les colonnes à bulles pourraient s'avérer une alternative crédible aux filtres à fibres de par leur fonctionnement à perte de charge constante. Les avantages offerts par les colonnes à bulles sont la faible exigence d'entretien due à une construction simple et les faibles coûts initiaux d'installation. Par ailleurs, l'absence de remise en suspension de particules, puisque la collecte des particules ultrafines se fait en phase liquide, limite le risque d'inhalation des nanoparticules par les opérateurs lors des phases d'entretien et de maintenance.

Le banc d'optimisation de la collecte et épuration des aérosols nanométriques (banc OCEAN) servira à déterminer les performances d'une colonne à bulles pour la filtration de nanoparticules sous l'influence des paramètres opératoires tels que le type de distributeur de gaz, la nature du liquide de piégeage, la charge électrique des particules, la hauteur du liquide de collecte et le débit d'air à l'entrée de la colonne à bulles.

Nous comparerons ensuite nos résultats expérimentaux à un modèle théorique de collecte des particules par voie liquide. Cela va nous permettre de connaître le ou les paramètres clés à modifier afin d'obtenir une efficacité de collecte de nanoparticules proche de celle des médias fibreux. Enfin, nous chercherons à déterminer les performances de la colonne à bulles au cours du temps.

## 3.1 Les colonnes à bulles

Les colonnes à bulles sont des dispositifs dans lesquels un gaz entre en contact avec un liquide sous forme de bulles. L'objectif peut être simplement de mélanger la phase liquide, mais aussi de transférer une ou des substances d'une phase à l'autre (absorption avec ou sans réaction chimique). Usuellement, le gaz est dispersé afin de créer de fines bulles distribuées de façon uniforme sur la section de la colonne afin de maximiser le transfert de matière. De plus, la formation de petites bulles est souhaitable afin de limiter leur coalescence et ainsi favoriser un régime de bullage homogène.

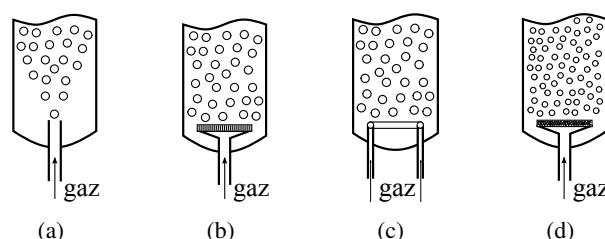


FIGURE 3.1 — Distributeurs de gaz: (a) Tube immergé. (b) Plaque perforée. (c) Tube perforé. (d) Plaque poreuse. [150]

Dans la plupart des cas, les bulles d'air sont générées à l'aide d'une plaque perforée, d'un tube perforé ou d'un fritté. La figure 3.1 montre les formes typiques de ces distributeurs des gaz. Le plus simple de ces dispositifs, le tube immergé (cf. Figure 3.1(a)), ne donne une distribution homogène des bulles dans toute la section de la colonne qu'à partir d'une certaine distance du distributeur. Les plaques (cf. Figure 3.1(b)) et les tubes perforés (cf. Figure 3.1(c)) sont les plus performants, mais ces deux dispositifs ont besoin d'un

débit d'air minimum afin d'obtenir un bullage homogène et éviter l'entrée du liquide dans le distributeur de gaz. Quant aux plaques poreuses ou frittées (cf. Figure 3.1(d)), elles génèrent des bulles très fines mais présentent un risque d'encrassement en présence de particules dans le gaz, et ce type de dispositif est très rarement utilisé dans des systèmes à grande échelle [150].

Selon les conditions opératoires (vitesse superficielle du gaz et efficacité du distributeur), les propriétés physiques du milieu et le diamètre de la colonne, le gaz traverse la colonne sous forme de bulles (régime bullaire) ou de bouchons (régime à bouchons). Le régime à bulles est lui-même décomposé en deux, voire trois régimes hydrodynamiques nettement différents: le régime homogène et le régime hétérogène. Ces deux régimes sont séparés par un régime de transition (cf. Figure 3.2 [6, 150–152]).

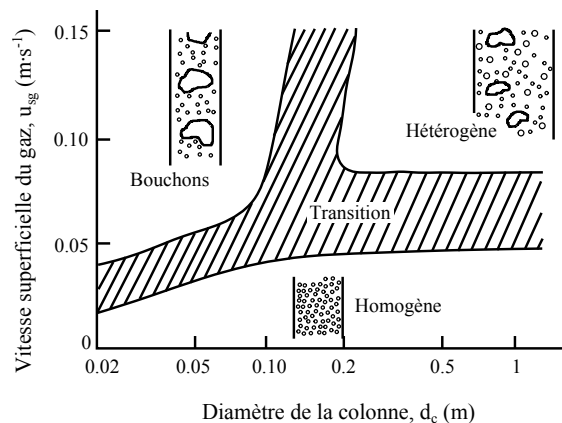


FIGURE 3.2 – Régimes hydrodynamiques des colonnes à bulles (milieux peu visqueux) [6, 150–152].

L'écoulement homogène apparaît lorsque le gaz traverse la colonne sous forme de fines bulles, avec un minimum de coalescence. La montée des bulles, assimilables à des sphères de un à quelques millimètres de diamètre, se fait à peu près uniformément. Les bulles montent les unes derrière les autres, en chapelets verticaux dans toute la masse de liquide expansé, sans se rattraper et sans former de paquets. Au contraire, dans le cas d'un écoulement hétérogène, des bulles plus grosses, de forme irrégulière, se forment peu après la sortie du distributeur. Elles montent de manière turbulente et chaotique en coalesçant et en se fragmentant fréquemment pour donner naissance à deux populations de bulles de diamètres nettement différents: environ 5 mm pour les petites, et 50 mm pour les grosses [153–155]; leur vitesse peut facilement dépasser  $0,5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  pour des vitesses superficielles du gaz supérieures à  $0,06 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ . Ces bulles provoquent une turbulence globale du milieu beaucoup plus forte et induisent une homogénéisation efficace de la phase liquide. Le régime à bouchons correspond à la montée assez régulière de bouchons de gaz plus ou moins volumineux mais de diamètre proche de celui de la colonne. Le liquide monte, partiellement entraîné dans le sillage de ces poches de gaz, puis redescend le long des parois.

Ces régimes dépendent essentiellement de la nature du milieu, du débit et de la densité du gaz (donc de la pression), ainsi que du diamètre de la colonne. Le débit volumique du gaz ( $Q_g$ ) qui passe à travers la section de la colonne ( $\Omega$ ) constitue la vitesse superficielle du gaz ( $u_{sg}$ ). Le régime homogène est favorisé par des vitesses superficielles de gaz faibles ( $u_{sg} < 0,02$  à  $0,04 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ) et un distributeur de type fritté ou poreux. Le régime hétérogène apparaît dans la plupart des liquides peu visqueux au-delà d'une vitesse superficielle de gaz,  $u_{sg}$ , de  $0,03$  à  $0,05 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  (respectivement pour un tube perforé ou pour un fritté). Dans les solutions visqueuses, le régime est très rapidement hétérogène [156]. Le régime à bouchons n'est observé que dans les colonnes de diamètre limité (inférieur à  $0,10 - 0,20 \text{ m}$ ) traversées par des vitesses

de gaz allant de  $0,07$  à  $0,15 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  avec des solutions peu visqueuses et  $0,03 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$  pour des solutions visqueuses; la hauteur de la colonne favorise ce phénomène. Le régime de bullage va influencer le diamètre des bulles qui à la fois est une fonction des propriétés du barboteur et du liquide de collecte. Le tableau 3.1 présente différentes corrélations de la littérature pour le calcul du diamètre des bulles à partir du diamètre des orifices, et des propriétés du liquide de collecte.

**Tableau 3.1** – Corrélations pour le calcul du diamètre des bulles.

| Auteurs                         | Corrélation                                                                                                                                                                                                                        | Gamme de validité                                                                                                                                                                                        |
|---------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Van Krevelen et Hoftijzer [157] | $d_b = \left( 1,722 \cdot \frac{6 \cdot Q_o^{6/5}}{\pi \cdot g^{3/5}} \right)^{1/3}$                                                                                                                                               | $\sigma = 0,072 \text{ N} \cdot \text{m}^{-1}$<br>$\mu_L = 1 \text{ Pa} \cdot \text{s}$<br>$d_o < 0,006 \text{ m}$                                                                                       |
| Davidson et Schüler [158]       | $d_b = \left( 1,378 \cdot \frac{6 \cdot Q_o^{6/5}}{\pi \cdot g^{3/5}} \right)^{1/3}$                                                                                                                                               | $\rho_L = 810 - 1000 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$<br>$\sigma = 0,027 - 0,073 \text{ N} \cdot \text{m}^{-1}$<br>$\mu_L = 0,00099 - 0,001 \text{ Pa} \cdot \text{s}$<br>$d_o = 0,001 - 0,003 \text{ m}$ |
| Davidson et Harrison [159]      | $d_b = \left( 1,138 \cdot \frac{6 \cdot Q_o^{6/5}}{\pi \cdot g^{3/5}} \right)^{1/3}$                                                                                                                                               | $\rho_L = 710 - 1100 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$<br>$\sigma = 0,037 - 0,08 \text{ N} \cdot \text{m}^{-1}$<br>$\mu_L = 0,0001 - 0,001 \text{ Pa} \cdot \text{s}$<br>$d_o = 0,0015 - 0,003 \text{ m}$  |
| Walters et Davidson [160]       | $d_b = \left( 1,09 \cdot \frac{6 \cdot Q_o^{6/5}}{\pi \cdot g^{3/5}} \right)^{1/3}$                                                                                                                                                | Fluides de faible viscosité                                                                                                                                                                              |
| Kumar et Kuloor [161]           | $d_b = \left( 0,976 \cdot \frac{6 \cdot Q_o^{6/5}}{\pi \cdot g^{3/5}} \right)^{1/3}$                                                                                                                                               | $\rho_L = 700 - 1300 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$<br>$\sigma = 0,0018 - 0,09 \text{ N} \cdot \text{m}^{-1}$<br>$\mu_L = 0,0008 - 0,001 \text{ Pa} \cdot \text{s}$<br>$d_o = 0,0011 - 0,003 \text{ m}$ |
| Akita et Yoshida [162]          | $\frac{d_b}{d_c} = 26 \cdot \left( \frac{d_c^2 \cdot g \cdot \rho_L}{\sigma} \right)^{-1/2} \cdot \left( \frac{g \cdot d_c^3}{v_L^2} \right)^{-3/25} \cdot \left( \frac{u_{sg}}{\sqrt{g \cdot d_c}} \right)^{-3/25}$               | $\rho_L = 998 - 1500 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$<br>$\sigma = 0,05 - 0,08 \text{ N} \cdot \text{m}^{-1}$<br>$\mu_L = 0,001 - 0,522 \text{ Pa} \cdot \text{s}$<br>$d_o = 0,001 - 0,006 \text{ m}$     |
| Gaddis et Vogelpohl [163]       | $d_b = \left[ \left( \frac{6 \cdot d_o \cdot \sigma}{\rho_L \cdot g} \right)^{4/3} + \left( \frac{81 \cdot v_L \cdot Q_o}{\pi \cdot g} \right) + \left( \frac{135 \cdot Q_o^2}{4 \cdot \pi^2 \cdot g} \right)^{4/3} \right]^{1/4}$ | $\rho_L = 1000 - 1320 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$<br>$\sigma = 0,06 - 0,08 \text{ N} \cdot \text{m}^{-1}$<br>$\mu_L = 0,001 - 1 \text{ Pa} \cdot \text{s}$<br>$d_o = 0,0002 - 0,006 \text{ m}$       |
| Winterson [164]                 | $d_b = 0,04 \cdot d_c$                                                                                                                                                                                                             | Fluides de faible viscosité                                                                                                                                                                              |

Sous conditions de régime de bullage homogène, les bulles sont de taille et forme quasi-uniformes, et distribuées de façon homogène sur toute la section de la colonne. Leur vitesse ascensionnelle peut varier entre  $3$  et  $22 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$  [165, 166]. Quand le régime de bullage change, des bulles plus grandes se forment et/ou un phénomène de coagulation de bulles se produit en plus des petites bulles déjà présentes dans la colonne. La vitesse ascensionnelle de ces nouvelles bulles est nettement supérieure à celle des petites bulles et peut atteindre des valeurs de l'ordre de  $2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ .

Zehner et Kraume [150] ont déterminé la vitesse ascensionnelle des bulles dans un système eau – air, pour une colonne à bulles de 0,44 m de diamètre, 5 m de hauteur, et une plaque perforée avec une taille des orifices de 3 mm de diamètre comme distributeur des gaz. La figure 3.3 illustre les valeurs obtenues pour la vitesse ascensionnelle des bulles en fonction de la vitesse superficielle du gaz. Les auteurs ont observé que les bulles de taille importante ont une vitesse ascensionnelle au minimum quatre fois supérieure à celle des plus petites. De plus, les bulles les plus fines ont une vitesse ascensionnelle quasi constante pour les débits d'air compris entre 1,5 et 150 L · s<sup>-1</sup> [150].

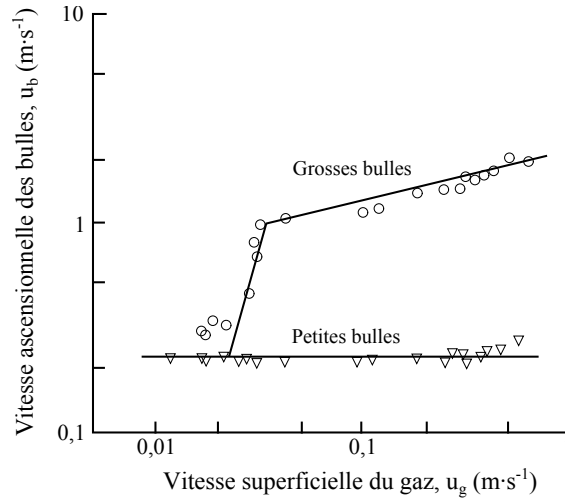


FIGURE 3.3 – Vitesse ascensionnelle des bulles dans un système eau–air.

La vitesse ascensionnelle augmente avec  $d_b$  pour les bulles fines ( $d_b < 1,5$  mm), et l'équation d'Allen [83] validée par les résultats obtenus par Haberman et Monton [167] et Motarjemi et Jameson [168] est recommandée dans ce cas:

$$u_b = \left( \frac{\rho_L \cdot g \cdot d_b^3}{64 \cdot \mu_L} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (3.1)$$

La vitesse ascensionnelle d'une bulle de grand diamètre passe par un minimum autour de  $d_b = 7$  mm dans un fluide de faible viscosité. La vitesse ascensionnelle dans l'eau et d'autres fluides de faible viscosité pour des diamètres des bulles compris entre 0,2 et 8 cm est décrite par Mendelson [169]:

$$u_b = \left( \frac{2 \cdot \sigma}{d_b \cdot \rho_L} + \frac{d_b \cdot g}{2} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.2)$$

Il existe aussi la relation de Davies et Taylor [170], considérant les bulles sphériques avec une vitesse ascensionnelle fonction de leur volume:

$$u_b = 2,4 \cdot \left( \frac{\pi \cdot d_b^3}{6} \right)^{\frac{1}{6}} \quad (3.3)$$

De plus, pour obtenir un régime de bullage homogène, le distributeur doit créer une perte de charge suffisante pour que le gaz se répartisse correctement sur toute la section de la colonne. La puissance dissipée constitue un critère de comparaison entre les différents épurateurs [171].



Dans le cas des distributeurs de gaz, la puissance dissipée peut être liée à la perte de charge totale comme suit,

$$\frac{P_B}{V_L} = Q_g \cdot \frac{\Delta P}{V_L} = Q_g \cdot \frac{(\rho_g \cdot g \cdot h) + \Delta P_{dist}}{V_L} \quad (3.4)$$

Avec,  $P_B$  la puissance dissipée (W),  $Q_g$  le débit de gaz ( $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ),  $g$  l'accélération de la gravité ( $\text{m} \cdot \text{s}^{-2}$ ),  $h$  la hauteur du liquide dans la colonne (m),  $V_L$  le volume du liquide dans la colonne ( $\text{m}^3$ ),  $\rho_L$  la masse volumique du liquide ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ),  $\Delta P$  la perte de charge totale (Pa) et  $\Delta P_{dist}$  la perte de charge liée au distributeur de gaz (Pa).

La perte de charge totale ( $\Delta P$ ) est une fonction de la hauteur d'eau ( $\rho_g \cdot g \cdot h$ ) et de la perte de charge du distributeur ( $\Delta P_{dist}$ ) qui augmente avec la vitesse de gaz au travers de l'orifice.

### 3.1.1 Collecte des particules dans une colonne à bulles: État de l'art

L'étude bibliographique montre que différents épurateurs humides, et en particulier, les colonnes à bulles et spray [172–175], ont été utilisées pour collecter des particules présentes dans un gaz porteur. Les avantages offerts par les colonnes à bulles sont la faible exigence d'entretien due à une construction simple, le contrôle facile de la température et les faibles coûts initiaux d'installation. Cependant, les études sur l'épuration des particules qui ont été rapportées ne sont pas nombreuses.

Les premières expériences de collecte des particules par voie liquide ont été réalisées par Kaldor et Phillips en 1976 [176]. Ils ont utilisé une colonne à bulles avec une plaque perforée de 45 orifices de 0,33 mm de diamètre, avec 25,5 cm de hauteur d'une solution de tensioactif pour évaluer l'efficacité de collecte de particules de 0,02 à 10  $\mu\text{m}$  de diamètre. Les auteurs ont trouvé une zone de pénétration maximale (MPPS), comme celle présente dans la filtration par des médias fibreux, autour de 0,1 et 0,3  $\mu\text{m}$  laquelle s'explique par une compétition entre les mécanismes de collecte par diffusion et par sédimentation. Pour les particules de taille supérieure à 0,3  $\mu\text{m}$  le mécanisme de collecte prédominant est la sédimentation. La collecte des particules plus fines ( $d_p < 1 \mu\text{m}$ ) augmente avec le temps de séjour, c'est-à-dire avec la hauteur du liquide de collecte, mais diminue avec l'augmentation de la concentration des particules. Les auteurs ont attribué ce phénomène à une possible inhibition de la diffusion à hautes concentrations ou à un effet de saturation ou de répulsion à l'interface air-liquide. Ils ont également observé que la formation de petites bulles, à l'origine d'une augmentation d'efficacité, est favorisée par les faibles débits. Finalement, les efficacités de collecte obtenues varient entre 5 et 30 % pour les conditions opératoires testées.

Un an après, Yuu et al. [10] se sont intéressés à la collecte de particules de taille comprise entre 1,5 et 3,2  $\mu\text{m}$  par une colonne à bulles. Les auteurs ont trouvé que l'efficacité de collecte augmente exponentiellement en fonction de la hauteur du liquide de collecte et ont attribué la collecte des particules au mécanisme inertiel. Vingt-cinq ans plus tard, Meikap et Biswas ont étudié la performance d'une colonne à bulles multiétages pour la collecte de particules de diamètre compris entre 2 et 200  $\mu\text{m}$  [8]. La présence d'un débit de liquide de collecte, à contre-courant du débit d'air, donne une particularité à leur colonne à bulles à trois étages. Les résultats expérimentaux ont montré une valeur de pénétration des particules proche de zéro pour un ratio entre le débit volumique d'air et celui du liquide de  $5,5 \cdot 10^{-3}$ . L'efficacité de collecte de la colonne à bulles mono-étagé a été estimée entre 50 et 60 % tandis que le fonctionnement avec 2 ou 3 étages a donné des valeurs comprises entre 80 et 90 %. Les auteurs ont également mis en évidence que l'augmentation du débit d'air produit une diminution de l'efficacité de collecte; phénomène déjà observé par Kaldor et Phillips [176].

Bandyopadhyay et Biswas, en 2006, ont étudié la performance d'une colonne à bulles tronconique pour la collecte de particules microniques de taille comprise entre 9,82 et 20,16  $\mu\text{m}$  [7]. Des études antérieures ont montré qu'une colonne conique était capable de générer des valeurs de rétention gazeuse supérieures à celles d'une colonne à bulles standard et que la taille des bulles varie inversement avec la vitesse superficielle du gaz. Les résultats expérimentaux ont montré que l'efficacité de collecte augmente avec les débits de gaz et de liquide, ainsi qu'avec la rétention gazeuse et que l'effet électrostatique était négligeable. Les auteurs ont conclu que leur système fonctionne très bien pour les particules de taille supérieure à 2  $\mu\text{m}$ , tandis que pour les particules plus fines, une colonne à plusieurs étages serait nécessaire pour augmenter leur collecte dans la phase liquide.

En 2010, Hermeling et Weber [177], sont les premiers à évaluer la capacité d'une colonne à bulles à collecter des particules de graphite de taille nanométrique ( $15 \text{ nm} < d_p < 170 \text{ nm}$ ) dans différents liquides. Les auteurs ont observé que l'efficacité de séparation de particules augmente avec la hauteur de liquide dans la colonne à bulles. Ils ont décrit la séparation de particules de la phase gazeuse comme une combinaison de phénomènes de transport par diffusion et par inertie. La diffusion dépend de la taille des particules et des bulles, tandis que l'adhérence dépend de l'interaction entre les molécules de l'interface du liquide et la surface des particules. La probabilité que les particules rentrent en contact avec l'interface air-liquide augmente en réduisant de manière significative la taille des bulles, en utilisant des tensioactifs. En outre, l'efficacité de séparation diminue avec l'augmentation de la taille des particules si la diffusion reste le principal mécanisme de collecte, par exemple, pour une hauteur de liquide de piégeage de 15 cm, l'efficacité de collecte est de 80 %, 60 % et 50 % pour des particules de 25, 50 et 150 nm, respectivement.

Charvet et al., en 2011 [178] ont également testé la collecte de particules ultrafines de graphite ( $5 \text{ nm} < d_p < 150 \text{ nm}$ ) par une colonne à bulles remplie d'eau déminéralisée. Les auteurs ont déterminé l'influence des paramètres tels que, la hauteur du liquide de collecte, le débit d'air à l'entrée de la colonne et la taille des orifices du distributeur de gaz. Ils ont conclu que l'efficacité de collecte augmente avec le niveau de liquide, puisque le temps de séjour des bulles augmente. Il a également été mis en évidence que lorsque la taille des orifices diminue, les bulles générées sont plus fines et par conséquent la probabilité de contact entre les particules et l'interface air-liquide augmente. À partir de ces expériences il a été difficile de conclure sur l'effet du débit d'air. Une valeur maximale de l'efficacité globale de collecte de 98,2 % a été obtenue pour une hauteur de liquide de 20 cm, un débit d'air de  $8 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  avec une plaque perforée de 12 orifices de 500  $\mu\text{m}$  de diamètre.

En 2012, Koch et Weber [179], se sont intéressés à la performance des colonnes à bulles pour la collecte des particules ultrafines ( $25 \text{ nm} < d_p < 180 \text{ nm}$ ). Les auteurs ont déterminé l'influence de la hauteur du liquide de collecte sur l'efficacité, pour de l'eau déminéralisée et pour une solution aqueuse de polyvinylpyrrolidone à 0,4 %wt. Ils ont confirmé l'augmentation de l'efficacité de collecte avec la hauteur du liquide déjà vue dans les études réalisées auparavant [7, 8, 10, 176–178]. De plus, ils ont observé une augmentation de la performance de colonnes à bulles avec l'ajout du tensioactif.

Lee et al. [180] ont étudié la collecte de particules de 0,7 et 20  $\mu\text{m}$  dans une colonne à bulles avec une hauteur d'eau déminéralisée variable entre 32 et 36 cm et pour un débit d'air variant de 4 à  $7 \text{ m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ . Les résultats expérimentaux ont montré que l'efficacité de collecte augmente exponentiellement avec la taille des particules (pour  $d_p < 1,5 \mu\text{m}$ ), et se stabilise pour les plus grosses particules donnant une valeur de 100 %.

En récapitulant, les performances des colonnes à bulles ont été étudiées afin d'optimiser les caractéristiques de la colonne (diamètre, hauteur, distributeur) et les conditions opératoires (débit, nature du liquide). Cependant, la majorité de ces études s'intéresse à la collecte de particules ayant des diamètres compris entre 1 et 10  $\mu\text{m}$ . Ces études montrent que l'efficacité de collecte des particules augmente exponentiellement avec la hauteur du liquide de piégeage et par conséquent avec le temps de séjour. On peut également observer que l'ajout d'un agent de surface dans le liquide induit une diminution de la taille des bulles et donc une augmentation de l'efficacité de collecte. Seules trois études, non exhaustives, de la collecte de particules ultrafines ( $d_p < 1 \mu\text{m}$ ) par une colonne à bulles ont été recensées.

### 3.1.2 Collecte des particules dans une colonne à bulles: Approche théorique

La seule théorie de collecte de particules dans des colonnes à bulles a été développée par Fuchs [9] et Pich et Schütz [181]. Les mécanismes de collecte des particules transportées dans une bulle sont, entre autres, la diffusion brownienne, l'inertie et la gravité. Dans cette théorie, chaque mécanisme d'absorption dépend de la vitesse ascensionnelle de la bulle et par conséquent de la taille des bulles, du débit d'air d'entrée et de la taille de l'orifice de bullage. L'efficacité de collecte totale et celle due à chaque mécanisme peuvent être calculées pour un diamètre de bulle ( $d_b$ ), une hauteur de liquide ( $h$ ) et pour une taille de particule ( $d_{pi}$ ), donnés.

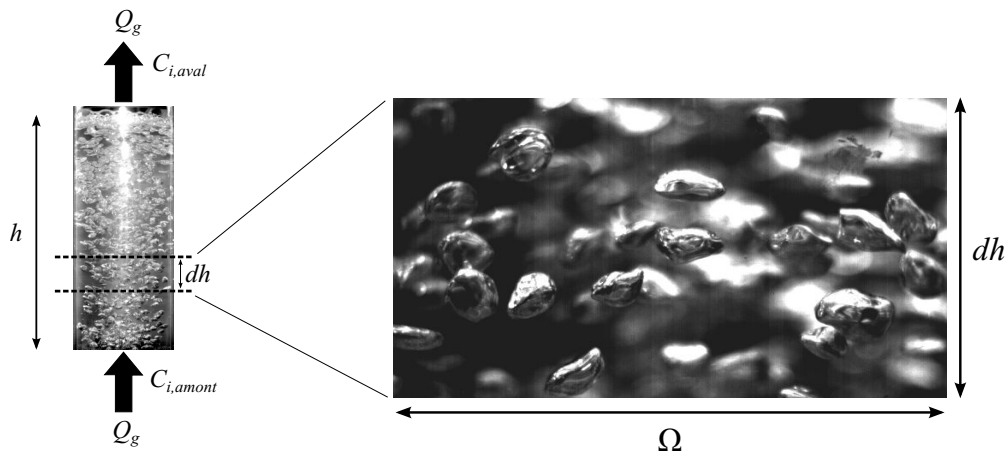


FIGURE 3.4 – Schéma d'une colonne à bulles.

A partir d'un bilan de matière (cf. Figure 3.4), il est possible d'exprimer théoriquement l'efficacité de collecte d'une colonne à bulles à partir de ses propriétés intrinsèques, comme la hauteur du liquide de piégeage ( $h$ ) ou le diamètre des bulles ( $d_b$ ) par exemple, et des conditions opératoires du système (débit d'air à l'entrée de la colonne à bulles ( $Q_g$ ), concentration en particules en amont ( $C_{i,amont}$ ) et en aval ( $C_{i,aval}$ )).

$$Q_g \cdot C_{i,amont} = Q_g \cdot C_{i,aval} + Q_g \cdot dC_i \quad (3.5)$$

Ainsi, sous l'hypothèse du diamètre et de la forme de bulles constants dans toute la hauteur du liquide de piégeage, considérons un élément de la colonne à bulles de hauteur  $dh$  et de section  $\Omega$ , et exprimons le flux des particules collectées,  $dN/dt$ , en fonction de la concentration des particules dans une bulle et du volume gazeux présent dans le volume de liquide. Ce volume gazeux dépend du taux de rétention gazeuse,  $\varepsilon_g$ , représentant le volume total de gaz dispersé sous forme de bulles dans l'unité de volume de liquide [152].

Ainsi, nous obtenons l'équation (3.6),

$$-\frac{dN}{dt} = Q_g \cdot dC_i = -\Omega \cdot \varepsilon_g \cdot dh \cdot \frac{dC_i}{dt} \quad (3.6)$$

Le flux de particules collectées à l'interface air-liquide ( $dN/dt$ ) est aussi une fonction du nombre de bulles ( $N_b$ ) et de leur volume ( $V_b$ ), de la concentration fractionnelle de particules dans une bulle ( $C_i$ ), c'est-à-dire, le nombre de particules de diamètre  $d_p$  présentes dans une bulle, et de la vitesse ascensionnelle de la bulle ( $u_b$ ), ainsi que d'un coefficient global d'absorption ( $a$ ) [9].

$$-\frac{dN}{dt} = C_i \cdot N_b \cdot V_b \cdot u_b \cdot a \quad (3.7)$$

Le nombre de bulles de diamètre  $d_b$  peut être déterminé à partir du volume gazeux présent dans le volume de liquide considéré et du volume des bulles ( $V_b$ ) selon l'équation (3.8),

$$N_b = \frac{\Omega \cdot \varepsilon_g \cdot dh}{V_b} \quad (3.8)$$

En remplaçant  $N_b$  dans l'équation (3.7), et en égalant avec l'équation (3.6), nous obtenons,

$$\frac{dC_i}{C_i} = -a \cdot u_b \cdot dt \quad (3.9)$$

Sachant que  $u_b = dh/dt$ , nous arrivons à l'expression,

$$\frac{dC_i}{C_i} = -a \cdot dh \quad (3.10)$$

Après l'intégration de l'équation (3.10), la valeur de la pénétration  $P$  peut être calculée à travers l'équation (3.11),

$$\int_{C_0}^C \frac{dC_i}{C_i} = -a \cdot \int_0^h dh \implies \ln \frac{C}{C_0} = -a \cdot h \implies P = \frac{C}{C_0} = \exp(-a \cdot h) \quad (3.11)$$

Finalement, l'expression de l'efficacité de collecte d'une colonne à bulles,  $\eta$ , peut s'écrire:

$$\eta = 1 - P = 1 - \exp(-a \cdot h) \quad (3.12)$$

Où,  $\eta$  est l'efficacité de collecte des particules, et  $a$  le coefficient global d'absorption, lequel, selon Fuchs [9] est une fonction de trois mécanismes d'absorption: sédimentation ( $a_S$ ), inertie ( $a_I$ ) et diffusion brownienne ( $a_D$ ). Sous l'hypothèse d'indépendance et d'additivité des trois mécanismes de collecte, le coefficient global d'absorption est défini comme:

$$a = a_S + a_I + a_D \quad (3.13)$$

Avec,

$$a_S = \frac{3 \cdot g \cdot \tau}{2 \cdot U_b \cdot d_b} \quad (3.14)$$

$$a_I = \frac{18 \cdot U_b \cdot \tau}{d_b^2} \quad (3.15)$$

$$a_D = 5,1 \cdot \left( \frac{D}{U_b \cdot d_b^3} \right)^{1/2} \quad (3.16)$$

Où  $g$  est l'accélération de la gravité ( $\text{m} \cdot \text{s}^{-2}$ ),  $\tau$  le temps de relaxation de la particule (s), et  $D$  le coefficient de diffusion brownienne de la particule ( $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ).

Le temps de relaxation et le coefficient de diffusion de la particule, présents dans les équations précédentes, peuvent s'exprimer, selon Pich et Schütz [181], comme:

$$\tau = \frac{\rho_p \cdot d_p^2 \cdot Cu}{18 \cdot \mu_g} \quad (3.17)$$

$$D = \frac{k \cdot T \cdot Cu}{3 \cdot \pi \cdot \mu_g \cdot d_p} \quad (3.18)$$

Avec  $\rho_p$  et  $d_p$  la masse volumique ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) et le diamètre (m) des particules,  $\mu_g$  la viscosité dynamique du gaz ( $\text{Pa} \cdot \text{s}$ ),  $k$  la constante de Boltzmann ( $\text{J} \cdot \text{K}^{-1}$ ),  $T$  la température du gaz (K) et  $Cu$  le coefficient de Cunningham.

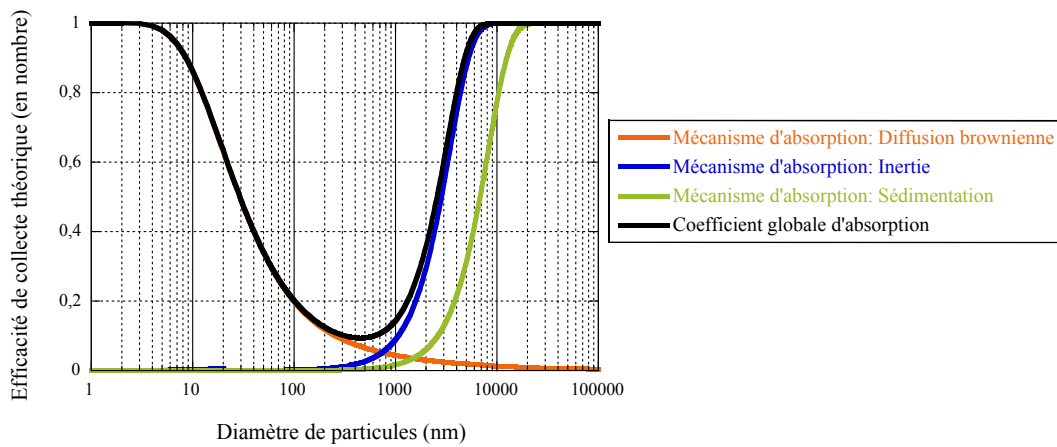


FIGURE 3.5 — Efficacité de collecte d'une colonne à bulles en fonction de la taille des particules, pour  $Q_g = 10 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ ,  $h = 50 \text{ cm}$  et  $d_b = 7,9 \text{ mm}$ .

A titre d'exemple, nous avons employé le modèle de Fuchs [9] et Pich et Schütz [181] pour calculer l'efficacité de collecte pour un débit d'air,  $Q_g = 10 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ , une hauteur du liquide de piégeage,  $h = 50 \text{ cm}$ , et un diamètre des bulles calculé à l'aide de la corrélation de Kumar et Kuloor [161],  $d_b = 7,9 \text{ mm}$  (cf. Figure 3.5). Les particules de taille inférieure à 100 nm seront plus facilement collectées par diffusion brownienne, alors que pour les particules plus grosses ( $d_p > 500 \text{ nm}$ ) l'inertie et la force gravitationnelle vont favoriser leur collecte dans le liquide. Nous pouvons également observer une zone de pénétration maximale (MPPS), similaire à celle observée sur les médias fibreux, autour de 500 nm. Ce phénomène s'explique par une compétition entre la diffusion brownienne et l'inertie.

En conclusion, l'efficacité fractionnelle d'une colonne à bulles dépend de la hauteur de liquide et de ces trois principaux mécanismes, fonction de la taille des bulles. Ainsi si nous voulons augmenter les performances de filtration de ce séparateur, nous pouvons augmenter le niveau du liquide de collecte et/ou diminuer la taille des bulles.

### 3.2 Matériels et Méthodes

Le banc OCEAN (Optimisation de la Collecte et Épuration des Aérosols Nanométriques) dédié à la détermination des performances d'une colonne à bulles vis-à-vis de nanoparticules est présenté dans la figure 3.6 et peut se décomposer en trois grandes parties.

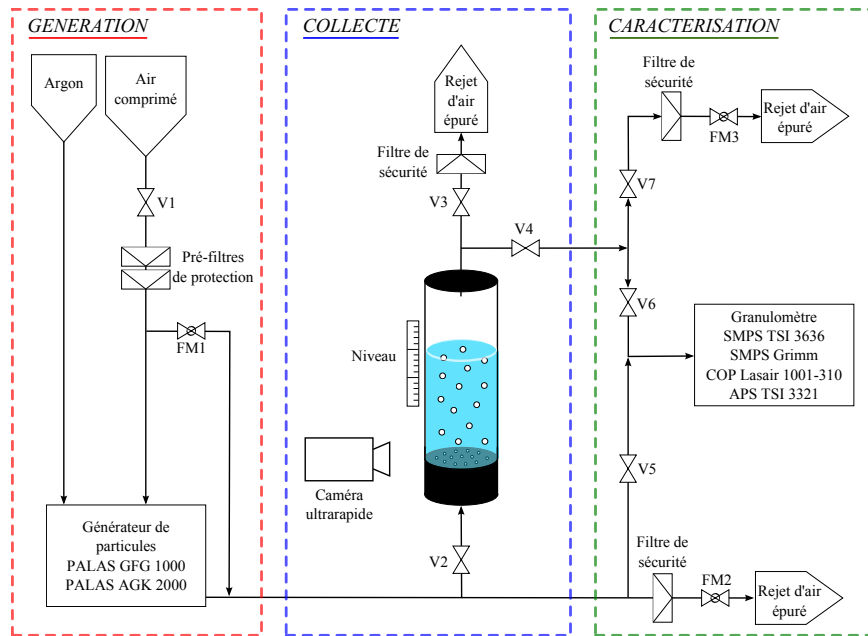


FIGURE 3.6 – Schéma du banc d'essai OCEAN.

La **génération** des particules ultrafines solides polydispersées de diamètre inférieur au micromètre est réalisée par deux voies : soit sous courant d'argon par un générateur PALAS GFG 1000, lequel permet de produire des nanoparticules de diamètre compris entre 5 et 20 nm pour les électrodes de cuivre (Cu) et de 20 à 400 nm pour les électrodes de graphite (C); soit par la nébulisation d'une solution de polyvinyle acétate (PVAc) à travers le générateur PALAS AGK 2000 afin d'obtenir des particules dont la taille est comprise entre 11 et 1000 nm de diamètre. Les principes de fonctionnement de ces appareils ont été détaillés dans la section 2.1.

La **collecte** des nanoparticules a lieu dans une colonne à bulles (380 mm de hauteur,  $h_c$ , et 78 mm de diamètre,  $d_c$ ) dont les principales caractéristiques peuvent être contrôlées (hauteur de liquide, diamètre des bulles, débit d'air en entrée de la colonne). La formation des bulles s'effectue au niveau d'un distributeur de gaz (cf. Section 3.3). Le choix du liquide de collecte s'est orienté vers de l'eau déminéralisée de façon à éviter la formation de particules secondaires lors de l'explosion des bulles à la surface du liquide de collecte. Les efficacités de collecte des nanoparticules ont été déterminées pour des hauteurs de liquide et différents débits d'air chargé de nanoparticules.

Les **caractérisations** de la distribution de taille et de la concentration des particules sont effectuées en amont et en aval de la colonne à bulles à l'aide de trois granulomètres. Pour les diamètres compris entre 2,5 et 350 nm, nous avons utilisé deux types d'analyseurs de mobilité électrique (SMPS). Ces granulomètres mesurent le diamètre de mobilité électrique des nanoparticules à l'aide d'un classifieur de mobilité électrique (DMA TSI 3080 avec une source radioactive et DMA Grimm 55900 avec une source à effet couronne Grimm 5520) et un compteur de noyaux de condensation (CPC TSI 3776 et CPC Grimm 5403). Pour les particules de diamètre compris entre 300 et 1500 nm, la concentration a été mesurée à l'aide d'un compteur optique LASAIR 1001 et d'un APS TSI 3321, un spectromètre qui mesure la concentration des particules en fonction de leur diamètre aérodynamique. Les principes de fonctionnement des granulomètres sont décrits en détail dans l'annexe B.2.

De plus, la colonne est équipée d'une caméra ultra-rapide (Phantom v9.1) placée à la hauteur du distributeur de gaz, afin d'obtenir des images nous permettant de mesurer la taille des bulles à l'orifice. Le choix de la position de la mesure est une question de praticité, puisque la taille et la forme des bulles peuvent changer au cours de leur ascension, tandis qu'à l'orifice la forme des bulles reste quasi sphérique. A l'aide du logiciel de contrôle de la caméra ultra-rapide nous réalisons la mesure de la taille des bulles pour les différents distributeurs de gaz et à plusieurs débits.

### 3.2.1 Choix d'un protocole expérimental pour la mesure d'efficacité

L'efficacité de collecte pour chaque classe granulométrique est déterminée à partir de 13 mesures de concentration réalisées successivement en amont et en aval de la colonne à bulles selon la norme EN 779 (pour la détermination de la performance des filtres) [182] (cf. Tableau 3.2), laquelle propose le calcul de l'efficacité fractionnelle et celui des incertitudes de mesure selon les expressions présentées ci-dessous.

**Tableau 3.2** – Cycle de mesures de concentration

| 1             | 2            | 3             | 4            | 5             | 6            | 7             | 8            | 9             | 10           | 11            | 12           | 13            |
|---------------|--------------|---------------|--------------|---------------|--------------|---------------|--------------|---------------|--------------|---------------|--------------|---------------|
| $C_{amont,1}$ |              | $C_{amont,2}$ |              | $C_{amont,3}$ |              | $C_{amont,4}$ |              | $C_{amont,5}$ |              | $C_{amont,6}$ |              | $C_{amont,7}$ |
|               | $C_{aval,1}$ |               | $C_{aval,2}$ |               | $C_{aval,3}$ |               | $C_{aval,4}$ |               | $C_{aval,5}$ |               | $C_{aval,6}$ |               |

A partir des prélèvements effectués alternativement à l'amont et à l'aval de la colonne à bulles, 6 efficacités  $\eta_i$  sont calculées de la façon suivante:

$$\eta_i = 1 - \frac{C_{aval,i}}{\frac{C_{amont,i} + C_{amont,i+1}}{2}} \quad (3.19)$$

Soit  $C_{amont,i}$  la concentration de particules comptées lors du prélèvement amont  $i$  et  $C_{aval,i}$  la concentration de particules comptées lors du prélèvement aval  $i$ . L'efficacité  $\eta$  est égale à la moyenne arithmétique des efficacités  $\eta_i$ :

$$\eta = \frac{\sum_{i=1}^6 \eta_i}{6} \quad (3.20)$$

L'incertitude statistique sur l'efficacité est basée sur la loi de Student. Le calcul correspond à un intervalle de confiance bilatéral de la moyenne prenant en compte un niveau de confiance de 95 %:

$$\eta - t_{1-\frac{\alpha}{2}} \cdot \frac{\Delta\eta}{\sqrt{6}} < \eta < \eta + t_{1-\frac{\alpha}{2}} \cdot \frac{\Delta\eta}{\sqrt{6}} \quad (3.21)$$

Avec  $t_{1-\frac{\alpha}{2}}$  la valeur du coefficient de Student qui dépend du nombre de degrés de liberté,  $6 - 1$ , et  $\Delta\eta$  l'écart-type:

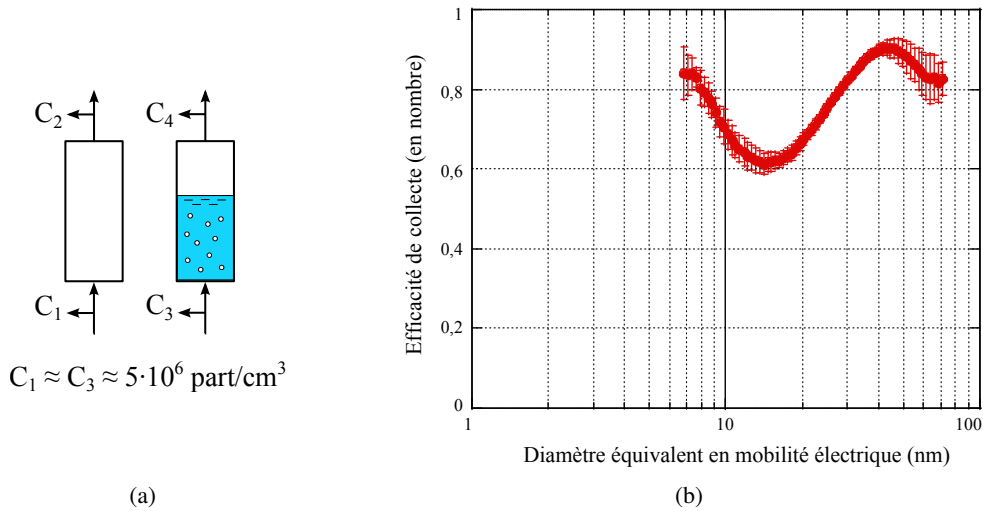
$$\Delta\eta = \sqrt{\frac{\sum (\eta_i - \eta)^2}{5}} \quad (3.22)$$

### 3.2.1.1 Protocole 1

Afin d'anticiper un biais sur la mesure d'efficacité, dû à une éventuelle collecte des nanoparticules sur les parois de la colonne ou dans les tuyauteries en amont et en aval de celle-ci, la concentration amont utilisée pour déterminer l'efficacité de collecte, est mesurée en aval de la colonne sans liquide (cf. Figure 3.7(a)). Le calcul de l'efficacité de collecte du liquide est réalisé comme suit,

$$\eta_L = \frac{C_2 - C_4}{C_2} \quad (3.23)$$

Avec  $C_2$  et  $C_4$  des concentrations en nombre.

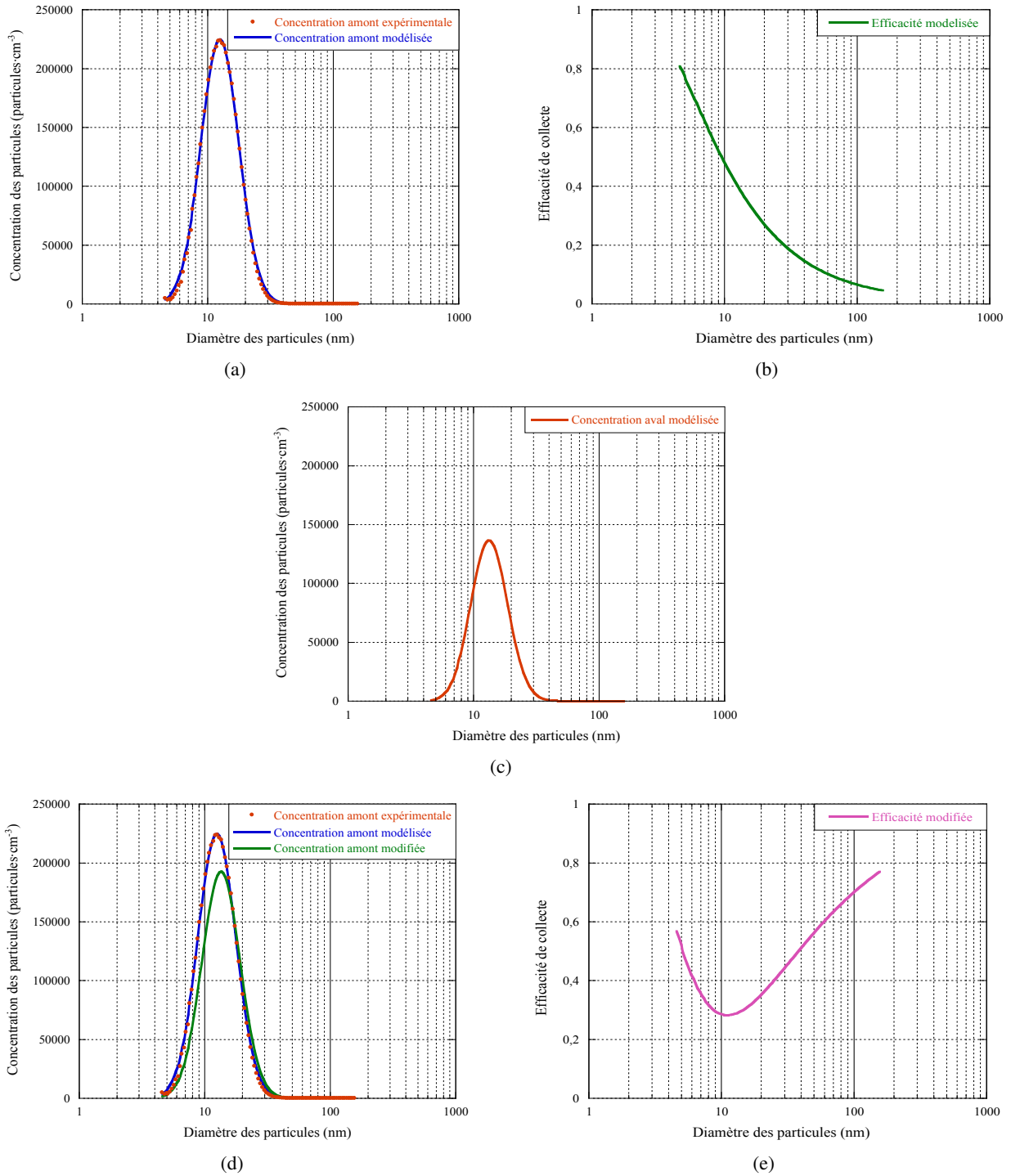


**FIGURE 3.7** – Protocole 1: (a) Détermination des concentrations initiale et finale en particules. (b) Efficacité fractionnelle de collecte (pour une hauteur d'eau de 20 cm et un débit d'air de  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ )

La mise en application de ce protocole expérimental pour des nanoparticules de cuivre, permet de mesurer uniquement l'efficacité de collecte due au liquide, et révèle la présence d'une zone de faible efficacité pour des diamètres de particules compris entre 10 et 20 nm (cf. Figure 3.7(b)). La diminution de l'efficacité de collecte entre 6 et 15 nm est vraisemblablement due à une diminution de l'efficacité de collecte par le mécanisme diffusionnel et est cohérente avec le modèle de Pich et Schutz [181]. L'augmentation de l'efficacité de collecte pour les particules de tailles supérieures à 20 nm, peut s'expliquer soit par la présence d'un mécanisme de collecte additionnel (en plus de la diffusion, l'impaction ou la sédimentation), soit par un artefact de mesure. Étant données les fortes concentrations de particules générées



(de l'ordre de  $5 \cdot 10^6$  particules  $\cdot$  cm $^{-3}$ ) et les faibles vitesses d'écoulement au sein de la colonne vide, l'hypothèse s'oriente vers la présence d'un phénomène d'agglomération dans la colonne vide (c'est-à-dire, lors de la mesure de la concentration initiale en particules).



**FIGURE 3.8** – Mise en évidence du phénomène d'agglomération; (a) Distribution granulométrique en amont de la colonne, ajustée par une loi log-normale; (b) Efficacité fractionnelle de collecte modélisée par Pich; (c) Distribution granulométrique théorique en aval de la colonne; (d) Distribution granulométrique en amont de la colonne, modifiée par un déplacement du diamètre géométrique de la loi log-normale; (e) Efficacité fractionnelle modifiée.

Pour valider cette hypothèse nous avons effectué des calculs théoriques qui simulent une augmentation (due à l'agglomération dans la colonne vide) du diamètre moyen géométrique d'une distribution granulométrique log-normale représentative de l'aérosol. Dans un premier temps, nous avons tracé la distribution granulométrique initiale des particules produites par le générateur à l'entrée de la colonne et ajusté cette distribution par une loi log-normale (cf. Figure 3.8(a)).

Puis, nous avons tracé l'efficacité de collecte théorique par diffusion pour chaque taille de particules selon le modèle de Pich détaillé précédemment. Connaissant la concentration en particules en amont de la colonne à bulle (cf. Figure 3.8(a)) et l'efficacité fractionnelle de collecte (cf. Figure 3.8(b)), il est possible d'obtenir la distribution granulométrique théorique en aval de la colonne (cf. Figure 3.8(c)). Par la suite, nous simulons une augmentation du diamètre moyen géométrique de 1 nm due à un phénomène d'agglomération dans la colonne vide de façon à obtenir une distribution granulométrique modifiée en amont de la colonne (cf. Figure 3.8(d)). Il est important de noter que la concentration massique totale en particules reste constante malgré cette modification de la distribution granulométrique. Finalement, en considérant la concentration théorique en aval de la colonne (cf. Figure 3.8(c)) et la concentration modifiée en amont (cf. Figure 3.8(d)), nous pouvons calculer l'efficacité de collecte modifiée qui correspond à l'efficacité en cas d'agglomération (cf. Figure 3.8(e)). Cette dernière figure met bien en évidence qu'un déplacement de la distribution granulométrique, même très faible, induit l'apparition d'une zone de faible efficacité et par conséquent confirme l'hypothèse qu'un phénomène d'agglomération se produit dans la colonne vide du fait des fortes concentrations en particules et des faibles vitesses d'écoulement.

### 3.2.1.2 Protocole 2

De façon à éliminer cet artefact de mesure créé par le phénomène d'agglomération, nous avons modifié le protocole expérimental en mesurant directement les concentrations en particules en amont et en aval de la colonne à bulles (cf. Figure 3.9).

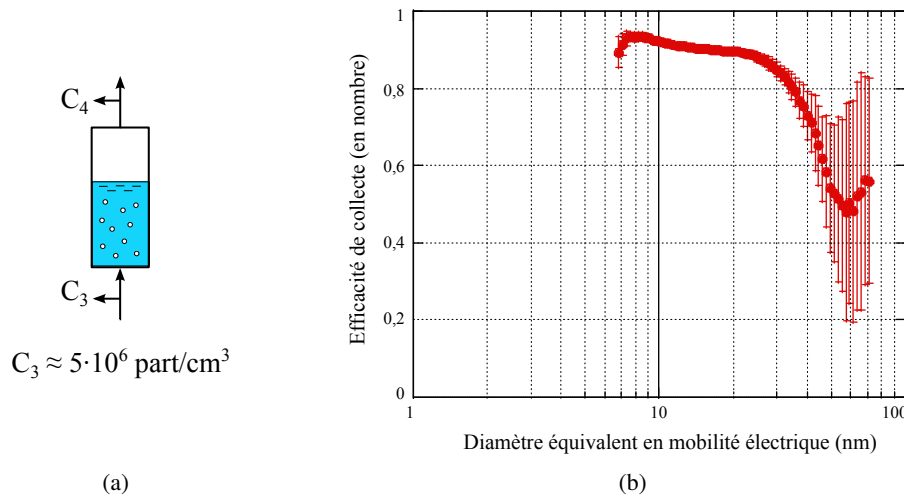


FIGURE 3.9 – Protocole 2: (a) Détermination des concentrations initiale et finale en particules. (b) Efficacité fractionnelle de collecte (pour une hauteur d'eau de 20 cm et un débit d'air de  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ )

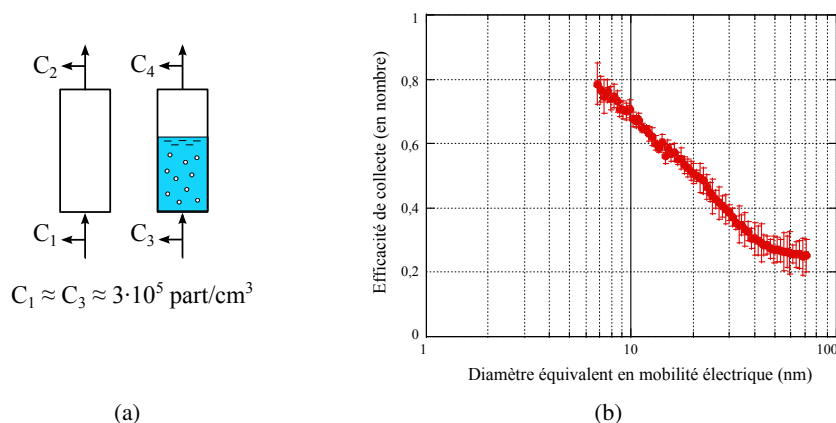
Le calcul de l'efficacité de collecte du liquide est réalisé comme suit,

$$\eta_L = \frac{C_3 - C_4}{C_3} \quad (3.24)$$

Avec  $C_3$  et  $C_4$  les concentrations amont et aval, en nombre. L'utilisation de ce nouveau protocole, qui est celui utilisé par Koch et Weber [179] permet de supprimer le phénomène d'agglomération (pas d'augmentation de l'efficacité de collecte pour les particules de taille supérieure à 20 nm), mais ne permet pas de différencier la collecte des nanoparticules par le liquide (eau déminéralisée) de la collecte des nanoparticules par dépôt sur les parois de la colonne ou dans les canalisations en amont et en aval de la colonne. Ainsi, l'efficacité mesurée n'est plus uniquement celle du liquide (eau déminéralisée) mais celle de l'ensemble de l'installation, à savoir la collecte due au liquide, aux canalisations, à la plaque perforée, aux parois, etc. L'utilisation de ce protocole rend donc plus difficile une éventuelle extrapolation de nos résultats à d'autres types de configuration de colonne à bulles où la collecte due à l'installation elle-même sera forcément différente.

### 3.2.1.3 Protocole 3

L'amélioration précédente ne s'avérant pas satisfaisante, un troisième protocole a été mis en place de façon à supprimer le phénomène d'agglomération tout en mesurant une efficacité de collecte du liquide (et non de l'ensemble de l'installation). La solution consiste à ajouter, au premier protocole, une dilution de l'aérosol initial de façon à obtenir des concentrations plus faibles dans la colonne vide et ainsi réduire la probabilité de formation d'agglomérats (cf. Figure 3.10(a)).



**FIGURE 3.10** – Protocole 3: (a) Détermination des concentrations initiale et finale en particules. (b) Efficacité fractionnelle de collecte (pour une hauteur d'eau de 20 cm et un débit d'air de  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ )

Le calcul de l'efficacité de collecte du liquide est réalisé comme suit,

$$\eta_L = \frac{C_2 - C_4}{C_2} \quad (3.25)$$

Avec  $C_2$  et  $C_4$  des concentrations en nombre. Les résultats obtenus dans les mêmes conditions opératoires que précédemment montrent une suppression à la fois du phénomène d'agglomération et de la surestimation de l'efficacité (cf. Figure 3.10(b)). Ce protocole semble donc le plus satisfaisant. Néanmoins, pour un facteur de dilution important, le nombre de particules en sortie de la colonne à bulles devient trop faible pour être détecté par le granulomètre SMPS ce qui rend le calcul de l'efficacité de collecte impossible. Il faut donc trouver un compromis entre une forte dilution qui supprime le phénomène d'agglomération mais rend le comptage des nanoparticules difficile, et une faible dilution qui peut s'avérer insuffisante pour totalement faire disparaître l'agglomération.

De plus, afin de prendre en compte les éventuelles variations de la concentration à l'entrée de la colonne (dans l'intervalle de temps entre les mesures dans la colonne vide et celles dans la colonne remplie de liquide), nous allons déterminer l'efficacité de collecte du liquide ( $\eta_L$ ) à partir des relations d'efficacités moyennes de collecte de la colonne vide ( $\eta_{CV}$ ) et de la colonne remplie de liquide ( $\eta_{CR}$ ). Nous considérons la colonne remplie de liquide comme deux systèmes en série: la colonne vide (avec le distributeur d'air) et le liquide de la colonne (cf. Figure 3.11).

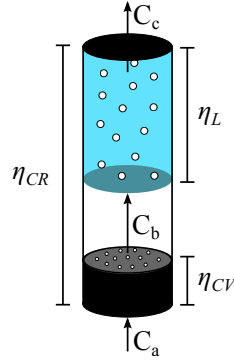


FIGURE 3.11 – Schéma de la colonne remplie considérée comme un système en série.

Ainsi les efficacités de collecte s'expriment en fonction des concentrations des particules  $C_a$ ,  $C_b$  et  $C_c$ , comme l'illustrent les équations ci-dessous:

$$\eta_{CR} = 1 - \frac{C_c}{C_a} \quad (3.26a)$$

$$\eta_{CV} = 1 - \frac{C_b}{C_a} \quad (3.26b)$$

$$\eta_L = 1 - \frac{C_c}{C_b} \quad (3.26c)$$

Quand nous introduisons l'expression 3.26b dans l'équation 3.26a nous obtenons l'équation 3.27, qui permet de calculer l'efficacité de collecte du liquide en fonction des efficacités de la colonne vide et la colonne remplie de liquide.

$$\eta_L = \frac{\eta_{CR} - \eta_{CV}}{1 - \eta_{CV}} \quad (3.27)$$

L'écart-type des valeurs expérimentales de l'efficacité de collecte du liquide,  $\Delta\eta_L$ , sont calculés avec l'équation 3.28, laquelle est une fonction des efficacités de la colonne remplie de liquide et vide et leurs écart-types respectifs,  $\Delta\eta_{CV}$  pour la colonne vide et  $\Delta\eta_{CR}$  pour la colonne remplie de liquide.

$$\Delta\eta_L = \Delta\eta_{CR} \cdot \left| \frac{1}{1 - \eta_{CV}} \right| + \Delta\eta_{CV} \cdot \left| \frac{\eta_{CR} - 1}{(1 - \eta_{CV})^2} \right| \quad (3.28)$$

L'efficacité fractionnelle de collecte ( $\eta_{L_i}$ ) est calculée à partir des concentrations (en nombre) de l'aérosol en amont et en aval de la colonne à bulles vide ( $C_{amontCV_i}$  et  $C_{avalCV_i}$ ) et remplie ( $C_{amontCR_i}$  et  $C_{avalCR_i}$ ):

$$\eta_{L_i} = \frac{\eta_{CR_i} - \eta_{CV_i}}{1 - \eta_{CV_i}} \quad \eta_{CR_i} = 1 - \frac{C_{avalCR_i}}{C_{amontCR_i}} \quad \eta_{CV_i} = 1 - \frac{C_{avalCV_i}}{C_{amontCV_i}} \quad (3.29)$$

Tandis que l'efficacité globale de collecte ( $\eta_{LG}$ ) est calculée à partir de la somme des concentrations de chaque diamètre pour obtenir de valeurs totales amont ( $C_{amontG}$ ) et aval ( $C_{avalG}$ ), ainsi,

$$\eta_{LG} = \frac{\eta_{CRG} - \eta_{CVG}}{1 - \eta_{CVG}} \quad \eta_{CRG} = 1 - \frac{\sum_{i=0}^n C_{avalCR_i}}{\sum_{i=0}^n C_{amontCR_i}} \quad \eta_{CVG} = 1 - \frac{\sum_{i=0}^n C_{avalCV_i}}{\sum_{i=0}^n C_{amontCV_i}} \quad (3.30)$$

### 3.3 Choix d'un distributeur de gaz

La sélection du distributeur de gaz est un paramètre particulièrement important pour le fonctionnement d'une colonne à bulles parce qu'il a une influence sur la taille des bulles, lesquelles ont un effet sur leur vitesse ascensionnelle, le taux de rétention gazeuse ( $\varepsilon_g$ ) et par conséquent le transfert entre la phase gazeuse et la phase liquide. Les plaques perforées, les plaque poreuses et les distributeurs de type anneau ont déjà été étudiés auparavant dans la littérature [155, 157, 166, 183–189]. Certains de ces distributeurs de gaz ont été testés dans le but de trouver le plus adapté à notre dispositif et notre objectif de haute efficacité de collecte des particules.

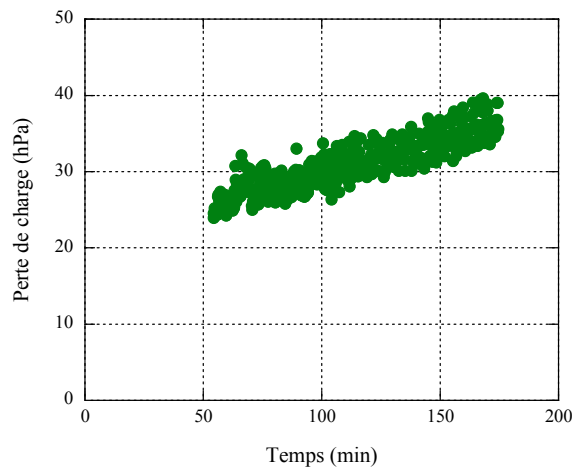


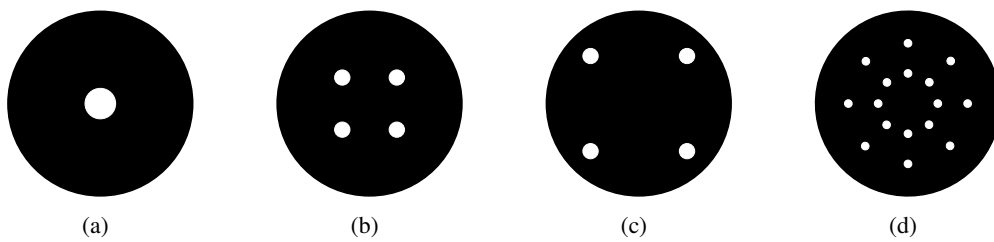
FIGURE 3.12 – Suivi de la perte de charge de la colonne à bulles avec un fritté comme distributeur de gaz au cours de trois heures d'expérience.

Les plaques poreuses ou frittés sont les distributeurs de gaz qui génèrent les bulles les plus petites (cf. Section 3.1). A cet égard, nous avons testé un fritté de verre avec un diamètre nominal maximal de pore entre 160 et 250  $\mu\text{m}$  afin de produire des bulles très fines et distribuées de façon homogène tout au long de la colonne à bulles.

Nous avons mesuré la perte de charge de la colonne à bulles avec le fritté au cours de la filtration de particules de PVAc (cf. Figure 3.12). Pour un débit d'air de  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  et la colonne remplie avec 20 cm de liquide, la perte de charge s'élève à 24 hPa, correspondant aux contributions du fritté et de la hauteur d'eau. Après 3 heures de filtration, une augmentation d'environ 10 hPa de la perte de charge est observable. Ce phénomène signifie que le fritté est en train de se colmater et nécessitera par conséquent une opération périodique de régénération. Ce colmatage du fritté va donc à l'encontre de notre motivation principale qui était d'utiliser un procédé de séparation fonctionnant à perte de charge constante.

Le fritté ne s'avérant pas un distributeur de gaz pertinent pour notre problématique, nous nous sommes orientés vers différentes plaques perforées (cf. Figure 3.13). Le nombre et le diamètre des orifices de chaque plaque ont été établis afin d'avoir toujours la même vitesse de jet d'air par orifice à un débit donné pour les différentes plaques. Nous avons donc testé quatre plaques perforées:

- la plaque 1–2: avec 1 orifice de 2 mm de diamètre (cf. Figure 3.13(a));
- la plaque 4–1m: avec 4 orifices de 1 mm de diamètre placés au centre de la plaque (cf. Figure 3.13(b));
- la plaque 4–1b: avec 4 orifices de 1 mm de diamètre situés aux bords de la plaque (cf. Figure 3.13(c)) et
- la plaque 16–1/2: avec 16 orifices de 0,5 mm de diamètre distribués de façon uniforme dans toute la plaque (cf. Figure 3.13(d)).



**FIGURE 3.13** – Caractéristiques des plaques perforées testées dans la colonne à bulles; (a) Plaque 1–2; (b) Plaque 4–1m; (c) Plaque 4–1b; (d) Plaque 16–1/2.

Afin de déterminer les régimes d'écoulement de la colonne à bulles avec les différentes plaques perforées, nous calculons la valeur du nombre de Reynolds à l'orifice ( $Re_o$ ), pour chaque plaque perforée aux différents débits d'air testés, ainsi,

$$Re_o = \frac{v_o \cdot d_o \cdot \rho_g}{\mu_g} \quad (3.31)$$

Avec  $v_o$  la vitesse de l'air par orifice,  $d_o$  le diamètre des orifices, et  $\rho_g$  et  $\mu_g$  la masse volumique et la viscosité dynamique du gaz, respectivement. Sachant que la vitesse de l'air par orifice ( $v_o$ ) peut être calculée à partir de la géométrie des plaques perforées, ainsi,

$$v_o = \frac{Q_g}{\Omega_o \cdot n_o} = \frac{4 \cdot Q_g}{\pi \cdot d_o^2 \cdot n_o} \quad (3.32)$$

Avec  $Q_g$  le débit de gaz à l'entrée de la colonne,  $\Omega_o$  la section transversale,  $n_o$  le nombre et  $d_o$  le diamètre des orifices. Les valeurs en **vert** correspondent à un régime laminaire, celles en **bleu** sont pour le régime de transition et celles en **rouge** appartiennent au régime turbulent (cf. Tableau 3.3).

**Tableau 3.3** – Nombre de Reynolds à l'orifice pour les différentes plaques perforées en fonction de la vitesse d'air par orifice.

| Débit d'air à l'entrée de la colonne ( $L \cdot \min^{-1}$ ) | 2    | 4    | 6    | 8    | 10   | 12   |
|--------------------------------------------------------------|------|------|------|------|------|------|
| Vitesse à l'orifice ( $m \cdot s^{-1}$ )                     | 10,6 | 21,2 | 31,8 | 42,4 | 53,1 | 63,7 |
| Plaque 16–1/2                                                | 344  | 688  | 1032 | 1376 | 1721 | 2065 |
| Plaque 4–1b et Plaque 4–1m                                   | 688  | 1376 | 2065 | 2753 | 3441 | 4129 |
| Plaque 1–2                                                   | 1376 | 2753 | 4129 | 5506 | 6882 | 8259 |

Nous observons que, pour une plaque contenant des orifices de 0,5 mm de diamètre, le régime est laminaire pour les débits d'air à l'entrée de la colonne inférieurs à  $12 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  (correspondant à une vitesse à l'orifice inférieure à  $63,7 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ), cela signifie un bullage homogène, avec des bulles fines et une coalescence des bulles négligeable. Tandis que pour les plaques contenant des orifices de 1 et 2 mm de diamètre, la gamme de débits dans laquelle le régime de bullage est homogène est très étroite. Une fois les régimes de bullage identifiés, nous nous sommes intéressés à la perte de charge due aux plaques perforées. La différence de pression entre l'entrée et la sortie de la colonne vide en fonction du débit a été mesurée pour chaque plaque perforée (cf. Figure 3.14).

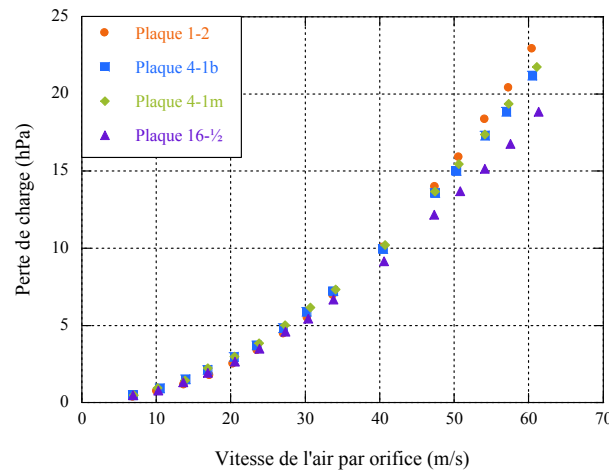


FIGURE 3.14 — Perte de charge en fonction de la vitesse de l'air par orifice pour chaque plaque perforée.

A partir des résultats obtenus, on peut établir deux zones, la première, pour les débits inférieurs à  $35 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , où la perte de charge pour les quatre plaques est presque identique, et la seconde, pour les débits supérieurs à  $35 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , où la perte de charge augmente avec la diminution du nombre d'orifices dans la plaque.

$$\Delta P_{dist} = \frac{1}{2} \cdot \rho_g \cdot v_o^2 \quad (3.33)$$

Nous utilisons une expression de la littérature pour calculer la perte de charge à travers les orifices d'une plaque perforée ( $\Delta P_{dist}$ ) [190–192]. Avec  $\rho_g$  la masse volumique du gaz porteur des particules et  $v_o$  la vitesse du gaz par orifice.

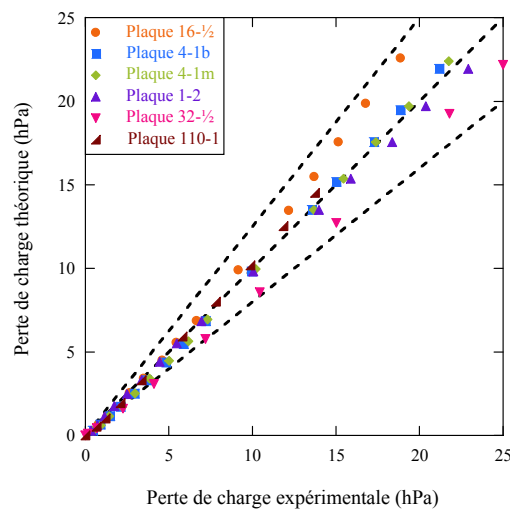


FIGURE 3.15 — Diagramme de parité pour les valeurs de la perte de charge des plaques perforées.

Le diagramme de parité présenté dans la figure 3.15 permet de comparer les pertes de charge théoriques et expérimentales de chaque plaque perforée, pour différentes vitesses de l'air à l'orifice. Étant donné le bon accord entre les deux séries de données, l'expression 3.33 sera employée pour prédire la perte de charge de n'importe quelle plaque perforée de géométrie connue pour une vitesse par orifice donnée.

A noter qu'à la perte de charge engendrée par le distributeur, s'ajoute la perte de charge de la colonne d'eau (de hauteur variable,  $h$ ) placée au-dessus de la plaque perforée et égale à  $\rho_g \cdot g \cdot h$  (cf. Figure 3.16). Nous avons observé que pour un débit d'air inférieur à  $12 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  (soit  $200 \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ), le régime de bullage au niveau de la plaque de 16 orifices est homogène. Les bulles sont réparties uniformément dans la colonne et leur ascension se fait sans interaction sous la forme de train de bulles. Pour des débits supérieurs à  $12 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ , la dispersion homogène des bulles ne peut être maintenue et il y a apparition d'un régime de bullage de transition sous forme de jets qui se désintègrent pour former un grand nombre de bulles de petites tailles. Ces observations confirment les régimes de bullage identifiés lors du calcul du nombre de Reynolds.

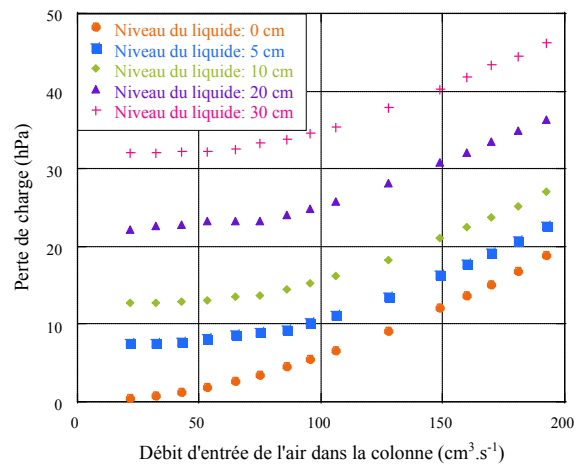


FIGURE 3.16 — Perte de charge en fonction de la hauteur de liquide dans la colonne à bulles, pour la plaque perforée 16-1/2.

Afin de tester les performances des plaques perforées vis-à-vis des particules ultrafines, des expériences, avec l'aérosol de cuivre, ont été menées avec 20 cm de liquide de piégeage et différentes vitesses d'air par orifice, pour les quatre plaques perforées décrites précédemment (cf. Figure 3.17).

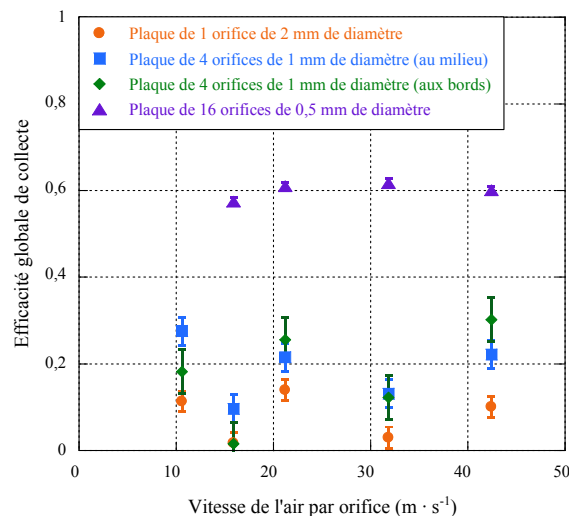


FIGURE 3.17 — Efficacité globale de collecte de particules de cuivre pour les différentes plaques perforées en fonction de la vitesse de l'air par orifice.



L'influence de l'emplacement des orifices d'une plaque perforée sur l'efficacité de collecte des particules peut notamment être testée en comparant les plaques 4–1m et 4–1b où la seule différence entre elles est le positionnement des orifices (cf. Figures 3.13(b) et 3.13(c)). Nous avons fait l'hypothèse que la coalescence de bulles allait être favorisée par le fait d'avoir les orifices très proches les uns des autres, conduisant à une diminution de l'efficacité de collecte. Les expériences ont permis d'observer que l'efficacité de collecte mesurée pour les deux plaques est presque identique pour ces deux configurations (cf. Figure 3.17). Cela signifie que l'emplacement des orifices dans une plaque perforée n'a pas d'influence significative sur l'efficacité de collecte des particules. Par ailleurs, les résultats mettent en évidence que, pour chaque plaque perforée, la vitesse de l'air à l'orifice n'a pas une influence significative sur l'efficacité de collecte.

Pour une hauteur de liquide de piégeage et une vitesse par orifice données, l'efficacité de collecte augmente avec la diminution de la taille des orifices de la plaque perforée. Afin d'expliquer ce phénomène, nous avons réalisé des mesures du diamètre des bulles à l'orifice à l'aide d'une caméra ultra-rapide, suivant le protocole décrit dans la section 3.2.1. Les expériences ont été effectuées avec les quatre plaques perforées.

**Tableau 3.4** – Taille des bulles (mm) mesurées à l'orifice pour les différentes plaques perforées en fonction de la vitesse d'air par orifice.

| Vitesse d'air par orifice ( $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ) | Type de plaque  |                 |                  |
|--------------------------------------------------------------|-----------------|-----------------|------------------|
|                                                              | 16–1/2          | 4–1b et 4–1m    | 1–2              |
| 10,6                                                         | $4,43 \pm 0,04$ | $6,26 \pm 0,06$ | $13,41 \pm 0,07$ |
| 21,2                                                         | $5,56 \pm 0,04$ | $8,47 \pm 0,08$ | $15,82 \pm 0,09$ |
| 31,8                                                         | $6,64 \pm 0,09$ | –               | –                |
| 42,4                                                         | $7,46 \pm 0,05$ | $9,46 \pm 0,07$ | $23,34 \pm 0,15$ |

Le tableau 3.4 présente les valeurs moyennes de 100 mesures de diamètre de bulle pour différentes vitesses et configurations de distributeur. Les résultats permettent de conclure que l'augmentation de l'efficacité de collecte avec la diminution de la taille des orifices des plaques perforées, à une vitesse d'air par orifice donnée, est due à une diminution de la taille des bulles (des bulles fines améliorent le transfert des particules vers l'interface air–liquide). Nous pouvons aussi observer que l'augmentation du débit d'air se traduit par des bulles de plus en plus grosses, supposant une diminution de l'efficacité de collecte.

**Tableau 3.5** – Valeurs de l'efficacité globale de collecte de l'aérosol de cuivre et de la perte de charge pour les distributeurs de gaz plaque 32–1/2, plaque 110–1 et Inox355.

|                                              | Type de distributeur |              |         |
|----------------------------------------------|----------------------|--------------|---------|
|                                              | Plaque 32–1/2        | Plaque 110–1 | Inox355 |
| Efficacité globale de collecte (% en nombre) | 56,8                 | 37,4         | 48,7    |
| Perte de charge (hPa)                        | 24,8                 | 21,7         | 19,6    |

Nous avons testé d'autres types de distributeurs de gaz, tels qu'une plaque perforée de 32 orifices de 0,5 mm de diamètre, une plaque avec 110 orifices de 1 mm de diamètre et une toile métallique avec une ouverture de maille de 355  $\mu\text{m}$ , appelés plaque 32–1/2, plaque 110–1 et Inox355 respectivement. Malgré une très faible perte de charge de ces dispositifs, les valeurs d'efficacité de collecte restent inférieures à celles obtenues avec la plaque 16–1/2 (cf. Tableau 3.5). Par conséquent, ces configurations n'ont pas été utilisées

par la suite de l'étude et seule la plaque 16–1/2 a été utilisée. En effet, la génération de bulles fines avec une faible perte de charge en fait le distributeur de gaz le plus performant.

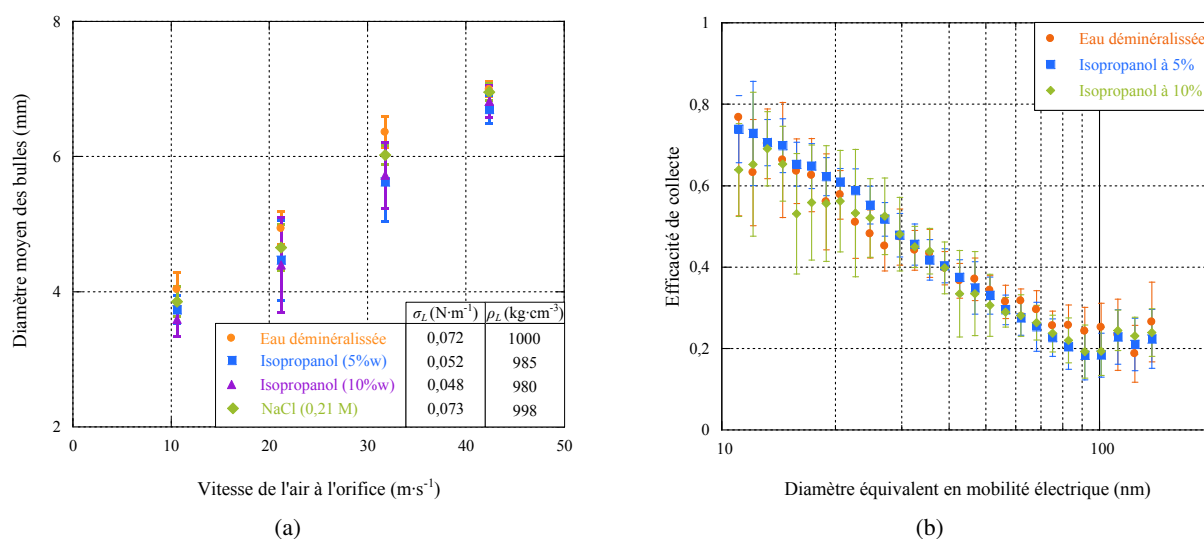
### 3.4 Influence des paramètres opératoires sur les performances d'une colonne à bulles

Afin de déterminer les conditions opératoires qui permettent d'obtenir une efficacité de collecte élevée, nous avons réalisé des expériences afin de tester l'influence de la tension superficielle et la hauteur du liquide de collecte, ainsi que le débit d'air dans la colonne.

#### 3.4.1 Influence de la tension superficielle du liquide de piégeage

Au-delà du distributeur, la taille des bulles dépend beaucoup des propriétés physicochimiques de la phase liquide (cf. Tableau 3.1). Une augmentation de la viscosité du liquide engendrera des bulles de taille plus élevée et par conséquent, des valeurs de la vitesse ascensionnelle des bulles importantes [193]. La littérature montre aussi que l'ajout d'une petite quantité de tensioactif ou d'un électrolyte dans l'eau, provoque une augmentation significative de la rétention gazeuse [194, 195]. Tandis que plusieurs auteurs [196–200] suggèrent qu'il est provoqué par la formation de petites bulles dans les solution d'électrolytes ( $KCl$ ,  $KOH$ ,  $KNO_3$ ,  $KI$ ,  $K_2SO_4$ ,  $CuSO_4$ ,  $K_3PO_4$ ,  $AlCl_3$ ,  $Co(NO_3)_2$ ,  $LiCl$ ,  $NaCl$ ,  $NaBr$ ,  $NaI$ ,  $Na_3PO_4$ ,  $Na_2SO_4$ ,  $MgCl_2$ ,  $MgSO_4$ ,  $CaCl_2$ ,  $Al_2(SO_4)_3$ ,  $NaOH$ ), d'autres [165, 201, 202] ont observé une distribution de tailles des bulles, dans une solution électrolytique ( $Na_2SO_4$ ,  $NaCl$ ,  $KH_2PO_4$ ,  $KHPO_4$ ,  $(NH_4)_2SO_4$ ,  $(NH_4)_2NO_3$ ,  $Na_2HPO_4 \cdot 2H_2O$ ,  $KCl$ ,  $MgSO_4 \cdot 7H_2O$ ,  $H_3BO_3$ ,  $CuSO_4 \cdot 5H_2O$ ,  $KI$ ,  $FeCl_3 \cdot 6H_2O$ ,  $MnSO_4 \cdot H_2O$ ,  $ZnSO_4 \cdot 7H_2O$ ), similaire à celle obtenue dans un système air–eau. Plusieurs auteurs ont étudié les effets d'additifs organiques sur la taille des bulles. Schugerl et al. [165], ont notamment comparé deux solutions, une composée de méthanol, éthanol et glucose et une autre composée de *n*-propanol, *n*-butanol et  $Na_2SO_4$ ; Keitel et Onken [200] ont testé des *n*-alcools ( $C_1 - C_8$ ), des *n*-glycols ( $C_2 - C_5$ ), des *n*-cétones ( $C_3, C_4, C_7$ ) et des acides mono-carboxylique ( $C_1 - C_3$ ), et Jamialahmadi et Müller–Steinhagen [202] ont réalisé des expériences avec des alcools méthylique, éthylique et propylique et des acides méthanoïque, éthanoïque et propanoïque. Tous ces auteurs ont observé une diminution du diamètre moyen des bulles avec l'augmentation de la concentration de solutés organiques.

Afin d'observer l'influence des propriétés physicochimiques de la phase liquide sur le diamètre des bulles, nous avons réalisé des expériences à aide d'une caméra ultra-rapide (Phantom V9), à différents débits d'air et différentes propriétés du liquide de collecte et avons mesuré le diamètre des bulles (cf. Figure 3.18(a)). L'ajout d'un agent de surface (l'isopropanol) ou d'un électrolyte (chlorure de sodium) aboutit à une légère diminution de la taille des bulles. Nous observons aussi, pour tous les liquides de piégeage, une augmentation de la taille des bulles avec l'augmentation de la vitesse de l'air par orifice, comportement cohérent avec les corrélations précédemment évoquées (cf. Tableau 3.1). Puisque l'effet de la solution aqueuse d'isopropanol exerce une influence plus importante sur le diamètre des bulles que la solution électrolytique, nous nous sommes intéressés à l'influence de la présence de ce tensioactif sur l'efficacité de collecte des nanoparticules. A cet effet, nous avons réalisé des mesures d'efficacité de collecte de particules de carbone à  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  avec 20 cm d'eau déminéralisée, 20 cm d'une solution aqueuse d'isopropanol 5 %wt et une dernière expérience avec 20 cm d'une solution d'isopropanol 10 %wt (cf. Figure 3.18(b)). Malgré la présence de l'agent de surface dans le liquide de collecte, nous n'observons pas d'effet sur l'efficacité de collecte pour les diamètres de particules testés. Ce constat peut être expliqué par la faible influence de cette solution sur la taille des bulles, ainsi, la vitesse ascensionnelle des bulles, le taux de rétention gazeuse et le temps de séjour des bulles ne sont que peu affectés.



**FIGURE 3.18** — Influence des propriétés physicochimiques du liquide de collecte sur (a) la taille des bulles en fonction du débit d'entrée dans la colonne et sur (b) l'efficacité de collecte dans le domaine diffusionnel.

Autrement dit, les performances de la colonne à bulles pour la filtration des nanoparticules ne sont pas significativement influencées par l'utilisation d'un agent de surface, en dépit de l'effet sur la taille des bulles, c'est la raison pour laquelle la suite des expériences seront réalisées avec l'eau déminéralisée comme liquide de collecte.

### 3.4.2 Influence de la hauteur du liquide et du débit de gaz

Nous avons employé la colonne à bulles équipée de la plaque perforée 16-1/2 et avec de l'eau déminéralisée comme liquide de piégeage pour déterminer les conditions optimales de hauteur du liquide et de débit d'air dans la colonne. L'efficacité de collecte des particules de cuivre et de PVAc a été déterminée à partir du protocole expérimental numéro 3 (cf. Équation 3.27).

Afin de tester l'influence de la hauteur de liquide sur l'efficacité de collecte des particules ultrafines, des expériences ont été menées pour quatre niveaux de liquide de piégeage (5, 10, 20 et 30 cm) à un débit de 4 L · min⁻¹. Les résultats montrent que l'efficacité de collecte de particules ultrafines augmente avec la hauteur de liquide dans la colonne (cf. Figure 3.19(a)).

Cette observation peut être expliquée par une augmentation du temps de séjour des bulles dans la colonne et donc une amélioration du transfert des particules du gaz à la phase liquide [178]. Ces mesures, réalisées sur des particules de cuivre et de PVAc, montrent une continuité des résultats et donc que la nature des nanoparticules n'a pas d'influence sur l'efficacité de collecte de la colonne à bulles. De plus, une zone de forte pénétration autour des particules de 100 nm de diamètre (similaire à celle observée sur les médias fibreux) est mise en évidence et s'explique par une diminution de l'efficacité de collecte par diffusion lorsque le diamètre des particules augmente. La remontée de l'efficacité pour les particules de taille supérieure à 100 nm est due à la compétition entre les mécanismes de diffusion brownienne et d'inertie. En effet, plus la taille des particules augmente plus la diffusion brownienne s'affaiblit et l'inertie commence à avoir une influence sur la collecte des particules, ce qui explique ce minimum d'efficacité (MPPS).

Dans le but d'observer l'effet de la vitesse de jet de l'air à l'entrée de la colonne à bulles, des expériences avec une hauteur du liquide de piégeage de 20 cm à différents débits de l'aérosol (2, 4, 6, 8 L · min<sup>-1</sup>) ont été testées (cf. Figure 3.19(b)). Nous avons observé au moyen d'une caméra rapide, que la taille des bulles dépend directement de la vitesse de gaz à la sortie des orifices (cf. Tableau 3.4). Ainsi, nous observons une légère diminution de l'efficacité de collecte avec l'augmentation du débit d'air dans la colonne. En effet, le débit de gaz influence la taille de bulles, et plus celles-ci sont grandes, plus leur vitesse ascensionnelle est élevée. Ainsi leur temps de séjour se réduit, diminuant la probabilité que les particules rentrent en contact avec l'interface air-liquide.

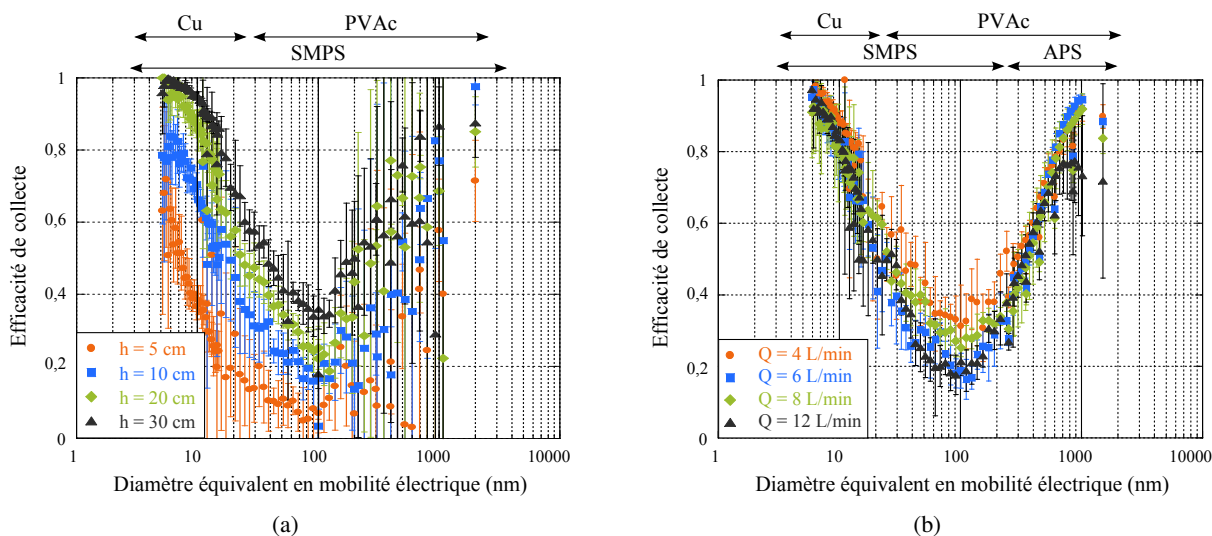


FIGURE 3.19 — Influence de la hauteur du liquide de piégeage (a) et du débit d'air à l'entrée de la colonne (b) sur l'efficacité de collecte des particules ultrafines.

### 3.5 Influence des caractéristiques de l'aérosol (charge électrique)

Dans la section 2.3 nous avons pu observer que les aérosols possèdent une charge électrique différente selon le diamètre des particules et que celle-ci peut varier lorsque l'aérosol est soumis à un environnement chargé en ions. De plus, la littérature montre que l'influence de cette propriété a été étudiée pour la collecte de particules à l'aide des filtres à fibres [46, 130–135], des lits granulaires [134, 136–139, 203] et des précipitateurs électrostatiques [140–145].

Tableau 3.6 — Valeurs de la charge et de l'efficacité globale de collecte pour les conditions de charge électrique testées.

|                                  | Charge naturelle | Charge positive | Charge négative | Charge neutre |
|----------------------------------|------------------|-----------------|-----------------|---------------|
| Charge globale (fA)              | -460             | +670            | -960            | 0             |
| Efficacité globale (% en nombre) | 47,93            | 39,93           | 44,91           | 48,77         |

Ainsi, des expériences ont été réalisées afin d'observer l'influence de la charge des particules sur l'efficacité de collecte de la colonne. La nature du liquide de collecte (eau déminéralisée), la plaque perforée (plaque 16-1/2), le débit d'air à l'entrée de la colonne (4 L · min<sup>-1</sup>) et le niveau du liquide de piégeage (20 cm) sont restés constants et les particules de PVAc de taille comprise entre 10 et 1000 nm ont été soumises à quatre charges électriques différentes. Les valeurs de l'efficacité globale de collecte et cette valeur de la charge globale des particules (mesurée à l'aide d'un électromètre TSI 3068B) sont présentées

dans le tableau 3.6. L'état de charge globale des particules pour les différentes conditions testées, ne semble pas présenter d'influence notable compte tenu des incertitudes de mesure. En effet, la comparaison des efficacités de collecte de particules non chargées et de particules préalablement chargées (positivement ou négativement) permet de conclure que la charge ne semble pas influencer le déplacement des particules dans la bulle et donc leur collecte dans le liquide de piégeage (cf. Figure 3.20).

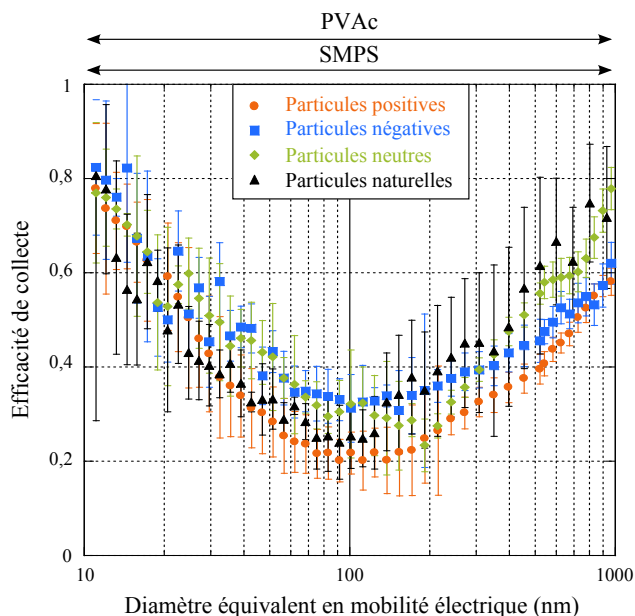


FIGURE 3.20 — Influence de la charge électrique des nanoparticules de PVAc sur l'efficacité de collecte.

### 3.6 Validation du modèle théorique pour la collecte de particules par une colonne à bulles

En vue de valider le modèle théorique développé par Fuchs [9] et Pich et Schütz [181] (cf. Section 3.1.2), les valeurs théoriques et expérimentales d'efficacité ont été comparées. Nous savons que l'efficacité de collecte théorique est fonction de la hauteur du liquide de piégeage mais également du coefficient global d'absorption, lequel dépend directement de la taille des bulles. Afin de connaître le diamètre des bulles générées par la plaque perforée de 16 orifices, nous avons réalisé des mesures à la caméra ultra-rapide pour différents débits d'air. Par ailleurs des calculs ont été effectués, aux mêmes conditions opératoires, à l'aide de plusieurs corrélations présentes dans la littérature (cf. Tableau 3.1).

Le diagramme de parité (cf. figure 3.21) montre que les corrélations de Winterson [164] et Akita et Yoshida [162] sous-estiment les valeurs des diamètres de bulles. Une explication serait que les équations ne sont qu'une fonction du diamètre de la colonne et des propriétés du liquide et non du diamètre des orifices. Par ailleurs, la surestimation de la taille des bulles par les corrélations de Davison et Schuler [158] et Van Krevelen et Hoftijzer [157] est liée à la forte valeur de la constante présente dans les équations. La corrélation qui s'approche le plus des valeurs expérimentales est la relation de Kumar et Kuloor [161]. Nous utiliserons donc cette relation pour calculer le diamètre des bulles à intégrer dans le modèle de Fuchs et Pich et Schütz pour calculer la valeur théorique de l'efficacité de collecte.

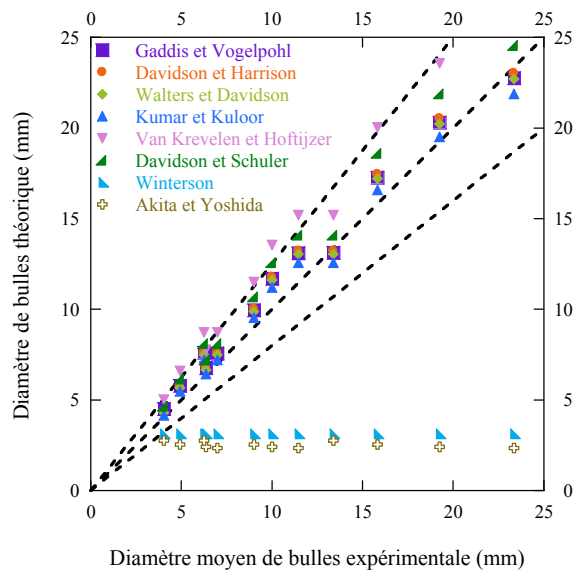


FIGURE 3.21 — Diagramme de parité entre les valeurs des diamètres des bulles observés à la caméra ultra-rapide et ceux calculés par différentes corrélations.

Pour une hauteur de 20 cm de liquide et un débit d'air de  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  à l'entrée de la colonne, les efficacités fractionnelles expérimentales et théoriques ont été comparées (cf. Figure 3.22).

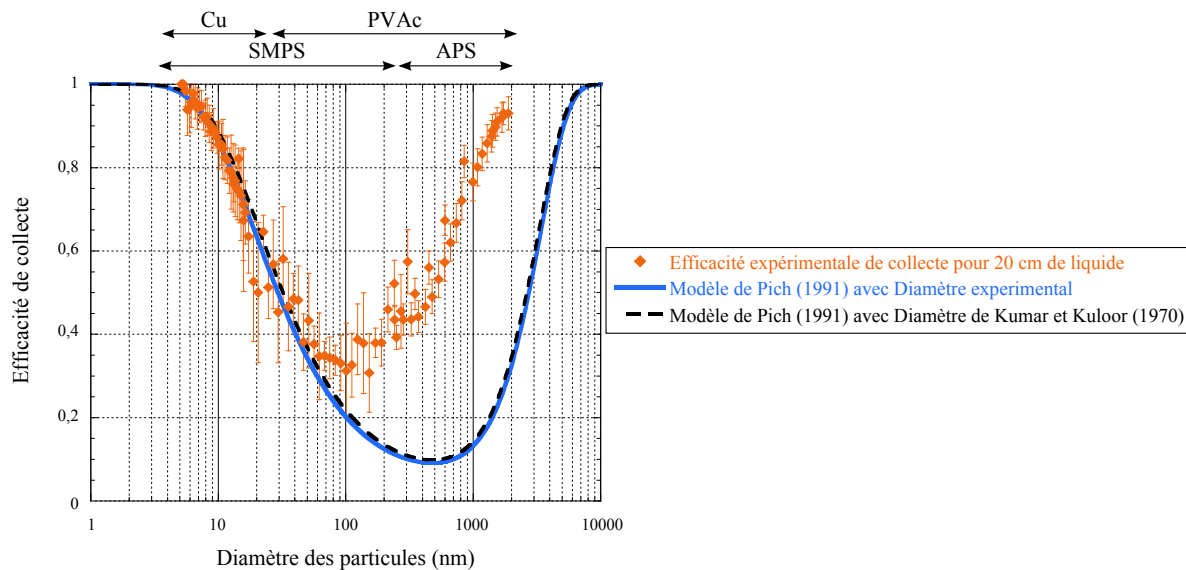
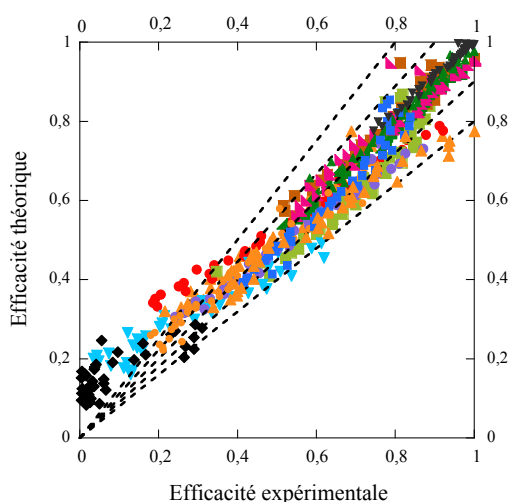


FIGURE 3.22 — Comparaison entre les résultats expérimentaux et le modèle de Pich et Schütz. (Colonne à bulles avec 20 cm de liquide et un débit de  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ )

Le modèle de Pich et Schütz traduit bien l'évolution de l'efficacité dans le domaine diffusionnel mais sous-estime l'efficacité dans le domaine inertiel. Cet écart important pourrait être attribué à un mécanisme de collecte supplémentaire. Cependant l'influence de la charge électrique des particules semble négligeable et un mécanisme d'interception semble peu probable étant donné le ratio très important entre le diamètre des particules et celui des bulles [181]. De plus, les particules de PVAc peuvent être considérées comme sphériques (cf. Section 2.2), en conséquence, la morphologie des particules ne peut pas expliquer l'écart entre les valeurs expérimentales et celles du modèle pour les particules de taille supérieure à 100 nm. Malgré la tendance des particules ultrafines à former des agglomérats et leur possible influence sur les

mécanismes de collecte, avec les différents aérosols utilisés lors de l'étude nous n'arrivons pas à générer des agglomérats ouverts de taille supérieure à 100 nm.

Ainsi, nous avons, appliqué le modèle de Pich et Schütz pour les différentes conditions opératoires testées, telles que, la taille et le nombre des orifices de la plaque perforée, la hauteur du liquide de collecte et le débit d'air à l'entrée de la colonne, dans le domaine diffusionnel. Nous avons constaté que le modèle théorique estime correctement les valeurs d'efficacité de collecte de nanoparticules obtenues expérimentalement pour les diamètres de particules entre 5 et 100 nm (cf. Figure 3.23). Chaque point de forme et couleur différentes correspond à une condition opératoire donnée et les points de même couleur correspondent à des tailles de particules différentes pour une même condition opératoire.



**FIGURE 3.23** – Diagramme de parité entre les valeurs des efficacités de collecte calculées par le modèle de Pich et les efficacités de collecte expérimentales dans le domaine diffusionnel.

La validation du modèle théorique de Pich et Schütz [181], sous les hypothèses de la taille et de la forme des bulles constantes tout au long de la hauteur de la colonne, nous permet de prédire l'efficacité maximale de collecte d'une colonne à bulles dans le domaine diffusionnel. Ainsi, pour un diamètre des bulles égal à 4 mm, nous pouvons calculer la hauteur de liquide à mettre en œuvre pour obtenir une efficacité de collecte de particules ultrafines proche de celle de médias fibreux (cf. Figure 3.24(a)).

Nous pouvons observer que pour avoir une efficacité minimale proche de celle d'un média fibreux, située autour de 95 %, il faut, au minimum, une hauteur de liquide de piégeage de 5 m, ce qui veut dire une perte de charge très importante et, par conséquent, un coût opérationnel élevé. A la vue de ces résultats, nous ne proposons pas une optimisation des performances de la colonne à bulles par une augmentation de la hauteur du liquide de piégeage. Si nous nous fixons une hauteur de liquide de collecte de 1 m, l'utilisation du modèle de Pich [181] permet de déterminer l'influence du diamètre des bulles sur l'efficacité de collecte (cf. Figure 3.24(b)). La diminution du diamètre des bulles d'un millimètre augmente considérablement l'efficacité de collecte, c'est la raison pour laquelle nous proposons une intensification des performances de filtration de la colonne à bulles par une diminution de la taille des bulles. Un fritté, qui permet de générer de bulles très fines ne peut être utilisé, à cause du phénomène de colmatage progressif de ce dernier (au cours du temps) (cf. Section 3.3). C'est la raison pour laquelle nous préférons nous orienter vers l'utilisation d'un garnissage pour diminuer la taille des bulles.



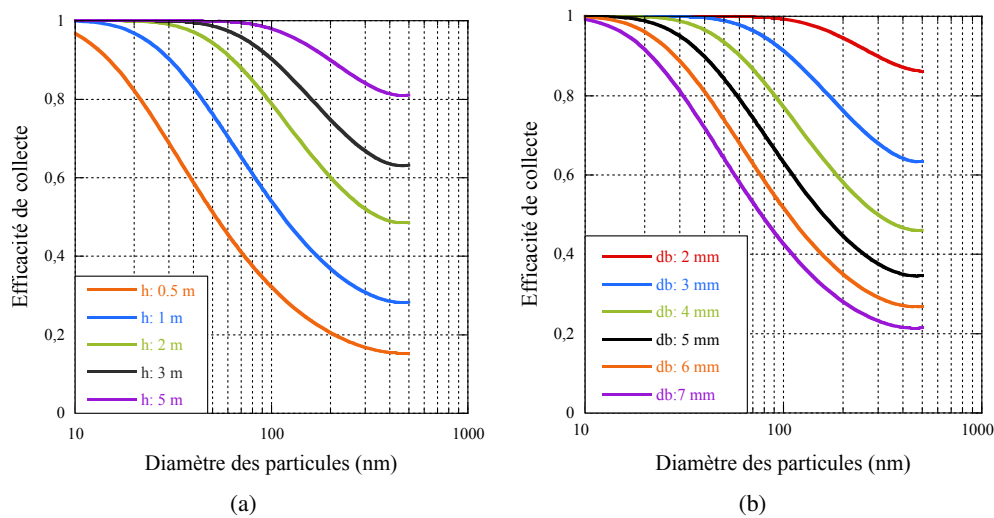


FIGURE 3.24 — Prédiction de l'efficacité de collecte: (a) pour différentes hauteurs de liquide de collecte et un diamètre des bulles égal à 4 mm et (b) pour différents diamètres de bulles et 1 m de liquide de collecte.

### 3.7 Optimisation de l'efficacité de collecte d'une colonne à bulles

Afin d'optimiser les performances de filtration de la colonne à bulles, nous avons testé l'influence de la présence d'un garnissage, constitué de billes sphériques, sur l'efficacité de collecte. En effet, des études sur l'hydrodynamique des colonnes à bulles ont mis en évidence que la présence d'un garnissage pouvait substantiellement réduire le phénomène de coalescence de bulles [5] et donc la taille de ces dernières, paramètre prépondérant dans l'efficacité de collecte.

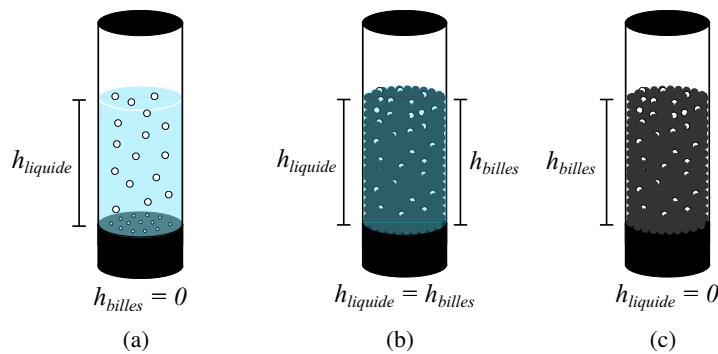


FIGURE 3.25 — Schémas de la colonne dans ses différentes configurations: (a) Colonne à bulles, (b) Colonne garnie et (c) Lit granulaire.

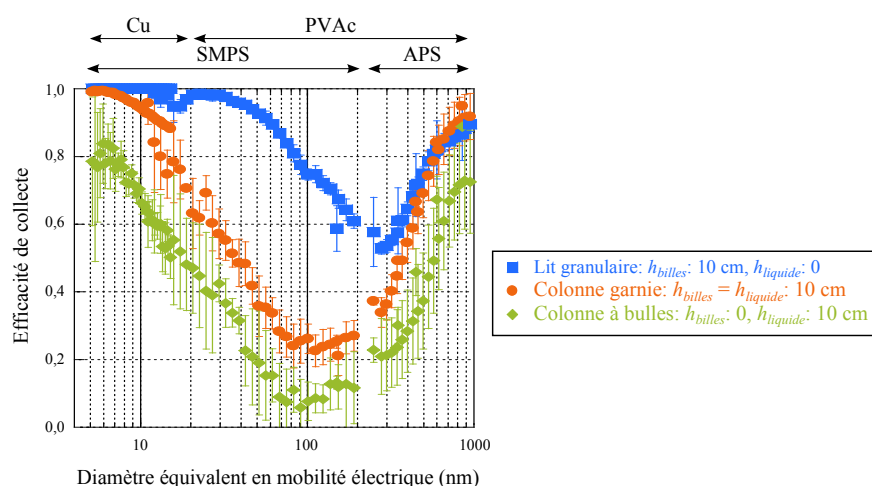
Des expériences ont été conduites dans trois configurations différentes (cf. Figure 3.25):

- (a) Colonne à bulles, soit 10 cm d'eau déminéralisée (cf. Figure 3.25(a))
- (b) Colonne garnie (cf. Figure 3.25(b)), soit 10 cm de billes de verre de 2,75 mm de diamètre dans 10 cm d'eau déminéralisée
- (c) Lit granulaire (cf. Figure 3.25(c)), soit 10 cm de billes de verre de 2,75 mm de diamètre



Les performances de collecte d'une colonne à bulles et d'une colonne garnie ont été confrontées à celles d'un lit granulaire vis-à-vis de particules de cuivre et de PVAc pour un débit d'air dans la colonne égal à  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  (cf. Figure 3.26). Nous pouvons noter une nette amélioration de l'efficacité de collecte des particules ultrafines lors du passage de la colonne à bulles au lit granulaire immergé. Cette amélioration des performances par l'ajout d'un garnissage ne permet néanmoins pas d'atteindre l'efficacité de collecte d'un lit granulaire composé de 10 cm de billes. Cependant, l'utilisation d'un lit granulaire (non immergé) aboutirait aux mêmes problèmes qu'un média fibreux, à savoir le colmatage progressif et la nécessité de décolmater régulièrement le lit pour abaisser la perte de charge. Par contre, l'utilisation d'un garnissage immergé dans la colonne à bulles permet d'augmenter les performances de cette dernière tout en permettant la collecte des particules ultrafines dans la phase liquide.

Afin d'augmenter les performances de ce système, une étude spécifique a été réalisée pour étudier l'influence des caractéristiques du garnissage (diamètre et densité des billes) et la hauteur de garnissage mise en œuvre.



**FIGURE 3.26** — Efficacité de collecte des différentes configurations d'une colonne à bulles ( $Q = 4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ ): ♦ Colonne à bulles: 10 cm d'eau déminéralisée, ■ Colonne garnie: 10 cm de billes de verre de 2,75 mm de diamètre dans 10 cm d'eau déminéralisée et ● Lit granulaire: 10 cm de billes de verre de 2,75 mm de diamètre.

### 3.7.1 Influence de la taille des billes composant la colonne garnie

L'efficacité fractionnelle de collecte d'une colonne garnie constituée de 20 cm de garnissage dans 20 cm de liquide de piégeage (eau déminéralisée) a été déterminée à un débit de  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  pour trois différentes tailles de billes de verre (1,5, 2,75 et 4,7 mm) (cf. Figure 3.27). L'influence de ce paramètre a été testée à la fois sur un aérosol constitué de particules de cuivre (entre 5 et 20 nm) et sur un aérosol constitué de particules de PVAc (entre 20 et 1000 nm).

Ces expériences montrent qu'une diminution du diamètre des billes de verre entraîne une augmentation de l'efficacité de collecte. Ce phénomène pourrait s'expliquer par la présence de pores plus petits au sein de la colonne garnie composée de billes de 1,5 mm de diamètre et donc par la formation de bulles d'air plus « écrasées » ce qui faciliterait la collecte des particules dans les bulles au cours de leur ascension dans la colonne.

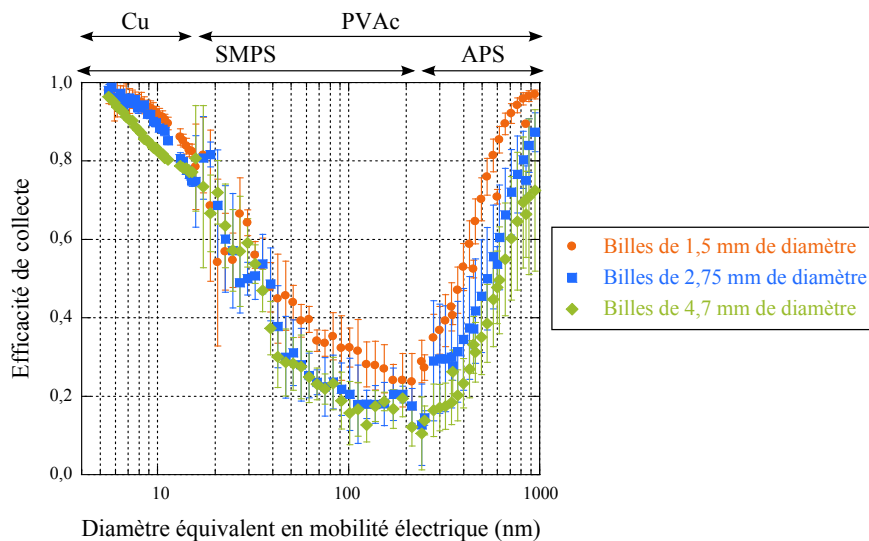


FIGURE 3.27 — Influence de la taille des billes de verre d'une colonne garnie sur l'efficacité de collecte des particules ultrafines.

Fort de ces observations, des expériences ont également été réalisées avec une colonne garnie composée de billes de 0,7 mm de diamètre mais l'importante diminution de la masse des billes entraîne un soulèvement du lit et la création de passages préférentiels (cf. Figure 3.28). Ces passages préférentiels de plusieurs centimètres engendrent la coalescence des bulles et sont donc à l'origine d'une diminution drastique de l'efficacité de collecte.

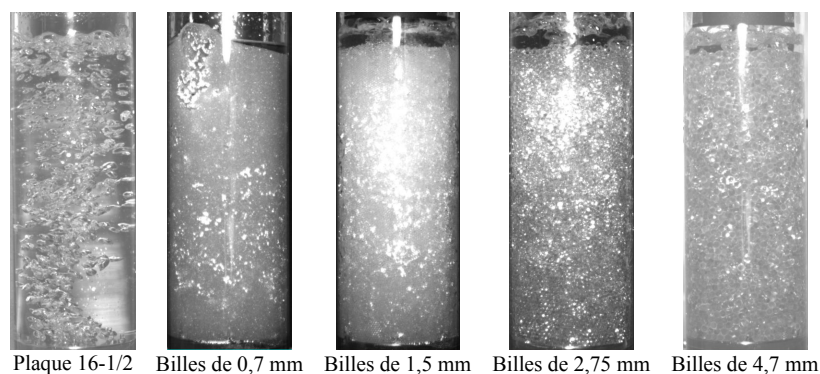


FIGURE 3.28 — Images de la colonne garnie avec des billes de verre de différentes tailles.

### 3.7.2 Influence de la hauteur de la colonne garnie

Les expériences réalisées précédemment avec la colonne à bulles sans garnissage ont montré une influence du niveau du liquide de piégeage, c'est-à-dire du temps de séjour, sur l'efficacité de collecte des particules ultrafines. Suite à ces résultats nous avons testé différentes hauteurs de la colonne garnie ( $h_{\text{liquide}} = h_{\text{billes}}$ : 10, 20 et 30 cm), composé de billes de verre de 1,5 mm de diamètre et pour un débit d'air à l'entrée de la colonne de  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ .

Les résultats présentés dans la figure 3.29 mettent en évidence une augmentation de l'efficacité de collecte avec l'augmentation de la hauteur du lit granulaire immergé. En fait, la présence du lit granulaire immergé augmente la tortuosité du milieu, augmentant par conséquent le temps de séjour des bulles dans la colonne et donc la probabilité des particules de l'aérosol d'arriver à l'interface air-liquide pour être collectées dans le liquide.

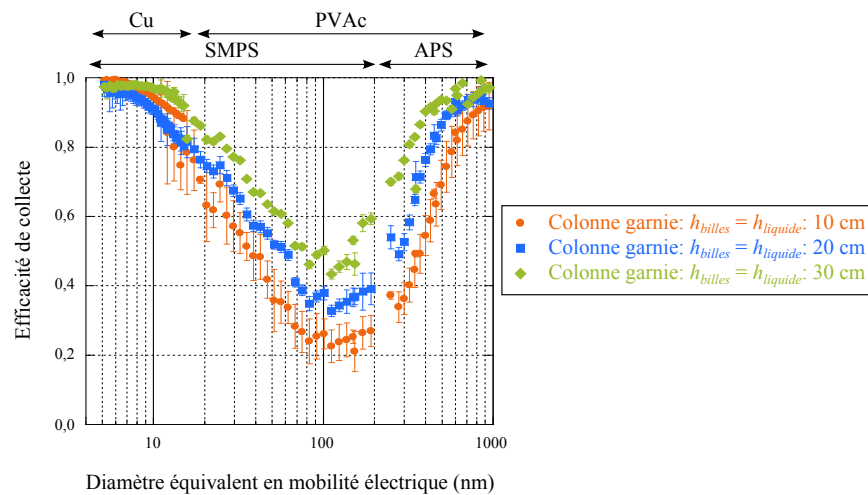


FIGURE 3.29 – Influence de la hauteur de la colonne garnie (billes de verre de 1,5 mm de diamètre) sur l'efficacité de collecte des particules ultrafines.

Ce phénomène a également été observé lors des expériences à différentes hauteurs de liquide de collecte (cf. Section 3.4). Les valeurs d'incertitude plus élevées dans le cas d'une colonne garnie de 10 cm s'expliquent par la faible masse totale du lit immergé, qui favorise une légère fluidisation des billes, et en conséquence les mesures de l'efficacité de collecte fluctuent d'une expérience à l'autre. Ce phénomène est moins marqué pour les colonnes garnies de 20 et 30 cm, plus denses.

### 3.7.3 Influence du matériau des billes du garnissage

Nous avons observé une légère augmentation de l'efficacité de collecte des particules ultrafines avec la diminution de la taille des billes du garnissage. Par contre, l'utilisation des billes de verre de taille inférieure à 1,5 mm génère des passages préférentiels au sein du lit granulaire, provoquant une diminution de l'efficacité de collecte. Pour vérifier que le déplacement du lit granulaire lors du passage de l'air était assujéti à la densité du matériau, nous avons réalisé des expériences avec des billes de 1,5 mm de diamètre en verre d'une part et en acier inoxydable AISI 420C d'autre part, de masse volumique égale à 2,53 et 7,75 g · cm<sup>-3</sup>, respectivement.

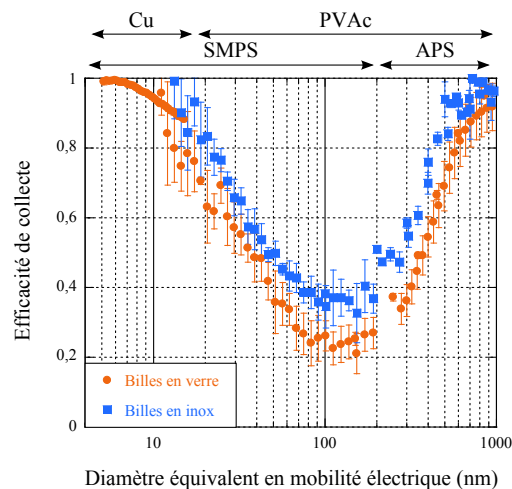


FIGURE 3.30 – Influence de la masse volumique des billes de 1,5 mm de diamètre composant une colonne garnie sur l'efficacité de collecte de particules ultrafines.

Les expériences réalisées avec 10 cm de billes immergées dans 20 cm d'eau déminéralisée avec un débit d'air à l'entrée de la colonne de  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  montrent une augmentation de l'efficacité de collecte avec l'utilisation des billes de masse volumique élevée (cf. Figure 3.30). Ainsi, si nous avons observé un déplacement des billes de verre lors du passage du gaz et non une fragmentation des bulles comme escompté, un lit de billes de faible diamètre et de masse volumique importante supprime ce phénomène. Cette configuration aboutit à la formation de bulles plus fines que celles générées par la plaque perforée de 16 orifices de  $500 \mu\text{m}$  de diamètre et que le garnissage composé de billes de verre. Ce comportement, peut s'expliquer par la forte masse volumique des billes métalliques, laquelle évite la formation des passages préférentiels et entraîne la formation de bulles très fines.

### 3.7.4 Garnissage immergé composé de billes en acier inoxydable

Après avoir mis en évidence l'influence de la présence d'un garnissage immergé, de la taille des billes et de leur masse volumique sur l'efficacité de collecte des nanoparticules, nous nous sommes focalisés sur un garnissage immergé composé de billes en acier inoxydable AISI 420C. L'étape suivante a donc été de chercher à optimiser davantage les performances de la colonne en jouant sur la hauteur du lit granulaire et du liquide de piégeage, la taille des billes métalliques, le débit d'air à l'entrée de la colonne, le support du lit granulaire immergé et différentes configurations d'un lit granulaire bi-couche (cf. Figure 3.31).

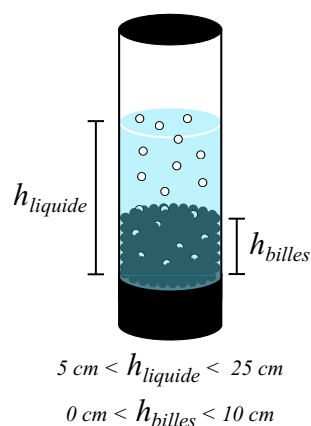


FIGURE 3.31 — Schéma de la configuration de la colonne à bulles avec une garnissage de hauteur variable immergé dans 20 cm de liquide de collecte.

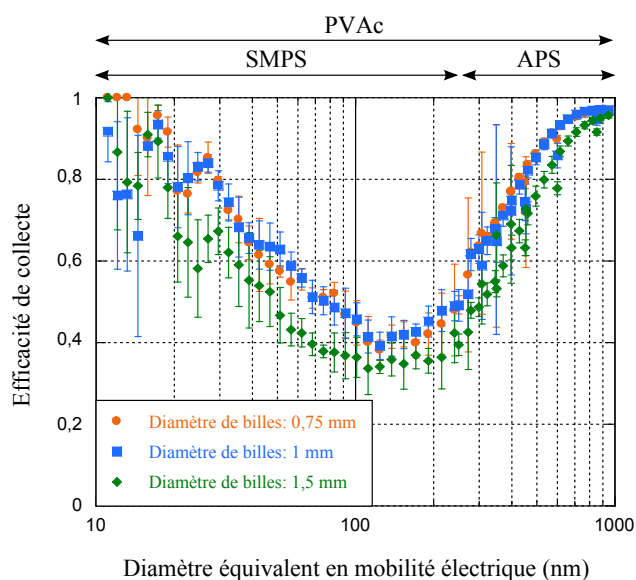
#### 3.7.4.1 Influence de la taille des billes d'un lit granulaire immergé

La taille nominale des billes qui constituent le garnissage doit résulter d'un compromis entre les petites tailles qui favorisent la formation de petites bulles et les plus grosses qui diminuent la perte de charge de la colonne. Des billes en acier inoxydable de différentes tailles ont ainsi été testées afin d'observer l'influence de ce paramètre sur l'efficacité de collecte des particules ultrafines. Les valeurs de l'efficacité globale de collecte, de la perte de charge et du diamètre de bulles pour 5 cm de lit granulaire immergé dans 20 cm de liquide de piégeage pour différentes tailles de billes en acier inoxydable présentes dans le tableau 3.7 permettent de confirmer la relation directe entre la taille des billes et celle des bulles générées, ainsi, que l'influence du diamètre de ces dernières sur l'efficacité de collecte. Par contre, la perte de charge ne se voit pas affectée par les différentes tailles des billes métalliques, et cela réaffirme que ce paramètre est lié essentiellement à la hauteur de la colonne d'eau et non à la présence des billes.

**Tableau 3.7** – Valeurs de l'efficacité globale de collecte pour l'aérosol de PVAc, de la perte de charge et du diamètre de bulles pour 5 cm de lit granulaire immergé dans 20 cm de liquide de piégeage pour différentes tailles de billes en acier inoxydable.

|                                  | Taille des billes |                 |                 |
|----------------------------------|-------------------|-----------------|-----------------|
|                                  | 0,75 mm           | 1 mm            | 1,5 mm          |
| Efficacité globale (% en nombre) | 69,9              | 69,2            | 65,1            |
| Perte de charge (hPa)            | 27,9              | 27,9            | 27,6            |
| Diamètre moyen des bulles (mm)   | $2,59 \pm 0,04$   | $2,62 \pm 0,06$ | $3,13 \pm 0,03$ |

La figure 3.32 présente les efficacités de collecte de lits granulaires immergés composés de 5 cm de billes en acier inoxydable de 0,75, 1 et 1,5 mm de diamètre, pour un débit de  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  et une hauteur de liquide de collecte égale à 20 cm. Ces expériences montrent qu'une diminution du diamètre des billes entraîne une légère augmentation de l'efficacité de collecte.

**FIGURE 3.32** – Efficacité de collecte de particules ultrafines de 5 cm de lit granulaire immergé dans 20 cm de liquide de piégeage pour différentes tailles de billes en acier inoxydable.

Nous choisissons par la suite de travailler avec le lit granulaire immergé composé de billes de 1,5 mm de diamètre, malgré leur valeur d'efficacité légèrement inférieure à celles obtenues avec les billes plus fines (efficacité globale inférieure de 8,3 %), car la manipulation des billes de cette taille est plus simple lors d'une opération de filtration avec une colonne à bulles de taille industrielle.

#### 3.7.4.2 Influence des hauteurs de garnissage et de liquide

L'objectif de cette partie est d'évaluer la capacité de quelques centimètres de billes à générer des bulles relativement fines (plus petites qu'en sortie de la plaque perforée) de façon à optimiser les performances de collecte des particules ultrafines de la colonne.

Dans cette optique, nous avons mesuré l'efficacité de collecte ainsi que le diamètre des bulles pour 3, 5 et 10 cm de garnissage composé de billes en acier inoxydable de 1,5 mm de diamètre, à un débit d'air à l'entrée de la colonne de  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ , pour une hauteur totale d'eau déminéralisée de 20 cm. Les résultats ont été comparés aux valeurs d'efficacité et aux diamètres des bulles obtenues par la colonne à bulles avec la plaque  $16\text{--}1/2$  et 20 cm de liquide de piégeage, sans garnissage (cf. Figure 3.33).

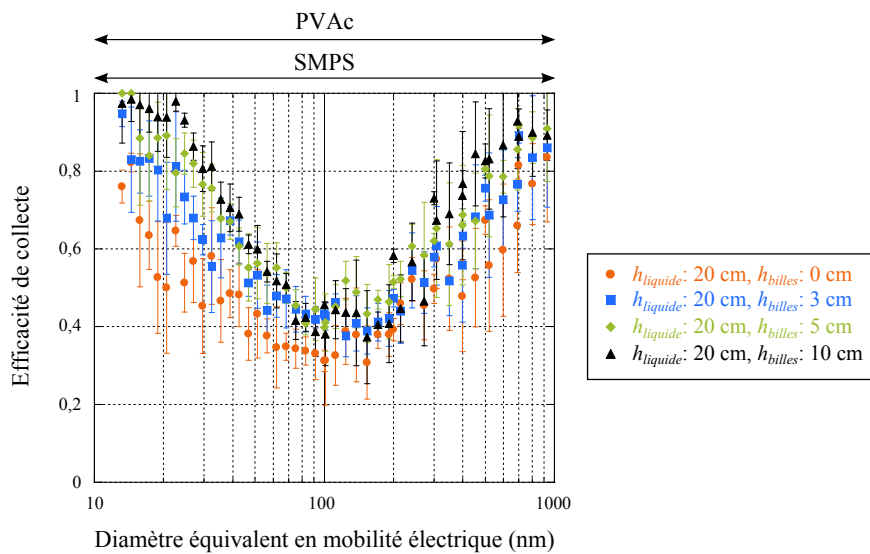


FIGURE 3.33 — Influence de la hauteur du garnissage immergé dans 20 cm de liquide piégeage sur l'efficacité de collecte de particules ultrafines.

Les résultats révèlent que la présence de quelques centimètres de billes de masse volumique importante est suffisante pour augmenter l'efficacité de collecte de particules ultrafines par une colonne à bulles. À partir de 5 cm, malgré l'augmentation de la hauteur du garnissage immergé, l'efficacité globale de collecte reste quasi invariable. Il est donc possible d'améliorer la performance de filtration de la colonne à bulles avec seulement 5 cm de garnissage immergé, ce qui nous permet également de limiter la perte de charge.

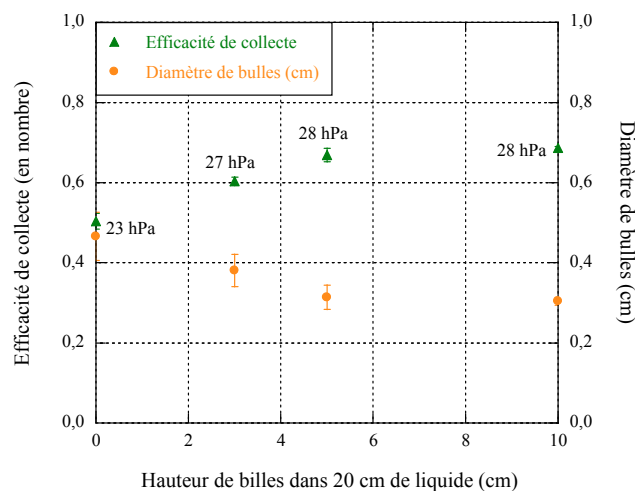


FIGURE 3.34 — Efficacité globale de collecte, perte de charge et diamètre de bulles pour les différentes hauteurs de garnissage immergées testées.

Puisque l'objectif de ces expériences est la génération de bulles très fines, nous avons fait des mesures à la caméra ultra-rapide afin de déterminer leur taille pour chacune des hauteurs de garnissage immergées testées. La figure 3.34 illustre les valeurs de l'efficacité globale de collecte pour des particules de PVAc de taille comprise entre 10 et 1000 nm, la perte de charge et la moyenne de 100 mesures du diamètre de bulles, pour les trois hauteurs de garnissage. Nous pouvons constater que l'augmentation de l'efficacité de collecte est liée directement à la diminution de la taille des bulles. Finalement, nous observons que la valeur de perte de charge pour chacune des hauteurs de garnissage est dominée par la colonne d'eau et non par la hauteur

des billes. Après avoir déterminé la hauteur optimale du garnissage immergé, nous nous sommes intéressés à la hauteur du liquide de collecte. Des expériences à  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  avec 5 cm de garnissage immergé dans quatre hauteurs de liquide de piégeage différentes, le tout supporté par la plaque 16-1/2, ont permis d'évaluer l'efficacité de collecte des particules. Les résultats illustrés dans la figure 3.35 confirment l'augmentation de l'efficacité de collecte avec la hauteur du liquide (cf. Section 3.4), cela veut dire que même si une partie des particules est collectée dans la partie de la colonne comprenant le garnissage, la hauteur du liquide de collecte joue un rôle indispensable en augmentant le temps de séjour dans la colonne.

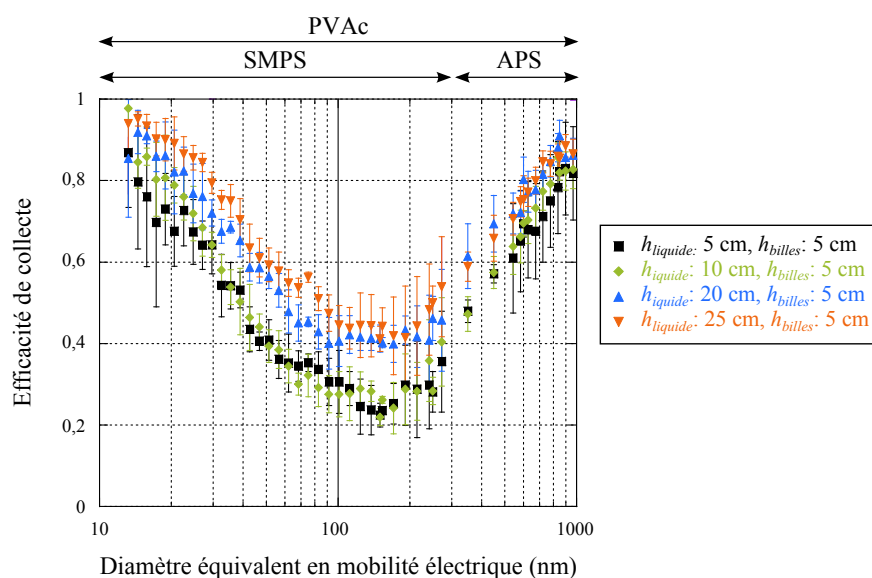


FIGURE 3.35 — Efficacité de collecte de particules ultrafines par une colonne à bulles sous l'influence de la hauteur d'eau déminéralisée avec 5 cm de garnissage immergé.

Les valeurs de la perte de charge et du diamètre des bulles obtenues sont présentées dans le tableau 3.8. Nous pouvons confirmer que la perte de charge est liée essentiellement à la hauteur de la colonne d'eau (cf. Figure 3.34). Nous avons observé que, pour les différentes hauteurs de liquide de collecte testées, le diamètre des bulles reste invariable.

Tableau 3.8 — Valeurs de l'efficacité globale de collecte pour l'aérosol de PVAc, de la perte de charge et du diamètre de bulles pour les différentes hauteurs de liquide de piégeage testées.

|                                  | Hauteur du liquide de piégeage |       |       |       |
|----------------------------------|--------------------------------|-------|-------|-------|
|                                  | 5 cm                           | 10 cm | 20 cm | 25 cm |
| Efficacité globale (% en nombre) | 52,2                           | 54,4  | 65,1  | 67,5  |
| Perte de charge (hPa)            | 13,2                           | 18,3  | 27,6  | 32,8  |
| Diamètre moyen des bulles (mm)   | — 3,13 ± 0,03                  |       |       |       |

En conclusion, une hauteur de 5 cm de garnissage immergé, composé de billes inox de 1,5 mm de diamètre, dans 20 cm de liquide de collecte améliore les performances de la colonne à bulles. En effet, nous obtenons une efficacité globale de collecte de 65,1 %, une perte de charge égale à 27,6 hPa et un diamètre des bulles de  $(3,13 \pm 0,03)$  mm, tandis que la colonne à bulles avec 20 cm de liquide de piégeage mais sans garnissage immergé présente une efficacité globale de collecte de 50,4 %, une perte de charge égale à 23,7 hPa et un diamètre des bulles de  $(4,66 \pm 0,06)$  mm.



3.7.4.3 Influence du débit d’air à l’entrée de la colonne

L’influence du débit d’air sur l’efficacité de collecte des particules ultrafines et sur la perte de charge a été testée avec un garnissage composé de 5 cm de billes en acier inoxydable de 1,5 mm de diamètre dans 20 cm d’eau déminéralisée pour des débits compris entre 3 et 33 L · min<sup>-1</sup> (valeurs limites d’opération de la colonne à bulles). Les valeurs de l’efficacité globale de collecte et de la perte de charge pour chacune des conditions sont présentées dans le tableau 3.9.

Tableau 3.9 – Valeurs de l’efficacité globale de collecte et de la perte de charge pour les différents débits d’air testés.

|                                  | Débit d’air à l’entrée de la colonne (L · min <sup>-1</sup> ) |      |      |      |      |       |       |
|----------------------------------|---------------------------------------------------------------|------|------|------|------|-------|-------|
|                                  | 4                                                             | 6    | 8    | 12   | 18   | 25    | 33    |
| Efficacité globale (% en nombre) | 65,6                                                          | 53,2 | 57,7 | 53,7 | 52,5 | 52,0  | 52,8  |
| Perte de charge (hPa)            | 27,6                                                          | 28,7 | 32,2 | 43,2 | 74,7 | 126,7 | 166,7 |

Nous pouvons observer une valeur maximale d’efficacité pour l’expérience réalisée à 4 L · min<sup>-1</sup>. Afin de mieux comprendre le phénomène nous avons tracé l’efficacité fractionnelle de collecte pour les débits compris entre 4 et 12 L · min<sup>-1</sup> (cf. Figure 3.36).

Une diminution de l’efficacité de collecte avec l’augmentation du débit d’air dans la colonne est observée, ce phénomène peut s’expliquer par une augmentation de la taille des bulles. De plus, lors des expériences, nous avons pu observer que le régime hydrodynamique pour les débits d’air supérieurs à 12 L · min<sup>-1</sup> n’est plus homogène, mais à bouchons (cf. Figure 3.2). La conséquence de ce changement de régime est la génération de bulles de diamètre plus important et donc une diminution de l’efficacité de collecte.

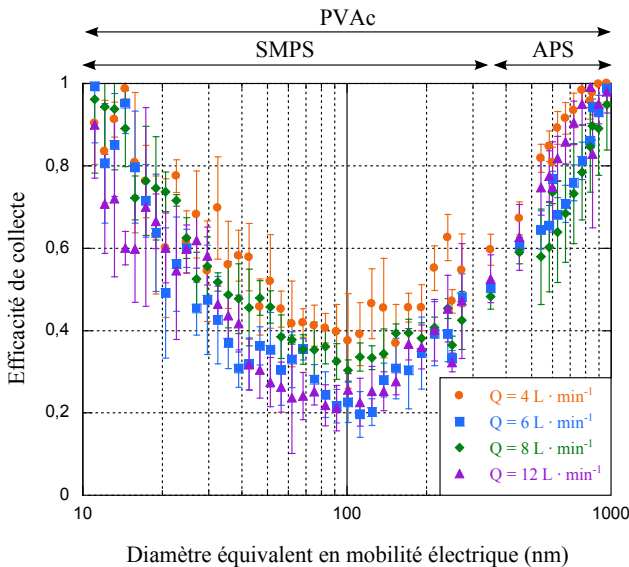


FIGURE 3.36 – Efficacité de collecte de particules ultrafines de 5 cm de lit granulaire immergé composé de billes métalliques de 1,5 mm de diamètre dans 20 cm de liquide de piégeage en fonction du débit d’air à l’entrée de la colonne.

Puisque nous avons observé une efficacité de collecte maximale à 4 L · min<sup>-1</sup> avec une valeur de perte de charge limitée, nous avons décidé de conserver ce débit pour la suite des expériences. A noter que pour



de débits inférieurs à  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  le régime de bullage dans la colonne n'est pas homogène, c'est la raison pour laquelle nous nous sommes limités à cette valeur.

#### 3.7.4.4 Influence du support du lit granulaire immergé

Nous avons établi des conditions opératoires qui permettent d'augmenter les performances de filtration de la colonne à bulles, tels que:

- Le support du garnissage: plaque 16–1/2
- La hauteur et nature du liquide de piégeage: 20 cm d'eau déminéralisée.
- La hauteur, le diamètre et la nature de billes le composant: 5 cm de billes en acier inoxydable AISI 420C de 1,5 mm de diamètre.
- La vitesse d'air par orifice:  $21,2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ .

A présent, nous nous intéressons à la perte de charge, paramètre important pour le fonctionnement d'un séparateur au niveau industriel. Pour cela, nous conservons les conditions listées hormis le type de support. Ainsi, nous testons la plaque 32–1/2, la plaque 110–1 et la toile métallique Inox355. Les valeurs de l'efficacité globale de collecte de particules de PVAc et de la perte de charge pour les différents supports testés, ainsi que celles obtenues avec la plaque 16–1/2 sont présentées dans le tableau 3.10.

**Tableau 3.10** – Valeurs de l'efficacité globale de collecte de particules de PVAc et de la perte de charge pour les supports du lit granulaire immergé.

|                                  | Type de support du garnissage immergé |               |              |         |
|----------------------------------|---------------------------------------|---------------|--------------|---------|
|                                  | Plaque 16–1/2                         | Plaque 32–1/2 | Plaque 110–1 | Inox355 |
| Efficacité globale (% en nombre) | 65,1                                  | 57,1          | 46,4         | 54,4    |
| Perte de charge (hPa)            | 27,6                                  | 27,7          | 23,2         | 20,7    |

Nous observons que le fait de doubler le nombre des orifices d'une plaque, en conservant leur taille (plaques 16–1/2 et 32–1/2), engendre une diminution de l'efficacité de collecte sans modification notable de la perte de charge. Les valeurs de la perte de charge très similaires entre les trois plaques perforées sont liées à la vitesse du gaz par orifices, puisque ce paramètre est important lors de la génération des bulles nous avons toujours réalisé les expériences avec la même vitesse par orifice ( $21,2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ), de plus la hauteur du garnissage était la même pour chaque support.

Si nous analysons les valeurs de l'efficacité de collecte, nous observons une diminution avec l'augmentation du nombre d'orifices de même diamètre. Ce phénomène peut s'expliquer par le débit total d'air qui traverse la colonne à bulles, c'est-à-dire, selon le nombre et la taille des orifices de la plaque perforée, le débit d'air devra être modifié pour assurer la même vitesse de l'air par orifice. Ainsi, pour la plaque 16–1/2 le débit total est égal à  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ , pour la plaque 32–1/2 nous avons  $8 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  et pour la plaque 110–1,  $110 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ . En conséquence, une colonne à bulles équipée de la plaque de 16 orifices se trouve dans un régime laminaire ( $Re = 700$ ), où le risque de coalescence des bulles est négligeable. Avec la plaque de 32 orifices le bullage est proche du régime de transition ( $Re = 1400$ ), pour lequel la probabilité de coalescence des bulles augmente. Pour la plaque de 110, le régime turbulent ( $Re = 20\,000$ ) favorise le contact entre les bulles et leur coalescence. Notons que la taille initiale des bulles n'a pas été modifiée, mais à cause du régime turbulent, elles coalescent, ce qui ne favorise pas la collecte des particules.

Ainsi, la plaque 16-1/2 s'avère être le support le plus performant. La toile métallique pourrait être intéressante dans le cas des aérosols très concentrés (concentrations supérieures à  $10 \cdot 10^7$  particules  $\cdot$  cm<sup>-3</sup>), qui pourraient obstruer les orifices de la plaque perforée.

### 3.7.4.5 Variation de la composition d'un lit granulaire immergé bi-couche

Afin de réduire la taille des bulles dans le but de limiter la valeur de la perte de charge et augmenter l'efficacité de collecte des particules, nous avons également réalisé des expériences pour plusieurs configurations d'un garnissage bi-couche.

**Tableau 3.11** – Configurations de la composition du lit granulaire immergé.

| Type de billes                           | Niveau de billes (cm) |     |     |     |     |
|------------------------------------------|-----------------------|-----|-----|-----|-----|
|                                          | 0-5                   | 1-4 | 2-3 | 3-2 | 5-0 |
| Billes de verre de 2,75 mm de diamètre   | 0                     | 1   | 2   | 3   | 5   |
| Billes métalliques de 1,5 mm de diamètre | 5                     | 4   | 3   | 2   | 0   |

La plaque 16-1/2 sert de support à un garnissage bi-couche (cf. Tableau 3.11), la première section contient quelques centimètres de billes de verre de 2,75 mm de diamètre lesquelles produisent une faible perte de charge mais des bulles de diamètre important et présentent donc une efficacité de collecte limitée. La seconde section, superposée à la première, est composée de billes en acier inoxydable de 1,5 mm de diamètre. L'objectif de cette dernière couche de billes de masse volumique importante est de limiter les passages préférentiels au sein du lit de billes et ainsi réduire la taille de bulles. Le tableau 3.12 présente l'efficacité globale de collecte et la perte de charge pour les conditions testées.

**Tableau 3.12** – Valeurs de l'efficacité globale de collecte pour l'aérosol de PVAc et de la perte de charge pour les différentes configurations de garnissage immergé.

|                                  | Niveau de billes (cm) |      |      |      |      |
|----------------------------------|-----------------------|------|------|------|------|
|                                  | 0-5                   | 1-4  | 2-3  | 3-2  | 5-0  |
| Efficacité globale (% en nombre) | 63,7                  | 43,0 | 45,4 | 40,3 | 54,3 |
| Perte de charge (hPa)            | 27,9                  | 25,6 | 26,4 | 25,7 | 25,5 |

A partir des résultats d'efficacité de collecte obtenus pour les différentes configurations du lit granulaire immergé, nous pouvons conclure que l'utilisation d'un mélange de billes de différents diamètres engendre des efficacités moindres que le garnissage composé d'un seul type de billes. En effet, les deux types de billes se mélangent à l'interface des couches favorisant les passages préférentiels et donnant lieu à des bulles de taille plus importante que celles obtenues avec les garnissages mono-couches. Les pertes de charge étant globalement fonction de la hauteur de liquide, peu de différences sont observées entre les configurations.

### 3.7.4.6 Facteur de qualité, $q_F$

Suite aux résultats obtenus nous nous sommes intéressés à l'évaluation des performances de la colonne à bulles (en termes non seulement d'efficacité mais également de dépense énergétique) à l'aide du facteur de qualité,  $q_F$  (Équation 3.34), lequel représente le rapport entre l'efficacité de collecte des particules et la perte de charge ( $\Delta P$ ) [12,204,205]. Une bonne performance de la colonne à bulles signifie avoir une grande efficacité de collecte pour une perte de charge minimale.

$$q_F = \frac{-\ln P}{\Delta P} = \frac{-\ln(1 - \eta)}{\Delta P} \quad (3.34)$$

Afin de déterminer les meilleures conditions opératoires de la colonne à bulles, nous avons déterminé le facteur de qualité pour les différents paramètres opératoires de la colonne à bulles avec un garnissage immergé composé de billes en acier inoxydable ainsi que la puissance énergétique ( $P_h = \Delta P \cdot Q_g$ ) nécessaire pour le fonctionnement de la colonne. La valeur de  $q_F$  pour chaque condition opératoire est présentée dans le tableau 3.13.

**Tableau 3.13** – Valeurs du facteur de qualité pour les différentes conditions opératoires de la colonne à bulles avec un garnissage immergé composé de billes en acier inoxydable.

| Conditions opératoires                                                                                                                                                                                                    |                          | $q_F$ (hPa <sup>-1</sup> ) | $P_h$ (W) | $\eta_L$ | $\Delta P$ (hPa) |
|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------|----------------------------|-----------|----------|------------------|
| Hauteur du garnissage immergé ( $\phi_{billes}$ de 1,5 mm) dans 20 cm de liquide, supporté par la plaque 16-1/2 et un débit d'air à l'entrée de la colonne de 4 L · min <sup>-1</sup>                                     | 0 cm                     | 0,0295                     | 0,158     | 50,39    | 23,73            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 3 cm                     | 0,0337                     | 0,183     | 60,35    | 27,43            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 5 cm                     | 0,0397                     | 0,186     | 66,91    | 27,86            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 10 cm                    | 0,0408                     | 0,189     | 68,64    | 28,39            |
| Hauteur du liquide de piégeage avec un garnissage immergé de 5 cm de hauteur composé de billes de 1,5 mm de diamètre, supporté par la plaque 16-1/2 et un débit d'air à l'entrée de la colonne de 4 L · min <sup>-1</sup> | 5 cm                     | 0,0560                     | 0,088     | 52,16    | 13,16            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 10 cm                    | 0,0403                     | 0,122     | 54,39    | 18,27            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 20 cm                    | 0,0382                     | 0,184     | 65,09    | 27,56            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 25 cm                    | 0,0343                     | 0,218     | 67,54    | 32,76            |
| Débit d'air à l'entrée de la colonne composée de 5 cm de garnissage immergé ( $\phi_{billes}$ de 1,5 mm) dans 20 cm de liquide, supporté par la plaque 16-1/2                                                             | 4 L · min <sup>-1</sup>  | 0,0388                     | 0,184     | 65,66    | 27,55            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 6 L · min <sup>-1</sup>  | 0,0264                     | 0,429     | 57,73    | 32,19            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 8 L · min <sup>-1</sup>  | 0,0268                     | 0,287     | 53,16    | 28,68            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 12 L · min <sup>-1</sup> | 0,0179                     | 0,834     | 53,79    | 43,19            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 18 L · min <sup>-1</sup> | 0,0010                     | 2,241     | 52,48    | 74,69            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 25 L · min <sup>-1</sup> | 0,0058                     | 5,279     | 52,03    | 126,69           |
| Type de support pour 5 cm de garnissage immergé ( $\phi_{billes}$ de 1,5 mm) dans 20 cm de liquide à 4 L · min <sup>-1</sup> comme débit d'air                                                                            | Plaque 16-1/2            | 0,0382                     | 0,184     | 65,09    | 27,55            |
|                                                                                                                                                                                                                           | Plaque 32-1/2            | 0,0306                     | 0,184     | 57,07    | 27,66            |
|                                                                                                                                                                                                                           | Plaque 110-1             | 0,0269                     | 0,154     | 46,39    | 23,16            |
|                                                                                                                                                                                                                           | Inox355                  | 0,0380                     | 0,138     | 54,41    | 20,65            |
| Diamètre des billes en acier inoxydable composant 5 cm de garnissage immergé dans 20 cm de liquide, supporté par la plaque 16-1/2 et un débit d'air à l'entrée de la colonne de 4 L · min <sup>-1</sup>                   | 0,75 mm                  | 0,0429                     | 0,186     | 69,86    | 27,95            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 1 mm                     | 0,0422                     | 0,186     | 69,15    | 27,86            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 1,5 mm                   | 0,0381                     | 0,185     | 65,27    | 27,75            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 0-5                      | 0,0362                     | 0,186     | 63,67    | 27,95            |
| Configuration de 5 cm de garnissage immergé dans 20 cm de liquide à 4 L · min <sup>-1</sup> comme débit d'air                                                                                                             | 1-4                      | 0,0219                     | 0,171     | 43,00    | 25,61            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 2-3                      | 0,0229                     | 0,176     | 45,39    | 26,42            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 3-2                      | 0,0200                     | 0,172     | 40,28    | 25,73            |
|                                                                                                                                                                                                                           | 5-0                      | 0,0307                     | 0,170     | 54,32    | 25,55            |

La valeur de  $q_F$  en bleu correspond à la performance de la colonne à bulles avec la plaque 16-1/2 qui supporte 20 cm de liquide de collecte à un débit d'air à l'entrée de 4 L · min<sup>-1</sup>. Nous pouvons remarquer que la plupart des conditions testées permettent d'augmenter la performance du séparateur vis-à-vis des particules ultrafines.

Les valeurs en rouge signalent les conditions opératoires sélectionnées. Nous avons choisi de travailler avec une hauteur de garnissage 5 cm car le facteur de qualité n'est pas très différent de celui des 10 cm et cette hauteur est plus intéressante pour une colonne à bulles à niveau industriel en termes de perte de

charge, ce qui se traduit par une faible valeur de la puissance énergétique,  $P_h$ . Pour la colonne à bulles avec un garnissage immergé de 5 cm dans 5 et 10 cm de hauteur de liquide de collecte (deuxième condition opératoire), la valeur de  $q_F$  est particulièrement élevée. Cela s'explique par la faible valeur de la perte de charge laquelle est liée directement à la hauteur du liquide et non par une augmentation de l'efficacité de collecte, ce qui fait que le rapport entre le logarithme de la pénétration et la perte de charge soit assez élevé. La raison pour laquelle nous avons choisi un garnissage de billes de 1,5 mm de diamètre est la facilité de manipulation lors d'une opération de filtration avec une colonne à bulles de taille industrielle. Pour le support, le débit d'air à l'entrée de la colonne et la configuration du garnissage, les valeurs choisies correspondent à celles qui ont donné la valeur de  $q_F$  la plus élevée.

### 3.8 Performances d'une colonne à bulles au cours du temps

Les configurations et les conditions opératoires de la colonne à bulles choisies précédemment permettant d'obtenir une efficacité de collecte élevée mais qui reste encore inférieure à celle des médias fibreux. Dans ce chapitre nous nous intéressons aux performances de la colonne à bulles au cours du temps. Des essais portant sur le suivi de l'évolution de l'efficacité de collecte et le temps de saturation du liquide de piégeage ont été menés sur le banc de métallisation de l'INRS qui permet de générer des fumées de métallisation dans des concentrations élevées et proches des conditions réelles. Une attention particulière a été portée sur la possible remise en suspension des particules collectées dans le liquide.

#### 3.8.1 Banc de métallisation

Le banc de métallisation de l'INRS utilisé pour tester les performances de la colonne à bulles au cours du temps est illustré figure 3.37. L'aérosol est généré au sein de la chambre de métallisation à l'aide d'un pistolet de type arc électrique (Margarido M25) alimenté par deux fils d'alliage Zn (85 %)/Al (15 %) ( $\phi$  2 mm–120 A). Une partie des particules produites est projetée sur un cylindre métallique en rotation. Les particules les plus lourdes sédimentent et sont récupérées dans un bac situé dans la chambre (le détail du principe de la génération de particules par métallisation est décrit dans la section 2.1).

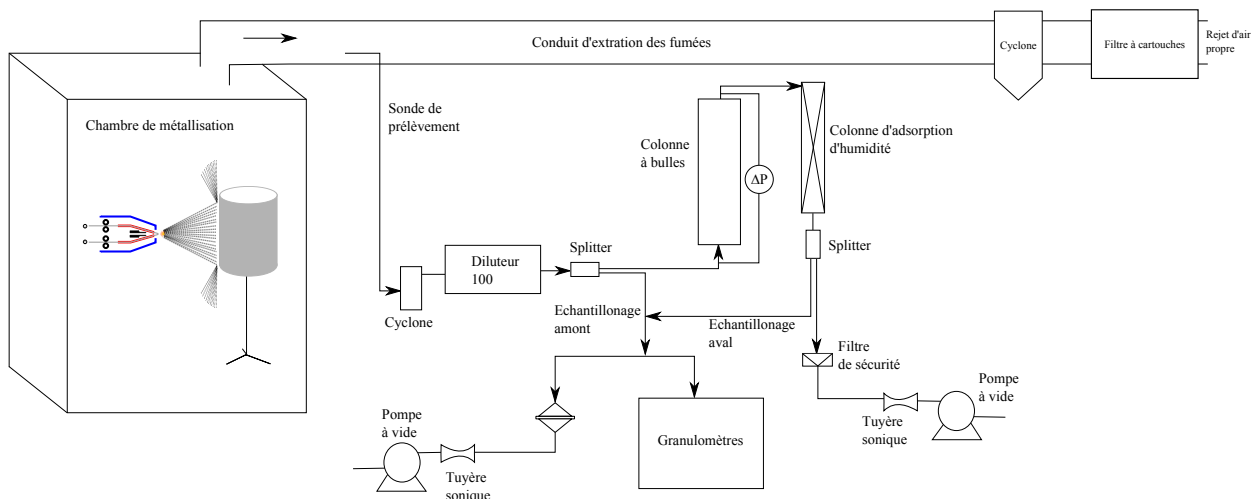


FIGURE 3.37 — Montage de la colonne à bulles dans le banc de métallisation pour la mesure de l'efficacité de collecte

Les particules les plus fines (90 % des particules ont un diamètre inférieur à 100 nm) sont aspirées vers le conduit d'extraction des fumées de 20 cm de diamètre avec un débit proche de  $2000 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ . Afin de rejeter un air épuré à l'environnement extérieur, cette canalisation est équipée d'un cyclone qui retient la fraction de particules plus grosses ( $d_p > 1 \mu\text{m}$ ). Les particules plus fines sont collectées dans un filtre à cartouches. L'aérosol échantillonné est dirigé vers un cyclone (BGI, diamètre de coupure de  $1 \mu\text{m}$  à  $5 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ ) situé en amont de la colonne à bulles, afin de limiter la taille des particules. Compte tenu de la valeur importante de la concentration en particules ( $2 \cdot 10^8 \text{ particules} \cdot \text{cm}^{-3}$ ) un diluteur Palas VKL 100 (débit d'échantillonnage de  $0,3 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  pour une pression d'air comprimé de 1,5 bar) est placé en amont de la colonne afin de limiter d'une part l'agglomération des particules et permettre d'autre part la bonne utilisation des granulomètres. Un débit de  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ , à travers la colonne à bulles, est assuré grâce à une tuyère sonique et une pompe à vide situées en aval de la colonne à bulles. La distribution granulométrique et la concentration des particules en amont et en aval de la colonne sont obtenues au moyen d'un SMPS Grimm. Enfin d'éviter un biais dans le comptage des particules, un déshumidificateur a été placé en aval de la colonne.

Afin de déterminer la concentration massique des fumées en amont et en aval de la colonne, un prélèvement sur filtre (fibres de verre (GFC 47 mm)) est installé à la place des granulomètres (cf. Figure 3.37). Le débit d'échantillonnage est assuré par un tuyère sonique et une pompe à vide. La perte de charge de la colonne à bulles est enregistrée au cours du temps (Almemo, FDA602S1K).

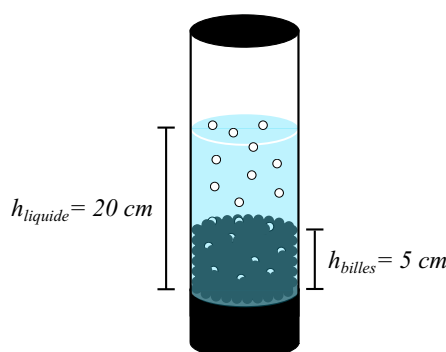


FIGURE 3.38 — Schéma de la configuration de la colonne à bulles avec 5 cm de billes inox de 1,5 mm de diamètre, immergées dans 20 cm de liquide de collecte.

La configuration de la colonne à bulles est celle établie auparavant avec les aérosols modèles. A savoir, une plaque perforée de 16 orifices de 0,5 mm de diamètre ou une toile métallique Inox355 supportant le garnissage composé d'une couche de 5 cm de billes en acier inoxydable AISI 420C de 1,5 mm de diamètre. Enfin, la hauteur d'eau est fixée à 20 cm (cf. Figure 3.38).

### 3.8.2 Résultats

L'objectif de ces essais spécifiques est de vérifier la stabilité des performances du dispositif dans le temps. C'est la raison pour laquelle les essais ont été menés pendant au minimum 8 heures sans renouvellement du liquide de piégeage. Nous nous intéresserons successivement à l'évolution de la perte de charge et à l'efficacité de collecte.

### 3.8.2.1 Évolution de la perte de charge de la colonne au cours du temps

La perte de charge est conditionnée par la hauteur du liquide de collecte et par le distributeur de gaz servant également de support au garnissage. Les essais menés avec les aérosols modèles (cf. Chapitre 3) ont permis de sélectionner deux supports: la plaque 16-1/2 et la toile métallique Inox355. Il nous reste à évaluer leur performance au cours du temps afin de choisir le plus adapté à cette application.

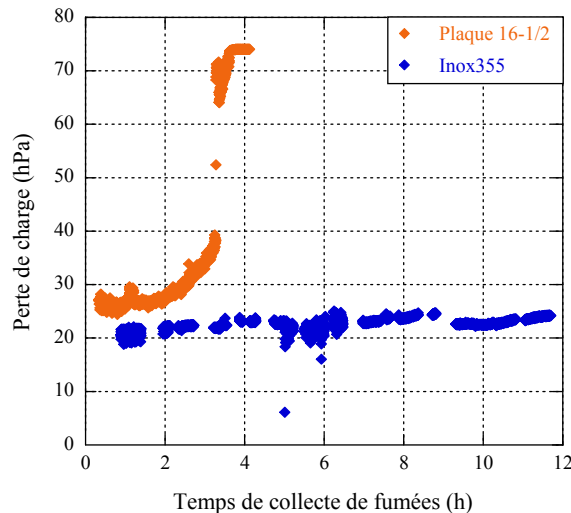


FIGURE 3.39 – Suivi de la perte de charge au cours du temps pour la colonne à bulles équipée de la plaque perforée 16-1/2 ou de la toile métallique Inox355.

La figure 3.39 présente l'évolution de la perte de charge pour les deux supports de garnissage. Nous observons que la perte de charge de la colonne à bulles équipée de la plaque 16-1/2 augmente exponentiellement dans le temps (jusqu'à 75 hPa qui est la valeur limite de détection du capteur). Cette augmentation de la perte de charge est imputée au colmatage progressif des orifices de la plaque perforée. A l'inverse, la perte de charge de la toile métallique Inox355 reste constante pendant les 12 h d'expérimentation. Ce constat justifie l'utilisation de la toile métallique Inox355 comme support de garnissage dans les expériences à venir. Cette configuration permet ainsi de travailler à perte de charge constante.

### 3.8.2.2 Évolution de l'efficacité de collecte de la colonne au cours du temps

L'objectif est de déterminer l'efficacité de collecte de la colonne (équipée de la toile métallique Inox355 comme support de garnissage) vis-à-vis des fumées de métallisation et de suivre son évolution sur une longue durée de fonctionnement. Le protocole retenu pour la détermination de l'efficacité est le protocole 3 décrit dans la section 3.2.1. La seule différence par rapport à ce protocole est que les concentrations massiques ont été déterminées par prélèvement sur filtres à fibres de verre en amont et aval de la colonne et non pas calculées à partir des distributions granulométriques en nombre.

La concentration massique de l'aérosol est déterminée à partir des masses des particules collectées sur les filtres de prélèvement, le temps et le débit d'échantillonnage, comme suit:

$$\text{Concentration en masse} = \frac{\text{Masse du filtre colmaté} - \text{Masse du filtre neuf}}{\text{Temps d'échantillonnage} \cdot \text{Débit d'échantillonnage}} \quad (3.35)$$

Les résultats (cf. Figure 3.40) mettent clairement en évidence que l'efficacité massique globale de collecte reste quasi constante ( $(30,0 \pm 0,3) \%$ ) sur les 8 heures d'essais.

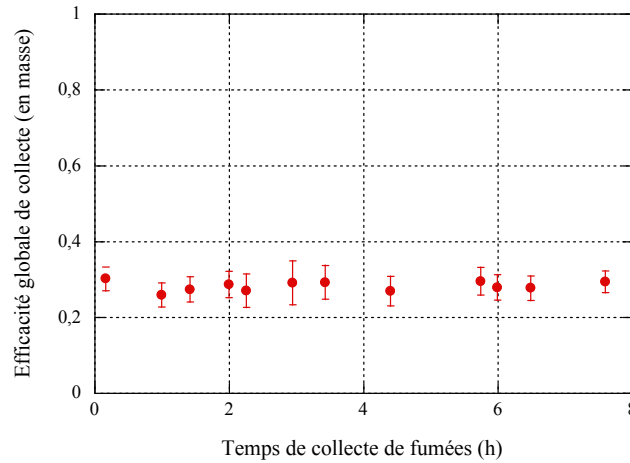


FIGURE 3.40 – Suivi de l'efficacité globale de collecte en masse.

A partir des valeurs expérimentales du débit massique de particules, du débit volumique de filtration et de l'efficacité de collecte, il est possible de déterminer la concentration massique de particules collectées dans le liquide au bout de 8 h ( $C_{m,L}$ ), comme suit,

$$C_{m,L} = \frac{Q_m \cdot \eta \cdot t_f}{V_L} \quad (3.36)$$

Avec,  $Q_m$  le débit massique de particules en amont,  $\eta$  l'efficacité de filtration,  $t_f$  le temps de filtration et  $V_L$  le volume de liquide dans la colonne. Ainsi, nous obtenons une concentration massique de particules collectées pendant 8 h dans le liquide de piégeage égale à  $50 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ .

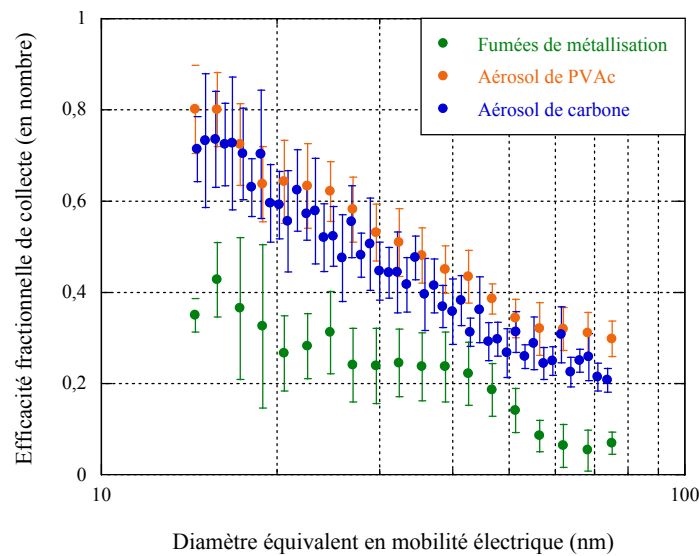


FIGURE 3.41 – Efficacité fractionnelle de collecte en nombre pour les particules issues de fumées de métallisation, de PVAc et de graphite.

Nous avons réalisé aussi des expériences pour déterminer l'efficacité de collecte en nombre pour les particules issues de fumées de métallisation, et nous avons comparé les résultats aux efficacités de collecte en nombre obtenues pour les aérosols modèles (cf. Figure 3.41). Nous avons observé que l'efficacité en nombre pour les particules métalliques est bien inférieure à celle du PVAc. Cet écart peut être attribué à la nature ou à la forme des particules. Pour valider ces hypothèses nous avons réalisé des mesures d'efficacité avec des particules de graphite générées par décharge électrique (PALAS GFG 1000) qui présentent une distribution granulométrique similaire à celle des particules métalliques ou du PVAc mais avec une structure géométrique proche des fumées de métallisation. La comparaison des efficacités globales de collecte (en nombre) pour les trois types de particules ( $\eta_{\text{fumées}} = (22,0 \pm 0,2) \%$ ,  $\eta_{\text{PVAc}} = (51,0 \pm 0,3) \%$  et  $\eta_{\text{graphite}} = (45,0 \pm 0,2) \%$ ) met en évidence que les valeurs pour les deux aérosols modèles (PVAc et graphite) sont proches, tandis que celle pour les particules issues des fumées de métallisation reste assez faible.

En conséquence, l'écart entre les efficacités de collecte des particules modèles et des fumées de métallisation n'est pas lié à la nature ou à la forme des particules mais possiblement à une pression insuffisante à l'entrée du diluteur lors des échantillonnages. A l'avenir il pourrait être intéressant de mesurer l'efficacité de collecte de la colonne à bulles vis-à-vis des fumées de métallisation avec un débit d'échantillonnage plus élevé afin de vérifier cette hypothèse.

### 3.8.2.3 Étude de la remise en suspension des particules et de la concentration de saturation

Nous avons déterminé que l'efficacité de collecte de la colonne à bulles vis-à-vis des particules issues de fumées de métallisation est bien que inférieure à celle des aérosols modèles et reste constante au cours du temps (sur une période de 8 h de fonctionnement). Afin de valider l'hypothèse d'une possible remise en suspension des particules collectées pour expliquer la faible valeur de l'efficacité mesurée, l'expérience suivante a été réalisée.

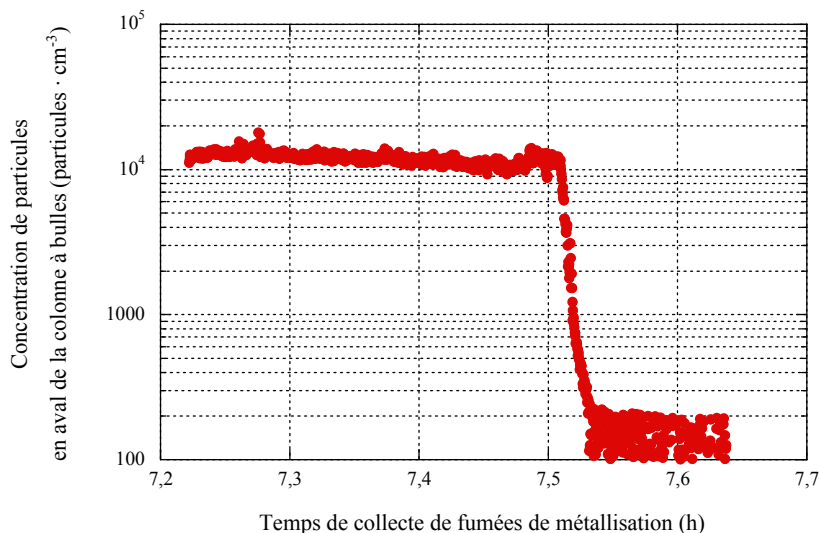


FIGURE 3.42 — Évolution de la concentration en aval de la colonne à bulles pendant et après la génération.

Pendant 8 h, la concentration totale des particules en aval de la colonne est enregistrée à l'aide d'un compteur à noyaux de condensation (CPC). A l'issue de cette période d'épuration des fumées de métallisation la génération est stoppée mais le débit (d'air dépourvu de particules) est maintenu à travers la colonne. La figure 3.42 présentant l'évolution de la concentration en aval de la colonne à bulles



pendant toute la durée de l'essai montre clairement l'absence d'une remise en suspension des particules préalablement collectées. En effet, à l'arrêt de la génération de l'aérosol, la concentration de particules en aval de la colonne diminue rapidement au dessous de  $200 \text{ particules} \cdot \text{cm}^{-3}$ .

Lors de l'arrêt de la génération, la concentration en particules collectées dans le liquide est évaluée à  $50 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ . Cette concentration est peut être trop faible pour mettre en évidence une possible remise en suspension des particules collectées. C'est la raison pour laquelle, nous allons nous intéresser à l'influence de la concentration en particules dans le liquide sur la remise en suspension. En d'autres termes, existe-il une concentration limite à partir de laquelle une remise en suspension apparaîtrait.

### Préparation d'une suspension de nanoparticules Zn/Al

Afin de déterminer la concentration limite pour laquelle les particules, en suspension dans le liquide de collecte, seront remises en suspension dans l'air, une série d'expériences a été conduite. Pour des raisons de coût et de durée d'expériences, nous n'avons pas directement travaillé sur le banc de métallisation. Différentes suspensions de concentrations connues en particules de Zn/Al ont ainsi été préparées à partir de la poussière recueillie dans la trémie du filtre à cartouches de l'installation (cf. Figure 3.37). La mesure de la granulométrie en milieu liquide a été effectuée à l'aide d'un Mastersizer 2000 et met en évidence que ces poussières présentent une distribution granulométrie plus élevée (taille moyenne d'environ  $30 \mu\text{m}$ ) que celles générées sous forme d'aérosol directement par le pistolet à arc électrique. Cette différence est liée à l'agglomération des particules dans la trémie du filtre à cartouches.

Afin de se rapprocher de la distribution granulométrie des aérosols générés, une sonde à ultrasons (Sonics Vibra-cell VCX130, fréquence 20 kHz) a été utilisée pour désagglomérer les agrégats. Deux paramètres peuvent avoir une influence sur la désagglomération: la fréquence et le temps de sonification. Une étude spécifique a donc été entreprise pour déterminer les conditions opératoires optimales de sonification permettant d'obtenir une granulométrie en milieu liquide proche de celle des fumées de métallisation.

#### Détermination de la fréquence optimale de sonification

Pour une concentration fixée à  $200 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$  (concentration choisie de façon aléatoire, par la suite nous testerons l'influence de la concentration), nous avons testé six fréquences de sonification (0 (sans sonification), 4, 8, 12, 16 et 20 kHz (fréquence maximale d'opération)) pendant 90 s. A l'issue de la période de sonification, une mesure de la distribution granulométrique de la suspension est réalisée. Afin de limiter la ré-agglomération des particules, la solution est versée rapidement dans la cuve du granulomètre, laquelle est équipée d'un agitateur qui tourne à une vitesse d'agitation de  $2000 \text{ tr} \cdot \text{min}^{-1}$  afin d'assurer un débit constant dans la cellule de mesure. Cette vitesse d'agitation dans la cuve d'alimentation du granulomètre a été choisie afin de favoriser la désagglomération.

Nous pouvons observer que le diamètre médian diminue lorsque la fréquence de sonification augmente (cf. Tableau 3.14). La valeur la plus faible de la médiane est obtenue à la fréquence maximale ( $3,93 \mu\text{m}$ ). Notons que les ultrasons permettent de désagglomérer les nanoparticules mais que la distribution granulométrique est encore éloignée de celle générée par les procédés de métallisation.

**Tableau 3.14** – Valeurs du diamètre médian pour les différentes fréquences de sonification testées pendant 90 s pour une solution de concentration fixée à  $200 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ .

| Fréquence de sonification (kHz)   | 0     | 4     | 8    | 12   | 16   | 20   |
|-----------------------------------|-------|-------|------|------|------|------|
| Diamètre médian ( $\mu\text{m}$ ) | 20,46 | 10,49 | 6,01 | 4,45 | 5,19 | 3,93 |

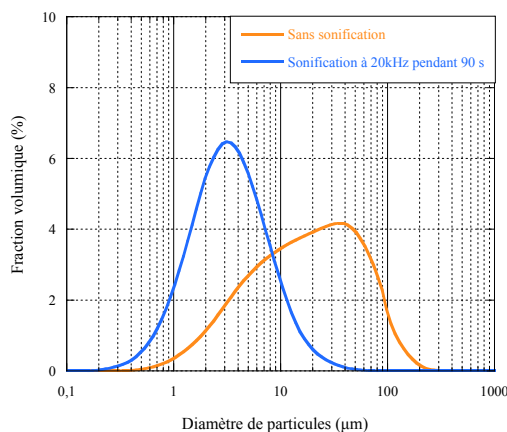
#### Détermination de la durée optimale de sonification

Dans cette série d'expérience nous avons fixé la fréquence de sonification maximale (20 kHz) et fait varier le temps de sonification (0 (sans sonification), 15, 30, 60, 90 et 120 s). La concentration en particules de Zn/Al est comme pour l'expérience précédente fixée à  $200 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ . Le diamètre médian de la suspension diminue avec l'augmentation de la durée de sonification avant de se stabiliser à partir de 90 secondes (cf. Tableau 3.15).

**Tableau 3.15** – Valeurs du diamètre médian pour les différentes durées de sonification à une fréquence de 20 kHz pour une solution de concentration fixée à  $0,2 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ .

| Temps de sonification (s)         | 0     | 15   | 30   | 60   | 90   | 120  |
|-----------------------------------|-------|------|------|------|------|------|
| Diamètre médian ( $\mu\text{m}$ ) | 20,34 | 7,71 | 6,01 | 4,45 | 4,13 | 3,93 |

Ces essais nous ont permis de fixer les conditions opératoires optimales pour maximiser la désagglomération. Pour la suite des essais nous fixerons donc une fréquence de 20 kHz et un temps de 90 s. Dans ces conditions la distribution granulométrique de la suspension est présentée figure 3.43.

**FIGURE 3.43** – Distribution granulométrique de la suspension de fumées de métallisation sans sonification et avec une fréquence de sonification de 20 kHz pendant 90 s.

#### Influence de la concentration de la suspension et du volume du récipient de sonification sur les performances de la sonification

Afin d'étudier l'influence de la concentration de la suspension sur les performances de la sonification, une série d'essais a été menée pour onze concentrations différentes comprises entre  $0,2$  et  $50 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  et trois volumes du récipient de sonification différents (200, 500 et 1000 ml).

Le diamètre médian pour les différentes concentrations testées reste constant autour de  $4\text{ }\mu\text{m}$ , ce qui nous permet de conclure qu'il n'y a aucune influence de la concentration de la suspension sur la distribution granulométrique (cf. Figure 3.44(a)).

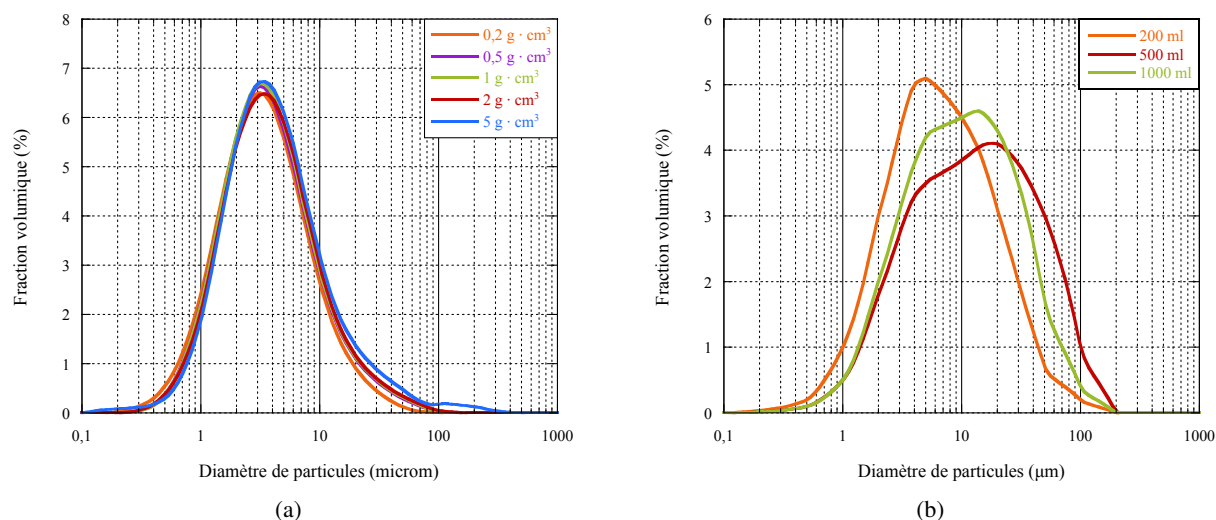


FIGURE 3.44 – Variation de la granulométrie en milieu liquide, pour différentes concentrations (a) et pour différents volumes (b) de solutions de particules sous les effets des ultrasons.

Les résultats ne permettent pas de conclure sur l'influence du volume de la solution sur la distribution granulométrique (cf. Figure 3.44(b)). En réalité, la taille de la sonde est trop petite pour des volumes importants de solution, en conséquence, toutes les particules de la solution ne sont pas sous l'action des ultrasons et donc la désagglomération n'est pas homogène. En conclusion, nous avons mis en évidence que l'utilisation d'une sonde à ultra-sons permet de réduire le diamètre médian en volume de la distribution granulométrique des agglomérats Zn/Al de 20,34 à 3,93  $\mu\text{m}$ . La réduction maximale est atteinte pour une fréquence de sonification 20 kHz pendant 90 s. Bien que le diamètre médian reste encore très supérieur à celui des fumées de métallisation, centrées à 117,89 nm en volume (déduit de la masse volumique effective et de la distribution en nombre) nous utiliserons ce protocole opératoire et ces conditions opératoires de sonification pour préparer des suspensions de particules Zn/Al de concentrations variables.

### Saturation du liquide – Concentration limite

On peut supposer que la remise en suspension des particules dans l'air liée à l'éclatement des bulles de gaz à la surface du liquide de piégeage sera d'autant plus importante, toute chose égale par ailleurs, que la concentration particulaire sera importante. Au delà d'une certaine concentration appelée concentration limite ( $C_{limiq}$ ), cette remise en suspension peut nuire aux performances de la colonne garnie. Afin de déterminer cette concentration limite, nous avons menée une série d'expérience sur la colonne garnie équipée de la toile métallique Inox355, de 5 cm de billes en acier inoxydable de 1,5 mm de diamètre et de 20 cm de liquide. L'eau est chargée en particules de Zn/Al à différentes concentrations (0,5, 1 et 5 g·L<sup>-1</sup>). De par la légèreté des particules constituant la poudre métallique récupérée dans la trémie du filtre à cartouches de l'installation du banc de métallisation de l'INRS, nous limitons les essais à une concentration égale à 5 g·L<sup>-1</sup> qui constitue déjà, visuellement, une suspension très chargée.

Les suspensions ont été préparées selon le protocole opératoire optimisé précédemment (passage aux ultra-sons (20 kHz) pendant 90 s). Le bullage dans la colonne a été effectué avec de l'air préalablement filtré à un débit de  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ . Une mesure de la concentration particulaire en aval de la colonne a été réalisée avec un compteur à noyaux de condensation pendant environ 30 min. La même expérience a été menée avec de l'eau claire à titre de comparaison. Le tableau 3.16 présente les valeurs de la concentration totale en nombre de particules mesurée en aval de la colonne pour les différentes suspensions de particules de métallisation et pour l'eau déminéralisée. Pendant les 30 minutes de l'expérience, la concentration moyenne en aval de la colonne reste inférieure à  $10 \text{ particules} \cdot \text{cm}^{-3}$  quelles que soient les suspensions testées (y compris le liquide propre).

**Tableau 3.16** – Suivi de la concentration de particules en aval de colonne à bulles pour des solutions de concentration entre 0,5 et  $5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ , comparée à celle de l'eau déminéralisée.

| Concentration de la suspension ( $\text{g} \cdot \text{L}^{-1}$ )             | 0             | 0,5           | 1             | 5             |
|-------------------------------------------------------------------------------|---------------|---------------|---------------|---------------|
| Concentration en aval de colonne ( $\text{particules} \cdot \text{cm}^{-3}$ ) | $3,5 \pm 2,3$ | $6,4 \pm 3,1$ | $6,5 \pm 2,7$ | $5,8 \pm 2,0$ |

Nous avons donc utilisé deux méthodes pour déterminer la remise en suspension de particules, à savoir,

- *Méthode 1*: Mesure de la concentration en aval de la colonne à bulles à la fin de la génération (cf. Figure 3.42).
- *Méthode 2*: Mesure de la concentration en aval de la colonne à bulles à partir d'une suspension de particules, avec un bullage assuré par une alimentation d'air propre (cf. Tableau 3.16).

Nous nous attendions à ce que les valeurs des concentrations en aval de la colonne à bulles mesurées par les deux méthodes soient très similaires, cependant, les résultats présentent un écart d'un facteur 20. Cette différence pourrait s'expliquer par la différence de la granulométrie des particules dans chaque méthode. En effet, avec la méthode 1, le liquide de piégeage a été chargé en particules directement par la filtration des fumées de métallisation (diamètre moyen autour de 90 nm). Tandis qu'avec la méthode 2, le liquide de collecte a été chargé en particules par l'ajout d'une quantité connue de particules récupérées dans la trémie du filtre à cartouches de l'installation du banc de métallisation de l'INRS (suspension de particules soumise aux ultrasons avec un diamètre moyen autour de  $4 \mu\text{m}$ ). En conséquence, il est possible que lors de la première méthode nous arrivons à mesurer des particules fines remise en suspension, tandis qu'avec la méthode 2, ces particules fines n'étaient pas présentes, la concentration mesurée est quasi nulle..

Il ressort, néanmoins, de cette série d'expériences que la remise en suspension de particules collectées peut être négligée tant que la concentration en particules piégées dans l'eau reste inférieure à  $5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ .

#### 3.8.2.4 Périodicité de changement du liquide de piégeage

Afin d'avoir une idée de la périodicité de changement du liquide de collecte de la colonne, nous avons déterminé le temps ( $t_{filt}$ ) nécessaire pour que la concentration du liquide atteigne  $5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ ; concentration assez élevée du point de vue qualitatif. Ce calcul a été réalisé à partir des données obtenues lors des expériences pour déterminer l'efficacité globale en masse ( $\eta_{masse}$ ); à savoir un débit massique en amont ( $Q_{masse_{amont}}$ ) égale à  $0,32 \text{ mg} \cdot \text{min}^{-1}$ ,  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  de débit volumique ( $Q_v$ ) à travers la colonne à bulles contenant un volume de liquide de piégeage ( $V_L$ ) égal à  $955 \text{ cm}^3$  et une efficacité globale de collecte de 30 %; comme suit,

$$t_{filt} = \frac{C_{lim_{liq}} \cdot V_L}{Q_{masse_{amont}} \cdot \eta_{masse}} \quad (3.37)$$

Ce résultat prédit que la colonne à bulles pourrait fonctionner en continu, dans les conditions mentionnées précédemment, pendant 35 jours avant le renouvellement du liquide de collecte. A noter que l'évaporation du liquide de piégeage n'a pas été prise en compte dans le calcul.

### 3.8.2.5 Épuration du liquide de piégeage

Nous avons pu mettre en évidence dans les chapitres précédents que l'utilisation d'une colonne à bulles permettait d'épurer l'air chargé en particules issues des procédés de métallisation. Il ne s'agit dans les faits que d'un transfert de polluant de la phase gaz vers la phase liquide. Le liquide contaminé doit également être traité avant son rejet dans l'environnement. Lors des essais réalisés précédemment sur la remise en suspension, nous avons pu observer l'apparition d'un dépôt de particules au fond de la colonne (sur la plaque perforée ou sur le lit de billes) quelques temps après l'arrêt du bullage.

Ce constat nous a permis de supposer que le bullage de la suspension de particules favoriserait l'agglomération de ces dernières qui sédimenteraient ensuite lorsque le bullage est stoppé. Pour confirmer cette hypothèse, une série d'essais a été entreprise afin d'observer qualitativement l'influence du bullage sur la sédimentation de particules.

Le renouvellement et donc le traitement du liquide a lieu lorsque la concentration particulaire atteint la concentration limite. Pour atteindre cette concentration, le temps d'opération de la colonne à bulles est extrêmement long et donc coûteux. C'est la raison pour laquelle nous avons décidé d'effectuer les expériences de sédimentation à partir d'une solution aqueuse de poudres métalliques à une concentration de  $5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  préparée dans une éprouvette qui simule la colonne à bulles. Le bullage est effectué à l'aide d'un fritté. Cette façon de procéder permet, non seulement de préparer très rapidement des solutions mais aussi de mieux maîtriser les conditions opératoires.

Le protocole opératoire mis en œuvre consiste à préparer quatre suspensions à une concentration de  $5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$  et les soumettre aux ultrasons pendant 90 s à 20 kHz afin de réduire la taille des particules. Pour chacune des suspensions, nous appliquons un temps de bullage différent (0, 10, 30, 60 et 240 min). Le débit de bullage est fixé à  $1 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  afin que le bullage produit par le fritté soit homogène et similaire à celui de la colonne à bulles en termes de taille et nombre de bulles.

A l'issue de la période de bullage, les suspensions sont laissées au repos. Nous observons alors que les particules sédimentent rapidement. Ce phénomène est d'autant plus important que la période de bullage est longue. L'agglomération des particules en est ainsi facilitée et par conséquent leur sédimentation.

Après quelques heures de repos, une partie des particules qui ont sédimenté remonte brusquement à la surface pour former un dépôt. *In fine* nous obtenons une solution qui comprend 3 parties: un dépôt de surface, un surnageant très clair au milieu et un dépôt au fond. Le dépôt de surface est lié à la sonification qui crée des micro-bulles qui se retrouvent piégées dans les agglomérats et les font remonter à la surface par flottation. Cette hypothèse a été vérifiée en agitant ce dépôt de surface. Cette agitation casse les bulles et les agglomérats sédimentent de nouveau pour ne former que 2 phases: le surnageant et le dépôt au fond.

A la fin de la sédimentation, nous pouvons observer que le surnageant est d'autant plus clair que le temps de bullage est long (cf. Figure 3.45). De plus, afin de vérifier la granulométrie des particules contenues dans le surnageant et celles qui ont sédimenté, nous avons réalisé des mesures au Mastersizer 2000 des deux phases présentes à la fin de la période de sédimentation.

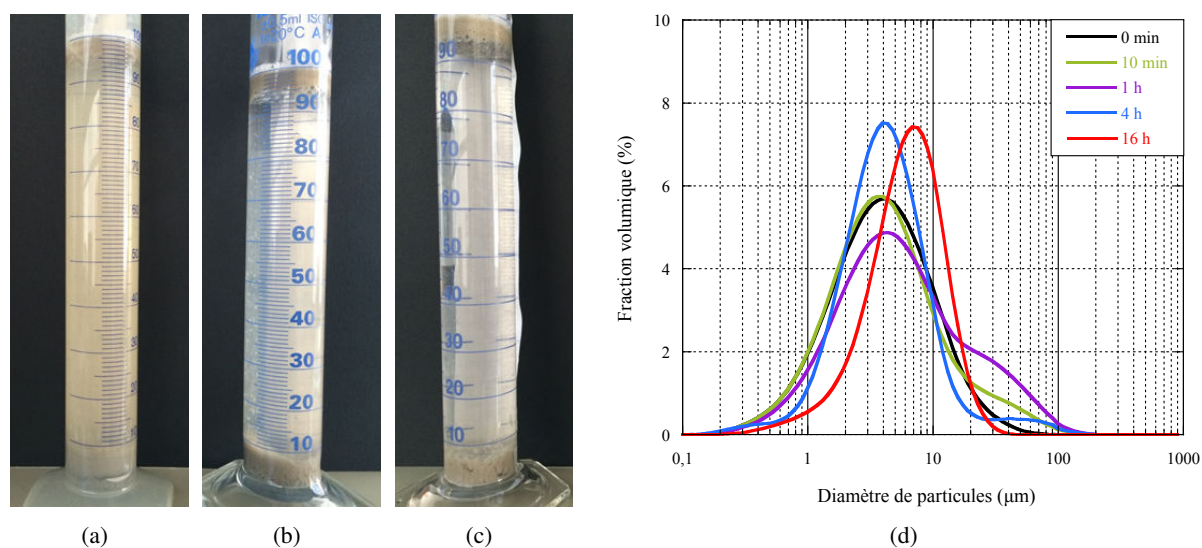


FIGURE 3.45 — Comparaison de l'influence de différents temps de bullage: (a) 0,5 h, (b) 1 h, (c) 4 h et (d) Suivi de la distribution granulométrique du surnageant.

La figure 3.46 présente les distributions granulométriques du surnageant et du dépôt à la fin de la sédimentation d'une suspension de fumées de métallisation après 4 h de bullage. Nous pouvons observer que la différence entre les diamètres médians pour les deux phases est d'environ  $6 \mu\text{m}$ . La distribution granulométrique des particules présentes dans le surnageant est centrée à  $5,12 \mu\text{m}$  et celle du dépôt est plutôt autour de  $10,98 \mu\text{m}$ . Ces résultats confirment l'influence du bullage dans la ré-agglomération des particules. Le bullage dans la colonne favorisera donc l'agglomération des particules et donc le futur traitement de liquide.

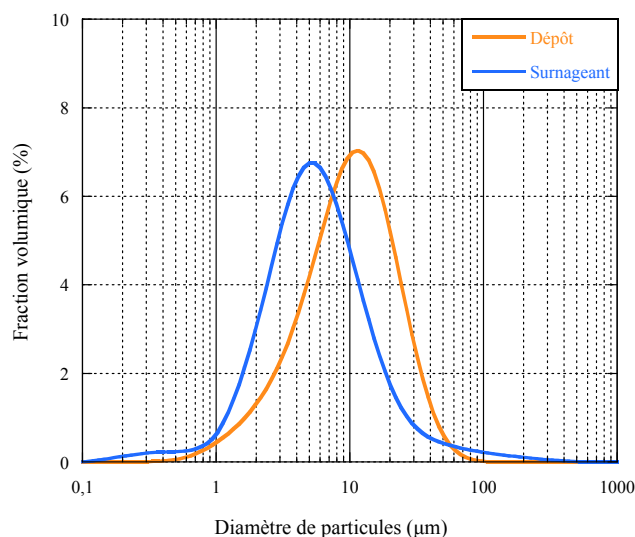


FIGURE 3.46 — Distribution granulométrique du surnageant et du dépôt d'une suspension de fumées de métallisation après 4 h de bullage.

### 3.9 Synthèse

Ce chapitre avait pour objectif de déterminer les performances de filtration d'une colonne à bulles vis-à-vis des particules ultrafines. Nous avons observé que la capacité de collecte de ce séparateur est liée principalement à la taille des bulles. En d'autres termes, plus les bulles sont fines, plus la probabilité que les particules rentrent en contact avec l'interface air-liquide augmente. Ainsi, afin d'obtenir le plus petit diamètre de bulles, qui signifie une efficacité de collecte élevée, nous avons réalisé des expériences avec différentes configurations de la colonne et conditions opératoires, telles que la géométrie du distributeur de gaz, la nature et la hauteur du liquide de piégeage et le débit d'air dans la colonne.

Il est connu que les distributeurs de gaz de type fritté forment des bulles très fines avec un régime de bullage bien homogène, ce qui peut signifier une efficacité de collecte élevée. Mais pour notre application il n'est pas adapté car les particules collectées au sein du fritté le colmatent ce qui augmente la perte de charge. En conséquence, nous avons testé plusieurs plaques perforées (contenant différents nombres et diamètres des orifices) comme distributeur de gaz. Des mesures de la perte de charge et de l'efficacité de collecte nous ont permis de mettre en évidence que la plaque perforée de 16 orifices de 0,5 mm de diamètre était la plus adaptée, avec un régime de bullage homogène et une faible perte de charge.

Un état de l'art a mis en évidence l'influence des tensioactifs sur les régimes de bullage. Pour quantifier l'effet de l'ajout de tensio-actif sur la taille des bulles, sur l'homogénéité du bullage et donc sur l'efficacité de collecte, nous avons testé des solutions aqueuses de chlorure de sodium (0,21 M), et d'isopropanol (5 et 10 %wt). Les résultats ont montré que la présence de ces tensio-actifs n'améliore par significativement l'efficacité de filtration.

Plusieurs auteurs ont démontré que la hauteur du liquide de collecte [178, 179] et le débit d'air dans la colonne [6, 150–152] sont des paramètres qui exercent une forte influence sur le transfert de matière dans la colonne à bulles. Dans notre étude nous avons confirmé l'effet de la hauteur du liquide de piégeage. Le phénomène s'explique par une augmentation du temps de séjour des bulles dans la colonne. Par contre, les débits testés ne permettent pas de conclure sur son influence sur l'efficacité de collecte.

Dans le chapitre précédent, nous avons montré que les particules possèdent une charge électrique susceptible d'influencer leur collecte. Pour tester cet effet, nous avons déterminé l'efficacité de collecte de particules préalablement chargées (positivement ou négativement) et neutres. Les résultats ont permis d'exclure ce paramètre dans la suite de notre étude car son influence sur la filtration des particules demeure négligeable.

Le modèle théorique de Fuchs [9] et Pich et Schütz [181] a permis de déterminer les conditions opératoires pour lesquelles l'efficacité de collecte est maximale et ainsi modifier les paramètres d'optimisation de la performance de la colonne à bulles. Malgré l'évidente influence de la hauteur du liquide de piégeage, nous avons privilégié la taille des bulles comme paramètre clé dans l'intensification des capacités de filtration de ce laveur, afin de conserver une faible perte de charge opérationnelle. Dès lors, pour diminuer la taille des bulles, nous avons étudié l'influence d'un garnissage de billes sphériques immergées dans le liquide de piégeage.



Finalement, la hauteur du garnissage, la taille et la masse volumique des billes, entre autres, ont été testées afin d'établir la configuration de la colonne à bulles permettant d'accroître l'efficacité de collecte de la colonne à bulles même si celle-ci reste encore inférieure à celle des médias fibreux. Ainsi, la meilleure configuration de toutes celles étudiées pour un débit de gaz à traiter de  $4 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  est:

- Support ou distributeur de gaz: Plaque 16–1/2 ou toile métallique Inox355
- Garnissage:
  - Hauteur: 5 cm
  - Nature de billes: Acier inoxydable AISI 420C
  - Diamètre de billes: 1,5 mm
  - Configuration: mono-couche
- Liquide de piégeage:
  - Hauteur: 20 cm
  - Nature: Eau

Ces conditions opératoires ont été utilisées pour déterminer l'évolution des performances de la colonne au cours du temps, c'est-à-dire, au cours de la filtration de particules ultrafines issues des fumées de métallisation ( $7 \cdot 10^8 \text{ particules} \cdot \text{cm}^{-3}$  et  $90 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$  [4]).

Des essais menés pendant huit heures de fonctionnement de la colonne à bulles, sans renouveler le liquide de collecte nous révèlent que l'efficacité de collecte est stable et sans remise en suspension des particules préalablement collectées dans le liquide. Dans ces conditions de fonctionnement (efficacité globale de collecte égale à 30 %) et pour une concentration maximale en particules piégées par le liquide fixée à  $5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ , la colonne pourrait fonctionner pendant 35 jours avant le renouvellement du liquide de piégeage. Pour une efficacité de collecte de 95 % l'opération de maintenance doit être réalisée tous les 10 jours.

De plus, nous avons mis en évidence que le bullage dans la colonne favorise non seulement le transfert des particules nanométriques de la phase gaz vers la phase liquide mais également leur agglomération dans la phase liquide ce qui permettrait de traiter ou de régénérer le liquide par sédimentation des agglomérats.



# Conclusions générales et perspectives de l'étude

L'objectif principal de cette étude a été de déterminer si un laveur de gaz, du type colonne à bulles pourrait être une alternative aux médias fibreux pour la collecte des particules ultrafines issues des fumées de métallisation. Dans cette optique, nous avons réalisé des expériences pour déterminer les performances de filtration d'une colonne à bulles vis-à-vis des nanoparticules. Des études réalisées auparavant ont permis de connaître la granulométrie et la concentration (en nombre et en masse) des fumées de métallisation collectées par les installations de ventilation industrielles. Ainsi, nous savons que ces aérosols ont une concentration en nombre très importante,  $1 \cdot 10^8$  particules  $\cdot$  cm<sup>-3</sup>, avec 90 % des particules ayant une taille inférieure à 100 nm. Par ailleurs, la collecte des particules ultrafines est influencée, entre autres, par leur masse volumique et leur charge électrique. C'est la raison pour laquelle nous avons réalisé des expériences pour connaître la masse volumique effective et le nombre de charges élémentaires des particules. En analysant les résultats de la masse volumique effective cas des particules de cuivre, de graphite et des particules issues des fumées de métallisation, nous avons pu observer que la masse volumique effective est inférieure à la masse volumique du matériau. Cette observation s'explique par la formation des agglomérats non sphériques de forte porosité. Par contre, pour l'aérosol de PVAc, la masse volumique effective obtenue est constante quel que soit le diamètre de mobilité électrique et proche de la valeur de la masse volumique du matériau. Cela signifie que les agglomérats formés sont sphériques, et par conséquent que le diamètre équivalent en mobilité électrique et le diamètre équivalent en volume sont identiques. Cette sphéricité des agglomérats de PVAc a été confirmée par des photos prises à l'aide d'une microscopie électronique en transmission. Ces résultats nous ont permis de comparer la distribution granulométrique et la concentration de particules en masse, pour les masses volumiques du matériau et effective. Nous avons pu observer le décalage de la distribution granulométrique ainsi qu'une variation de la concentration en fonction de la métrique choisie (masse ou nombre).

Dans un deuxième temps, nous nous sommes intéressés à la collecte des particules de cuivre, graphite et PVAc à l'aide d'une colonne à bulles, avec l'objectif d'établir les conditions opératoires qui donneraient l'efficacité de collecte la plus élevée. Pour commencer, un protocole de mesure a été établi de manière à éviter les possibles biais liés à l'agglomération des particules et aussi à leur dépôt dans les canalisations de l'installation et sur les parois de la colonne à bulles. Ensuite, nous avons testé différents paramètres et nous avons pu conclure que les conditions opératoires de la colonne à bulles qui ont donné l'efficacité de collecte la plus élevée sont, une plaque perforée de 16 orifices de 0,5 mm de diamètre, avec une hauteur de 20 cm d'eau déminéralisée comme liquide de piégeage et un débit d'air à travers la colonne égal à 4 L  $\cdot$  min<sup>-1</sup>. A partir des conditions opératoires établies, nous avons effectué la validation du modèle théorique de Pich et Schütz pour le calcul de l'efficacité de collecte dans le régime diffusionnel. Cette validation nous a permis de prédire l'efficacité maximale de collecte d'une colonne à bulles en fonction des hauteurs de liquide de piégeage ainsi qu'en fonction des diamètres des bulles. Nous avons observé que pour avoir une efficacité proche de celle d'un média fibreux, située autour de 95 %, il faut, au moins, une hauteur de liquide de piégeage de 5 m, ce qui se traduit en une perte de charge très importante, en conséquence, un coût opérationnel élevé. Par contre, la diminution du diamètre des bulles d'un millimètre augmente considérablement l'efficacité de collecte, c'est la raison pour laquelle nous avons proposé une intensification des performances de filtration de la colonne à bulles par une diminution de la taille des bulles.

De façon à réduire la taille des bulles, paramètre clé pour favoriser la collecte de particules dans une colonne à bulles, nous avons testé différentes configurations de la colonne à bulles avec un lit granulaire immergé. Ainsi, nous avons évalué l'influence de différents types de billes (verre et inox) de différentes tailles, ainsi que la hauteur du lit granulaire avec différents supports (plaques perforées et toile métallique). Finalement, nous avons calculé le facteur de qualité ( $q_F$ ) pour chaque configuration de la colonne à bulles, ce qui nous a permis de déterminer les conditions opératoires donnant la meilleure performance, avec une efficacité de collecte égale à 67 % et une perte de charge de 28 hPa. Ces conditions opératoires nous ont permis de générer des bulles de 3 mm de diamètre et de taille peu variable avec le débit d'air à traiter. Les conditions opératoires définies lors d'expériences avec les aérosols modèles ont été utilisées pour déterminer l'évolution des performances de la colonne au cours du temps, c'est-à-dire, au cours de la filtration de particules ultrafines issues des fumées de métallisation. Les résultats nous ont permis de confirmer le fonctionnement de la colonne à bulles en perte de charge constante lors de 8 h de prélèvement, condition clé pour utiliser ce type de séparateur à la place des médias fibreux. Nous avons pu définir une concentration maximale dans le liquide de collecte afin d'éviter la remise en suspension de particules déjà collectées, valeur qui nous a permis de définir le temps de renouvellement du liquide de piégeage.

Finalement, nous avons mis en évidence que les laveurs du type colonne à bulles s'avèrent une solution intéressante aux médias fibreux pour la collecte de particules ultrafines, d'une part car son fonctionnement à perte de charge constante fait un procédé de séparation peu coûteux. D'autre part, étant donné que les particules sont collectées dans l'eau le risque de remise en suspension de particules lors des opérations de maintenance est minimisé. Cela signifie que le risque d'inhalation des particules ultrafines par l'opérateur est quasi nul. Cependant le travail d'intensification des performances doit être poursuivi afin d'atteindre des efficacités de collecte proches de celle des médias fibreux. Pour cela nous proposons quelques idées pour poursuivre cette optimisation:

- Colonne à bulles multi-étages avec la configuration optimale trouvée lors de cette étude.
- Étape d'agglomération en amont de la colonne à bulles, pour les particules de taille comprise entre 50 et 300 nm (MPPS), qui viendrait augmenter les performances de filtration de cette dernière.
- Ajout d'un filtre à particules, imperméable à l'eau, juste au-dessus du liquide de piégeage de la colonne à bulles afin de collecter les particules résiduelles, et diminuer le colmatage du filtre avec un nettoyage constant par le contact avec le liquide de collecte.
- Ajout d'un spray dans la partie supérieure de la colonne à bulles, de façon à obtenir un couplage entre une colonne à bulles et une colonne spray, qui permettrait de collecter les particules résiduelles dans le liquide de la colonne.

De plus, il serait intéressant, par la suite, de réaliser une étude hydrodynamique profonde du bullage dans cette configuration de la colonne à bulles et ainsi prédire avec plus d'exactitude l'efficacité de collecte de particules, afin d'obtenir une expression capable de prédire la taille de bulles générées dans une colonne à bulles équipée d'un lit de billes immergé dans une hauteur fixe de liquide de piégeage.

Actuellement dans la littérature, la recherche est orientée vers l'amélioration des techniques de nettoyage du filtre [58], cependant l'étude d'autres techniques de séparation comme l'électrofiltration, les lits granulaires ou la collecte de particules dans un liquide pourrait constituer des alternatives intéressantes ou des solutions complémentaires aux filtres.

# Bibliographie

- [1] M. Ducos. Hot spraying in thermal treatments. In Congres EUROCOAT 99, pages 625–641, Lyon, 1999. UATCM (Paris).
- [2] C. J. Johnston, J. N. Finkelstein, P. Mercer, N. Corson, R. Gelein, and G. Oberdorster. Pulmonary effects induced by ultrafine PTFE particles. Toxicology and Applied Pharmacology, 168(3):208–215, November 2000.
- [3] G. Mouret, D. Thomas, S. Chazelet, J. C. Appert-Collin, and D. Bemer. Penetration of nanoparticles through fibrous filters perforated with defined pinholes. Journal of Aerosol Science, 40(9):762–775, September 2009.
- [4] D. Bemer, R. Regnier, I. Subra, B. Sutter, M. T. Lecler, and Y. Morele. Ultrafine particles emitted by flame and electric arc guns for thermal spraying of metals. Annals of Occupational Hygiene, 54(6):607–614, January 2010.
- [5] J. C. Charpentier. Recent progress in two phase gas–liquid mass transfer in packed beds. The Chemical Engineering Journal, 11(3):161–181, 1976.
- [6] P. Trambouze and J. P. Euzen. Les reacteurs chimiques: de la conception a la mise en oeuvre. Editions OPHRYS, 2002.
- [7] A. Bandyopadhyay and M. N. Biswas. Fly–ash scrubbing in a tapered bubble column scrubber. Process Safety and Environmental Protection, 84(1):54–62, January 2006.
- [8] B. C. Meikap and M. N. Biswas. Fly–ash removal efficiency in a modified multi–stage bubble column scrubber. Separation and Purification Technology, 36(3):177–190, May 2004.
- [9] N. A. Fuchs. The mechanics of aerosols. Macmillan, 1964.
- [10] S. Yuu, T. Jotaki, and K. Abe. Investigation of the collection mechanism in absorption of aerosols by bubbling through water. Powder Technology, 17(1):115–122, May 1977.
- [11] ISO/TS 27687:2008. Nanotechnologies – terminology and definitions for nano–objects – nanoparticle, nanofibre and nanoplate, 2008.
- [12] W. C. Hinds. Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles. Wiley, 1999.
- [13] P. A. Baron and K. Willeke. Aerosol measurement: principles, techniques, and applications. Wiley, October 2001.
- [14] S. K. Friedlander. Smoke, dust, and haze: fundamentals of aerosol dynamics. Oxford University Press, New York, 2000.
- [15] G. Nichols, S. Byard, M. J. Bloxham, J. Botterill, N. J. Dawson, A. Dennis, V. Diart, N. C. North, and J. D. Sherwood. A review of the terms agglomerate and aggregate with a recommendation for nomenclature used in powder and particle characterization. Journal of Pharmaceutical Sciences, 91(10):2103–2109, October 2002.
- [16] E. Allen, J.. Henshaw, and P. Smith. A Review of Particle Agglomeration. AEA Technology plc, 2001.
- [17] A. Renoux and D. Boulaud. Les aerosols: Physique et metrologie. Tec & Doc Lavoisier, 1998.
- [18] M. K. Wu and S. K. Friedlander. Note on the power law equation for fractal like aerosol agglomerates. Journal of Colloid and Interface Science, 159(1):246–248, August 1993.

- [19] W. Koch and S. K Friedlander. The effect of particle coalescence on the surface area of a coagulating aerosol. Journal of Colloid and Interface Science, 140(2):419–427, December 1990.
- [20] J. H. J. Gijsbers, A. J. de Pater, R. J. Snippe, and J. H. E. Arts. Ultrafine particles in the workplace. Technical Report V 3045, TNO, 2000.
- [21] HSL. Risk assessment of airborne nanoparticles in the workplace (NANOSAFE). Sheffield, UK., 2000.
- [22] D. Wake, D. Mark, and C. Northage. Ultrafine aerosols in the workplace. Annals of Occupational Hygiene, 46(suppl 1):235–238, January 2002.
- [23] A. T. Zimmer and A. D. Maynard. Investigation of the aerosols produced by a high-speed, hand-held grinder using various substrates. The Annals of Occupational Hygiene, 46(8):663–672, November 2002.
- [24] M. Ricaud and O. Witschger. Les nanomateriaux. definitions, risques toxicologiques, caracterisation de l'exposition professionnelle et mesures de prevention. Technical Report ED 6050, INRS, 2012.
- [25] INRS. Operations de soudage a l'arc et de coupage, ed668. 2010; paris, 2010.
- [26] B. Herve-Bazin. Les nanoparticules: Un enjeu majeur pour la sante au travail? EDP Sciences, 2007.
- [27] G. Liden and J. Surakka. A headset mounted mini sampler for measuring exposure to welding aerosol in the breathing zone. The Annals of Occupational Hygiene, 53(2):99–116, March 2009.
- [28] E. Halasova, T. Baska, F. Kukura, D. Mazurova, E. Bukovska, D. Dobrota, I. Poliacek, and M. Halasa. Lung cancer in relation to occupational and environmental chromium exposure and smoking. Neoplasma, 52(4):287–291, 2005.
- [29] Afsset. Les nanomateriaux. effets sur la sante de l'homme et sur l'environnement. 2006.
- [30] D. W. Dockery and C. A. Pope. Acute respiratory effects of particulate air pollution. Annual Review of Public Health, 15:107–132, 1994.
- [31] W. Hagdnagy, R. Stiller Winkler, E. Kainka, U. Ranft, and H. Idel. Influence of urban particulate air pollution (PM10; PM2.5) on the immune system of children. Journal of Aerosol Science, 29:S997–S998, September 1998.
- [32] G. Oberdorster, J. Finkelstein, J. Ferin, J. Godleski, L. Y. Chang, R. Gelein, C. Johnston, and J. D. Crapo. Ultrafine particles as a potential environmental health hazard. studies with model particles. Chest, 109(3 Suppl):68S–69S, March 1996.
- [33] K. Donaldson, V. Stone, P. S. Gilmour, D. M. Brown, and W. MacNee. Ultrafine particles: mechanisms of lung injury. Philosophical Transactions of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 358(1775):2741–2749, October 2000.
- [34] L. Morawska. Environmental aerosol physics. Technical report, Queensland University of Technology, Brisbane, Australia, 2003.
- [35] G. Oberdorster, V. Stone, and K. Donaldson. Toxicology of nanoparticles: A historical perspective. Nanotoxicology, 1(1):2–25, January 2007.
- [36] G. Oberdorster. Pulmonary effects of inhaled ultrafine particles. International archives of occupational and environmental health, 74(1):1–8, January 2001.
- [37] G. Oberdorster, E. Oberdorster, and J. Oberdorster. Nanotoxicology: an emerging discipline evolving from studies of ultrafine particles. Environmental health perspectives, 113(7):823–839, July 2005.
- [38] M. E. Quadros and L. C. Marr. Environmental and human health risks of aerosolized silver nanoparticles. Journal of the Air & Waste Management Association, 60(7):770–781, July 2010.

- [39] M. Vance. The air we breathe, 2014.
- [40] Valeurs limites d'exposition professionnelle aux agents chimiques en france. Aide memoire technique. ED 984, INRS, 2012.
- [41] Décret *n*<sup>o</sup> 2012-746 du 9 mai 2012 fixant des valeurs limites d'exposition professionnelle contraignantes pour certains agents chimiques, May 2012.
- [42] R. G. Holdich. Fundamentals of Particle Technology. Midland Information Technology and Publishing, January 2002.
- [43] S. D. Bari. Les techniques de depoussierage des fumees industrielles: Etat de l'art. Ed. Tec & Doc, 2002.
- [44] L. Le Coq. Elimination des particules. Ed. Techniques Ingenieur, 2006.
- [45] S. R. Ardkapan, M. S. Johnson, S. Yazdi, A. Afshari, and N. C. Bergsoe. Filtration efficiency of an electrostatic fibrous filter: Studying filtration dependency on ultrafine particle exposure and composition. Journal of Aerosol Science, 72:14–20, June 2014.
- [46] H. P. Baumgartner and F. Löffler. The collection performance of electret filters in the particle size range 10 nm–10 micrometer. Journal of Aerosol Science, 17(3):438–445, 1986.
- [47] J. H. Park, K. Y. Yoon, Y. S. Kim, J. H. Byeon, and J. Hwang. Removal of submicron aerosol particles and bioaerosols using carbon fiber ionizer assisted fibrous medium filter media. Journal of Mechanical Science and Technology, 23(7):1846–1851, July 2009.
- [48] W. Peukert and C. Wadenpohl. Industrial separation of fine particles with difficult dust properties. Powder Technology, 118(1–2):136–148, August 2001.
- [49] M. Attoui, A. Renoux, and G. Madelaine. Experimental study on aerosol filtration through fibrous filters at low pressure. Journal of Aerosol Science, 25(7):1361–1362, October 1994.
- [50] D. Bemmer and S. Calle. Evolution of the efficiency and pressure drop of a filter media with loading. Aerosol science and technology, 33(5):427–439, 2000.
- [51] D. Bemmer and X. Simon. Performances des depoussiereurs a media filtrant. Hygiene et securite du travail: Cahiers de notes documentaires, 194:7–14, 2004.
- [52] H. W. Cho, C. S. Yoon, J. H. Lee, S. J. Lee, A. Viner, and E. W. Johnson. Comparison of pressure drop and filtration efficiency of particulate respirators using welding fumes and sodium chloride. Annals of Occupational Hygiene, 55(6):666–680, January 2011.
- [53] D. H. Han. Performance of respirator filters using quality factor in korea. Industrial health, 38(4):380–384, October 2000.
- [54] K. W. Lee and B. Y. H. Liu. Experimental study of aerosol filtration by fibrous filters. Aerosol Science and Technology, 1(1):35–46, December 1981.
- [55] D. Y. H. Pui and S. C. Kim. Penetration of nanoparticles through respirator filter media. Technical Report 20032217, NIOSH, 2006.
- [56] C. Yang. Aerosol filtration application using fibrous media – an industrial perspective. Chinese Journal of Chemical Engineering, 20(1):1–9, February 2012.
- [57] H. C. Yeh and B. Y. H. Liu. Aerosol filtration by fibrous filters II. experimental. Journal of Aerosol Science, 5(2):205–217, March 1974.
- [58] D. Bemmer, R. Regnier, Y. Morele, F. Gripari, J. C. Appert-Collin, and D. Thomas. Study of clogging and cleaning cycles of a pleated cartridge filter used in a thermal spraying process to filter ultrafine particles. Powder Technology, 234:1–6, January 2013.

- [59] S. Calle, D. Bemer, D. Thomas, P. Contal, and D. Leclerc. Changes in the performances of filter media during clogging and cleaning cycles. The Annals of Occupational Hygiene, 45(2):115–121, March 2001.
- [60] S. Calle, P. Contal, D. Thomas, D. Bemer, and D. Leclerc. Description of the clogging and cleaning cycles of filter media. Powder Technology, 123(1):40–52, February 2002.
- [61] V. M. Mocho and F. X. Ouf. Clogging of industrial pleated high efficiency particulate air (HEPA) filters in the event of fire. Nuclear Engineering and Design, 241(5):1785–1794, May 2011.
- [62] X. Simon, S. Chazelet, D. Thomas, D. Bemer, and R. Regnier. Experimental study of pulse-jet cleaning of bag filters supported by rigid rings. Powder Technology, 172(2):67–81, March 2007.
- [63] X. Simon, D. Bemer, S. Chazelet, D. Thomas, and R. Regnier. Consequences of high transitory airflows generated by segmented pulse-jet cleaning of dust collector filter bags. Powder Technology, 201(1):37–48, July 2010.
- [64] X. Simon, D. Bemer, S. Chazelet, and D. Thomas. Downstream particle puffs emitted during pulse-jet cleaning of a baghouse wood dust collector: Influence of operating conditions and filter surface treatment. Powder Technology, 261:61–70, 2014.
- [65] E. H. Tanabe, P. M. Barros, K. B. Rodrigues, and M. L. Aguiar. Experimental investigation of deposition and removal of particles during gas filtration with various fabric filters. Separation and Purification Technology, 80(2):187–195, July 2011.
- [66] L. M. Lo, D. R. Chen, and D. Y. H. Pui. Experimental study of pleated fabric cartridges in a pulse jet cleaned dust collector. Powder Technology, 197(3):141–149, January 2010.
- [67] J. Binnig, J. Meyer, and G. Kasper. Origin and mechanisms of dust emission from pulse jet cleaned filter media. Powder Technology, 189(1):108–114, January 2009.
- [68] L. Morawska. Environmental aerosol physics. Technical report, Queensland University of Technology, Brisbane, Australia, 2003.
- [69] Directive 98/24/CE du conseil concernant la protection de la sante et de la securite des travailleurs contre les risques lies a des agents chimiques sur le lieu de travail.
- [70] ESAB Welding & Cutting Products. Basic welding filler metal technology, 2000.
- [71] W. L. Bassis and W. L. Ballis. Arc Welding: Theories & Techniques. Greyden Press, 1997.
- [72] K. L. Brown. Environmental aspects of fume in air and water. Technical Report CV111 1804-97, International Institute of Welding Document., Villepinte, 1997.
- [73] J. Haidar. An analysis of heat transfer and fume production in gas metal arc welding. III. Journal of Applied Physics, 85(7):3448–3459, April 1999.
- [74] N. T. Jenkins. Chemistry of airborne particles from metallurgical processing. Thesis, Massachusetts Institute of Technology, 2003. Thesis (Ph.D.)–Massachusetts Institute of Technology, Dept. of Materials Science and Engineering, 2003.
- [75] L. S. Ruzer and N. H. Harley. Aerosols Handbook: Measurement, Dosimetry, and Health Effects, Second Edition. CRC Press, January 2013.
- [76] I. Colbeck and M. Lazaridis. Aerosol Science: Technology and Applications. John Wiley & Sons, January 2014.
- [77] P. Kulkarni, P. A. Baron, and K. Willeke. Aerosol Measurement: Principles, Techniques, and Applications. John Wiley & Sons, September 2011.

- [78] S. Degallaix. Caracterisation experimentale des materiaux: Proprietes physiques, thermiques et mecaniques. PPUR presses polytechniques, 2007.
- [79] C. A. III. Pope. Particulate pollution and health: a review of the utah valley experience. Journal of exposure analysis and environmental epidemiology, 6(1):23–34, March 1996.
- [80] H. E. Wichmann, C. Spix, T. Tuch, G. Wolke, A. Peters, J. Heinrich, W. G. Kreyling, and J. Heyder. Daily mortality and fine and ultrafine particles in erfurt, germany part i: role of particle number and particle mass. Research report (Health Effects Institute), (98):5–86; discussion 87–94, November 2000.
- [81] R. A. Millikan. Coefficients of slip in gases and the law of reflection of molecules from the surfaces of solids and liquids. Physical Review, 21(3):217–238, March 1923.
- [82] C. N. Davies. Definitive equations for the fluid resistance of spheres. Proceedings of the Physical Society, 57(4):259, July 1945.
- [83] M. D. Allen and O. G. Raabe. Re-evaluation of millikan’s oil drop data for the motion of small particles in air. Journal of Aerosol Science, 13(6):537–547, 1982.
- [84] M. D. Allen and O. G. Raabe. Slip correction measurements for aerosol particles of doublet and triangular triplet aggregates of spheres. Journal of Aerosol Science, 16(1):57–67, 1985.
- [85] R. L. Buckley and S. K. Loyalka. Cunningham correction factor and accommodation coefficient: Interpretation of millikan’s data. Journal of Aerosol Science, 20(3):347–349, 1989.
- [86] D. J. Rader. Momentum slip correction factor for small particles in nine common gases. Journal of Aerosol Science, 21(2):161–168, 1990.
- [87] D. K. Hutchins, M. H. Harper, and R. L. Felder. Slip correction measurements for solid spherical particles by modulated dynamic light scattering. Aerosol Science and Technology, 22(2):202–218, 1995.
- [88] J. H. Kim, G. W. Mulholland, S. R. Kukuck, and D. Y. H. Pui. 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, January 2005.
- [89] H. Jung, G. W. Mulholland, D. Y. H. Pui, and J. H. Kim. Re-evaluation of the slip correction parameter of certified PSL spheres using a nanometer differential mobility analyzer (ndma). Journal of Aerosol Science, 51:24–34, September 2012.
- [90] G. Hcnel and J. Thudium. Mean bulk densities of samples of dry atmospheric aerosol particles: A summary of measured data. Pure and Applied Geophysics, 115(4):799–803, July 1977.
- [91] J. Thudium. A gas pycnometer (microliter) for determining the mean density of atmospheric aerosol particles. Journal of Aerosol Science, 7(2):167–173, 1976.
- [92] P. F. DeCarlo, J. G. Slowik, D. R. Worsnop, P. Davidovits, and J. L. Jimenez. Particle morphology and density characterization by combined mobility and aerodynamic diameter measurements. part 1: Theory. Aerosol Science and Technology, 38(12):1185–1205, 2004.
- [93] E. Karg. The density of ambient particles from combined DMA and APS data. Journal of Aerosol Science, 31, Supplement 1:759–760, September 2000.
- [94] W. P. Kelly and P. H. McMurry. Measurement of particle density by inertial classification of differential mobility analyzer-generated monodisperse aerosols. Aerosol Science and Technology, 17(3):199–212, 1992.

- [95] A. Khlystov, C. Stanier, and S. N. Pandis. An algorithm for combining electrical mobility and aerodynamic size distributions data when measuring ambient aerosol special issue of aerosol science and technology on findings from the fine particulate matter supersites program. Aerosol Science and Technology, 38(sup1):229–238, 2004.
- [96] M. Pitz, J. Cyrus, E. Karg, A. Wiedensohler, H. E. Wichmann, and J. Heinrich. Variability of apparent particle density of an urban aerosol. Environmental Science & Technology, 37(19):4336–4342, October 2003.
- [97] S. V. Hering and M. R. Stolzenburg. On-line determination of particle size and density in the nanometer size range. Aerosol Science and Technology, 23(2):155–173, 1995.
- [98] B. Schleicher, S. Kunzel, and H. Burtscher. Insitu measurement of size and density of submicron aerosol particles. Journal of Applied Physics, 78(7):4416–4422, October 1995.
- [99] M. M. Maricq, D. H. Podsiadlik, and R. E. Chase. Size distributions of motor vehicle exhaust pm: A comparison between elpi and smps measurements. Aerosol Science and Technology, 33(3):239–260, 2000.
- [100] G. Skillas, H. Burtscher, K. Siegmann, and U. Baltensperger. Density and fractal-like dimension of particles from a laminar diffusion flame. Journal of Colloid and Interface Science, 217(2):269–274, September 1999.
- [101] J. Keskinen, K. Pietarinen, and M. Lehtimäki. Electrical low pressure impactor. Journal of Aerosol Science, 23(4):353–360, June 1992.
- [102] H. D. Price, B. Stahlmecke, R. Arthur, H. Kaminski, J. Lindermann, E. Dcuber, C. Asbach, T. A. J. Kuhlbusch, K. A. BeruBe, and T. P. Jones. Comparison of instruments for particle number size distribution measurements in air quality monitoring. Journal of Aerosol Science, 76:48–55, October 2014.
- [103] J. Keskinen, M. Moisio, M. Marjamäki, A. Virtanen, and J. Ristimäki. Patent WO/2003/021235: Method of measuring density properties of a particle distribution, March 2003.
- [104] U. Lehmann, V. Niemelä, and M. Mohr. New method for time-resolved diesel engine exhaust particle mass measurement. Environmental Science & Technology, 38(21):5704–5711, November 2004.
- [105] B. Y. H Liu and D. Y. H Pui. A submicron aerosol standard and the primary, absolute calibration of the condensation nuclei counter. Journal of Colloid and Interface Science, 47(1):155–171, April 1974.
- [106] E. O. Knutson and K. T. Whitby. Aerosol classification by electric mobility: apparatus, theory, and applications. Journal of Aerosol Science, 6(6):443–451, November 1975.
- [107] J. Ristimäki, A. Virtanen, M. Marjamäki, A. Rostedt, and J. Keskinen. On-line measurement of size distribution and effective density of submicron aerosol particles. Journal of Aerosol Science, 33(11):1541–1557, November 2002.
- [108] C. Van Gulijk, J. C. M. Marijnissen, M. Makkee, J. A. Moulijn, and A. Schmidt-Ott. 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(5):633–655, May 2004.
- [109] A. Virtanen, J. Ristimäki, and J. Keskinen. Method for measuring effective density and fractal dimension of aerosol agglomerates. Aerosol Science and Technology, 38(5):437–446, 2004.
- [110] O. Schmid, E. Karg, D. E. Hagen, P. D. Whitefield, and G. A. Ferron. On the effective density of non-spherical particles as derived from combined measurements of aerodynamic and mobility equivalent size. Journal of Aerosol Science, 38(4):431–443, April 2007.



- [111] A. Rostedt, M. Marjamcki, and J. Keskinen. Modification of the elpi to measure mean particle effective density in real-time. *Journal of Aerosol Science*, 40(9):823–831, September 2009.
- [112] Y. Dong, M. D. Hays, N. D. Smith, and J. S. Kinsey. Inverting cascade impactor data for size-resolved characterization of fine particulate source emissions. *Journal of Aerosol Science*, 35(12):1497–1512, December 2004.
- [113] S. Bau and O. Witschger. A modular tool for analyzing cascade impactors data to improve exposure assessment to airborne nanomaterials. *Journal of Physics: Conference Series*, 429(1):012002, April 2013.
- [114] J. E. Brockmann and D. J. Rader. Aps response to nonspherical particles and experimental determination of dynamic shape factor. *Aerosol Science and Technology*, 13(2):162–172, 1990.
- [115] V. M. Kerminen, T. Mckelc, R. Hillamo, and L. Rantanen. Relation between particle number and mass size distribution in the diesel car exhaust. *Journal of Aerosol Science*, 30, Supplement 1:S777–S778, September 1999.
- [116] S. C. Wang and R. C. Flagan. Scanning electrical mobility spectrometer. *Aerosol Science and Technology*, 13(2):230–240, 1990.
- [117] P. H. McMurry, X. Wang, K. Park, and K. Ehara. The relationship between mass and mobility for atmospheric particles: A new technique for measuring particle density. *Aerosol Science and Technology*, 36(2):227–238, 2002.
- [118] K. Ehara, C. Hagwood, and K. J. Coakley. Novel method to classify aerosol particles according to their mass-to-charge-ratio –aerosol particle mass analyser. *Journal of Aerosol Science*, 27(2):217–234, March 1996.
- [119] K. Park, F. Cao, D. B. Kittelson, and P. H. McMurry. Relationship between particle mass and mobility for diesel exhaust particles. *Environmental Science & Technology*, 37(3):577–583, February 2003.
- [120] B. K. Ku, M. S. Emery, A. D. Maynard, M. R. Stolzenburg, and P. H. McMurry. In situ structure characterization of airborne carbon nanofibres by a tandem mobility–mass analysis. *Nanotechnology*, 17(14):3613, July 2006.
- [121] B. K. Ku and P. Kulkarni. Comparison of diffusion charging and mobility-based methods for measurement of aerosol agglomerate surface area. *Journal of Aerosol Science*, 47:100–110, May 2012.
- [122] Q. Liu, X. Ma, and M. R. Zachariah. Combined on-line differential mobility and particle mass analysis for determination of size resolved particle density and microstructure evolution. *Microporous and Mesoporous Materials*, 153:210–216, May 2012.
- [123] A. Charvet, S. Bau, N. E. Paez-Coy, D. Bemmer, and D. Thomas. Caraceterisation physique d’aerosols nanostructures. *Recents Progres en Genie des Procedes*, 2013.
- [124] A. Charvet, S. Bau, N. E. Paez-Coy, D. Bemmer, and D. Thomas. Characterizing the effective density and primary particle diameter of airborne nanoparticles produced by spark discharge using mobility and mass measurements (tandem dma/apm). *Journal of Nanoparticle Research*, 16(5):1–11, May 2014.
- [125] G. Kasper. Dynamics and measurement of smokes. i size characterization of nonspherical particles. *Aerosol Science and Technology*, 1(2):187–199, 1982.
- [126] A. A. Lall, W. Rong, L. Madler, and S. K. Friedlander. Nanoparticle aggregate volume determination by electrical mobility analysis: Test of idealized aggregate theory using aerosol particle mass analyzer measurements. *Journal of Aerosol Science*, 39(5):403–417, May 2008.

- [127] M. Shapiro, P. Vainshtein, D. Dutcher, M. Emery, M. Stolzenburg, D. B. Kittelson, and P. H. McMurry. Characterization of agglomerates by simultaneous measurement of mobility, vacuum aerodynamic diameter and mass. Journal of Aerosol Science, 44:24–45, February 2012.
- [128] F. X. Ouf. Caracterisation des aerosols emis lors d'un incendie. Rouen, January 2006.
- [129] C. M. Sorensen. The mobility of fractal aggregates: A review. Aerosol Science and Technology, 45(7):765–779, March 2011.
- [130] T. Gillespie. The role of electric forces in the filtration of aerosols by fiber filters. Journal of Colloid Science, 10(3):299–314, June 1955.
- [131] A. A. Kirsch. The influence of an external electric field on the deposition of aerosols in fibrous filters. Journal of Aerosol Science, 3(1):25–29, 1972.
- [132] R. Lathrache, H. J. Fissan, and S. Neumann. Deposition of submicron particles on electrically charged fibers. Journal of Aerosol Science, 17(3):446–449, 1986.
- [133] C. S. Wang. Electrostatic forces in fibrous filters—a review. Powder Technology, 118(1–2):166–170, August 2001.
- [134] M. Shapiro, G. Laufer, and C. Gutfinger. Electric forces in aerosol filtration in fibrous and granular filters—a parametric study. Atmospheric Environment (1967), 17(3):477–484, 1983.
- [135] D. Thomas, G. Mouret, M. C. Cadavid-Rodriguez, S. Chazelet, and D. Berner. An improved model for the penetration of charged and neutral aerosols in the 4 to 80 nm range through stainless steel and dielectric meshes. Journal of Aerosol Science, 57:32–44, March 2013.
- [136] G. A. Kallio, P. W. Dietz, and C. Gutfinger. Filtration efficiencies in electrostatically augmented granular beds. Environment International, 6(1–6):415–422, 1981.
- [137] M. Shapiro, C. Gutfinger, and G. Laufer. Electrostatic mechanisms of aerosol collection by granular filters: A review. Journal of Aerosol Science, 19(6):651–677, December 1988.
- [138] R. E. Barker, R. R. Brunson, S. D. Clinton, and J. S. Watson. Granular electrofiltration. Separations Technology, 1(3):166–174, 1991.
- [139] D. Berner, I. Subra, Y. Morele, A. Charvet, and D. Thomas. Experimental study of granular bed filtration of ultrafine particles emitted by a thermal spraying process. Journal of Aerosol Science, 63:25–37, September 2013.
- [140] S. I. Ylitalo, E. I. Kauppinen, J. Hautanen, J. Joutsensaari, P. Ahonen, T. M. Lind, J. K. Jokiniemi, and M. Kilpelinen. On the determination of electrostatic precipitator efficiency by differential mobility analyzer. Journal of Aerosol Science, 23, Supplement 1:795–798, 1992.
- [141] Y. Zhuang, Y. J. Kim, T. G. Lee, and P. Biswas. Experimental and theoretical studies of ultra-fine particle behavior in electrostatic precipitators. Journal of Electrostatics, 48(3–4):245–260, March 2000.
- [142] M. Kocik, J. Dekowski, and J. Mizeraczyk. Particle precipitation efficiency in an electrostatic precipitator. Journal of Electrostatics, 63(6–10):761–766, June 2005.
- [143] J. Podlinski, A. Niewulis, and J. Mizeraczyk. Electrohydrodynamic flow and particle collection efficiency of a spike–plate type electrostatic precipitator. Journal of Electrostatics, 67(2–3):99–104, May 2009.
- [144] J. H. Byeon, J. Hwang, J. H. Park, K. Y. Yoon, B. J. Ko, S. H. Kang, and J. H. Ji. Collection of submicron particles by an electrostatic precipitator using a dielectric barrier discharge. Journal of Aerosol Science, 37(11):1618–1628, November 2006.

- [145] A. Bologa, H. R. Paur, H. Seifert, T. Wcscher, and K. Woletz. Novel wet electrostatic precipitator for collection of fine aerosol. Journal of Electrostatics, 67(2–3):150–153, May 2009.
- [146] R. C. Brown. Tutorial review: Simultaneous measurement of particle size and particle charge. Journal of Aerosol Science, 28(8):1373–1391, December 1997.
- [147] F. X. Ouf and P. Sillon. 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(7):685–698, 2009.
- [148] B. Forsyth, B. Y. H. Liu, and F. J. Romay. Particle charge distribution measurement for commonly generated laboratory aerosols. Aerosol Science and Technology, 28(6):489–501, 1998.
- [149] A. A. Lall and S. K. Friedlander. On line measurement of ultrafine aggregate surface area and volume distributions by electrical mobility analysis: I. theoretical analysis. Journal of Aerosol Science, 37(3):260–271, March 2006.
- [150] P. Zehner and M. Kraume. Bubble columns. In Ullmann’s Encyclopedia of Industrial Chemistry. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2000.
- [151] P. R. Thimmapuram, N. S. Rao, and S. C. Saxena. Characterization of hydrodynamic regimes in a bubble column. Chemical Engineering Science, 47(13–14):3355–3362, September 1992.
- [152] W. D. Deckwer. Bubble column reactors. Wiley, 1992.
- [153] D. J. Vermeer and R. Krishna. Hydrodynamics and mass transfer in bubble columns in operating in the churn–turbulent regime. Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development, 20(3):475–482, July 1981.
- [154] R. Krishna, P. M. Wilkinson, and L. L. Van Dierendonck. A model for gas holdup in bubble columns incorporating the influence of gas density on flow regime transitions. Chemical Engineering Science, 46(10):2491–2496, 1991.
- [155] D. Chakraborty, G. S. R. Krishna, S. Chakraborty, and B. C. Meikap. Hydrodynamic characteristics of a sparged gas–liquid contactor for fine bubble generation. Industrial & Engineering Chemistry Research, 48(24):11225–11229, December 2009.
- [156] K. Koide. Design parameters of bubble column reactors with and without solid suspensions. Journal of Chemical Engineering of Japan, 29(5):745–759, 1996.
- [157] D. W. Van Krevelen and P. J. Hoftijzer. Studies of gas–bubble formation. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 46(1):29–35, 1950.
- [158] J. F. Davidson and B. O. G. Schuler. Bubble formation at an orifice in a viscous liquid. Chemical Engineering Research & Design: Transactions of the Institution of Chemical Engineers. Part A, 38:144–154, 1960.
- [159] J. F. Davidson and D. Harrison. Fluidised Particles. Cambridge University Press, first edition edition, 1963.
- [160] J. K. Walters and J. F. Davidson. The initial motion of a gas bubble formed in an inviscid liquid. Journal of Fluid Mechanics, 17(03):321 – 336, 1963.
- [161] R. Kumar and N. Kuloor. The formation of bubbles and drops. Advances in Chemical Engineering, 8:228–368, 1970.
- [162] K. Akita and F. Yoshida. Bubble size, interfacial area, and liquid–phase mass transfer coefficient in bubble columns. Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development, 13(1):84–91, January 1974.

- [163] E. S. Gaddis and A. Vogelpohl. Bubble formation in quiescent liquids under constant flow conditions. Chemical Engineering Science, 41(1):97–105, 1986.
- [164] R. H. S. Winterson. A simple method of predicting bubble size in bubble columns. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 33(1):1–5, March 1994.
- [165] K. Schugerl, J. Lucke, and U. Oels. Bubble column bioreactors. In Advances in Biochemical Engineering, Volume 7, number 7 in Advances in Biochemical Engineering, pages 1–84. Springer Berlin Heidelberg, January 1977.
- [166] U. Oels, J. Lucke, R. Bucholz, and K. Schugerl. Influence of gas distributor type and composition of liquid on the behaviour of a bubble column bioreactor. German chemical engineering, 1:115–129, 1978.
- [167] W. L. Haberman and R. K. Morton. An experimental investigation of the drag and shape of air bubbles rising in various liquids. Technical report, September 1953.
- [168] M. Motarjemi and G. J. Jameson. Mass transfer from very small bubbles—the optimum bubble size for aeration. Chemical Engineering Science, 33(11):1415–1423, 1978.
- [169] H. D. Mendelson. The prediction of bubble terminal velocities from wave theory. AIChE Journal, 13(2):250–253, March 1967.
- [170] R. M. Davies and G. I. Taylor. The mechanics of large bubbles rising through extended liquids and through liquids in tubes. Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 200(1062):375–390, February 1950.
- [171] B. N. Thorat, K. Kataria, A. V. Kulkarni, and J. B. Joshi. Pressure drop studies in bubble columns. Industrial & Engineering Chemistry Research, 40(16):3675–3688, August 2001.
- [172] B. Raj Mohan, S. Biswas, and B. C. Meikap. Performance characteristics of the particulates scrubbing in a counter-current spray-column. Separation and Purification Technology, 61(1):96–102, June 2008.
- [173] B. Raj Mohan and B. C. Meikap. Performance characteristics of the particulate removal in a novel spray-cum-bubble column scrubber. Chemical Engineering Research and Design, 87(1):109–118, 2009.
- [174] H. T. Kim, C. H. Jung, S. N. Oh, and K. W. Lee. Particle removal efficiency of gravitational wet scrubber considering diffusion, interception, and impaction. Environmental Engineering Science, 18(2):125–136, March 2001.
- [175] B. A. Danzomo, M. J. E. Salami, M. R. Khan, S. Jibrin, and I. M. Nor. Performance evaluation of wet scrubber system for industrial air pollution control. ARPJ Journal of Engineering and Applied Sciences, 7(12):1669–1677, December 2012.
- [176] T. G. Kaldor and C. R. Phillips. Aerosol scrubbing by foam. Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development, 15(1):199–206, January 1976.
- [177] M. Hermeling and A. P. Weber. Nanoparticle separation from rising bubbles in aqueous solutions. 2010.
- [178] A. Charvet, N. Bardin-Monnier, and D. Thomas. Can bubble columns be an alternative to fibrous filters for nanoparticles collection? Journal of Hazardous Materials, 195:432–439, November 2011.
- [179] D. Koch and A. P. Weber. Separation of gas-borne nanoparticles in bubble columns. Journal of Aerosol Science, 53:61–75, November 2012.
- [180] B. K. Lee, B. R. Mohan, S. H. Byeon, K. S. Lim, and E. P. Hong. Evaluating the performance of a turbulent wet scrubber for scrubbing particulate matter. Journal of the Air & Waste Management Association, 63(5):499–506, 2013.

- [181] J. Pich and W. Schutz. On the theory of particle deposition in rising gas bubbles: The absorption minimum. Journal of Aerosol Science, 22(3):267–272, 1991.
- [182] En 779:2012 european test method for air filters, 2012.
- [183] Y. T. Shah, B. G. Kelkar, S. P. Godbole, and W. D. Deckwer. Design parameters estimations for bubble column reactors. AIChE Journal, 28(3):353–379, May 1982.
- [184] M. W. Haque, K. D. P. Nigam, and J. B. Joshi. Optimum gas sparger design for bubble columns with a low height-to-diameter ratio. The Chemical Engineering Journal, 33(2):63–69, October 1986.
- [185] E. Camarasa, C. Vial, S. Poncin, G. Wild, N. Midoux, and J. Bouillard. Influence of coalescence behaviour of the liquid and of gas sparging on hydrodynamics and bubble characteristics in a bubble column. Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 38(4–6):329–344, September 1999.
- [186] M. Polli, M. D. Stanislao, R. Bagatin, E. A. Bakr, and M. Masi. Bubble size distribution in the sparger region of bubble columns. Chemical Engineering Science, 57(1):197–205, January 2002.
- [187] A. A. Kulkarni and J. B. Joshi. Bubble formation and bubble rise velocity in gas–liquid systems: A review. Ind. Eng. Chem. Res., 44(16):5873–5931, 2005.
- [188] A. V. Kulkarni and J. B. Joshi. Design and selection of sparger for bubble column reactor. part ii: Optimum sparger type and design. Chemical Engineering Research and Design, 89(10):1986–1995, October 2011.
- [189] A. V. Kulkarni and J. B. Joshi. Design and selection of sparger for bubble column reactor. part i: Performance of different spargers. Chemical Engineering Research and Design, 89(10):1972–1985, October 2011.
- [190] G. Gan and S. B. Riffat. Pressure loss characteristics of orifice and perforated plates. Experimental Thermal and Fluid Science, 14(2):160–165, February 1997.
- [191] L. J. Weber, M. P. Cherian, M. E. Allen, and M. Muste. Headloss characteristics for perforated plates and flat bar screens. Technical report 411, Institute of Hydraulic Engineering, College of Engineering, University of Iowa., Iowa City (IA), USA, March 2000.
- [192] S. Malavasi, G. Messa, U. Fratino, and A. Pagano. On the pressure losses through perforated plates. Flow Measurement and Instrumentation, 28:57–66, December 2012.
- [193] H. Li and A. Prakash. Heat transfer and hydrodynamics in a three–phase slurry bubble column. Industrial & Engineering Chemistry Research, 36(11):4688–4694, November 1997.
- [194] H. Hikita, S. Asai, K. Tanigawa, K. Segawa, and M. Kitao. Gas hold-up in bubble columns. The Chemical Engineering Journal, 20(1):59–67, 1980.
- [195] E. Sada, S. Katoh, H. Yoshii, T. Yamanishi, and A. Nakanishi. Performance of the gas bubble column in molten salt systems. Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development, 23(1):151–154, January 1984.
- [196] J. R. Fair, A. J. Lambright, and J. W. Andersen. Heat transfer and gas holdup in a sparged contactor. Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development, 1(1):33–36, January 1962.
- [197] G. Marrucci and L. Nicodemo. Coalescence of gas bubbles in aqueous solutions of inorganic electrolytes. Chemical Engineering Science, 22(9):1257–1265, September 1967.
- [198] R. R. Lessard and S. A. Zieminski. Bubble coalescence and gas transfer in aqueous electrolytic solutions. Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals, 10(2):260–269, May 1971.
- [199] S. A. Zieminski and R. C. Whittemore. Behavior of gas bubbles in aqueous electrolyte solutions. Chemical Engineering Science, 26(4):509–520, April 1971.

- [200] G. Keitel and U. Onken. Inhibition of bubble coalescence by solutes in air/water dispersions. Chemical Engineering Science, 37(11):1635–1638, 1982.
- [201] R. Burckhart and W. D. Deckwer. Bubble size distribution and interfacial areas of electrolyte solutions in bubble columns. Chemical Engineering Science, 30(3):351–354, March 1975.
- [202] M. Jamialahmadi and H. Muller-Steinhagen. Effect of alcohol, organic acid and potassium chloride concentration on bubble size, bubble rise velocity and gas hold-up in bubble columns. The Chemical Engineering Journal, 50(1):47–56, October 1992.
- [203] L. Moldavsky, C. Gutfinger, A. Oron, and M. Fichman. Effect of sonic waves on gas filtration by granular beds. Journal of Aerosol Science, 57:125–130, March 2013.
- [204] R. C. Brown. Air filtration: an integrated approach to the theory and applications of fibrous filters. Pergamon Press, November 1993.
- [205] C. N. Davies. Aerosol science. Academic Press, 1966.
- [206] K. I. Tanoue, M. Yamaguchi, and H. Masuda. Electrostatic control of particle deposition. Advanced Powder Technology, 10(2):119–132, 1999.

# Définitions sur les aérosols

---

## A.1 Définitions

Un aérosol est un ensemble de particules, solides ou liquides, d'une substance donnée en suspension dans un milieu gazeux. Quelques paramètres indispensables pour sa caractérisation sont définis par la suite [12, 17].

### A.1.1 Diamètre de Stokes, $d_s$

Le diamètre de Stokes est le diamètre d'une sphère qui a la même vitesse de sédimentation et la même masse volumique que la particule.

### A.1.2 Diamètre équivalent en volume, $d_{ev}$

Le diamètre équivalent en volume est défini comme le diamètre d'une sphère qui a la même masse,  $m$ , que la particule de masse volumique,  $\rho_p$ .

$$d_{ev} = \left( \frac{6 \cdot m}{\pi \cdot \rho_p} \right)^{1/3} \quad (\text{A.1})$$

### A.1.3 Diamètre aérodynamique, $d_a$

Le diamètre aérodynamique est le diamètre d'une sphère ayant la même vitesse de chute que la particules, et une masse spécifique égale à  $1 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ . Dans le cas d'une particule quelconque, on montre que

$$d_a = \sqrt{\frac{\rho_p}{\chi}} \cdot d_{ev} \quad (\text{A.2})$$

$\rho_p$  est la masse volumique de l'aérosol dont  $\chi$  est le facteur de forme dynamique et  $d_{ev}$  est le diamètre équivalent en volume de la distribution granulométrique des aérosols.

### A.1.4 Facteur de forme dynamique, $\chi$

Le facteur de forme dynamique d'une particule est défini par le rapport entre la force de trainée sur une particule non sphérique et celle sur une particule sphérique de même volume et d'égale vitesse limite de sédimentation.

$$\chi = \frac{\rho_p}{\rho_m} \cdot \left( \frac{d_{ev} \cdot Cu(s)}{d_s \cdot Cu(ev)} \right)^2 \quad (\text{A.3})$$

Où,  $\rho_p$  et  $\rho_m$  correspondent à la masse volumique de la particule et du matériau respectivement,  $d_{ev}$  est le diamètre équivalent en volume et  $d_s$  le diamètre de Stokes. En général, le facteur de forme est supérieur à 1 et il est égal à 1 quand il s'agit d'une particule sphérique.

### A.1.5 Coefficient de sphéricité

Le coefficient de sphéricité fait le rapport entre la surface d'une sphère de même volume que la particule et la surface de la particule. En général, sa valeur est inférieure à 1, et elle est égale à 1 quand la particule est une sphère.

### A.1.6 Propriétés électriques des particules

Certaines propriétés caractéristiques des aérosols seront définies par la suite afin de mieux comprendre leur comportement [12, 17, 146, 206]. Une de ces propriétés est la mobilité dynamique qui correspond au rapport entre la vitesse caractéristique de la particule, en l'occurrence sa vitesse de sédimentation  $u_{TS}$ , et la force de résistance  $F_D$  qu'oppose le fluide. La mobilité dynamique,  $B$ , d'une particule est définie par l'équation A.4,

$$B = \frac{u_{TS}}{F_D} \quad (\text{A.4})$$

En général, un aérosol tend vers un état d'équilibre, ce qui signifie que sa charge globale est nulle. Cependant, des particules peuvent acquérir une charge électrique due à la présence des ions du gaz. Ainsi, une particule portant une charge électrique  $q$  (avec  $n$  le nombre d'unités de charge élémentaire  $e$ ) subit, dans un champ électrique  $E$ , une force électrique  $F_{el}$ , donnée pour l'équation A.5,

$$F_{el} = q \cdot E \quad (\text{A.5})$$

Lorsque la particule est soumise à ce champ électrique, elle acquiert une vitesse  $u_{TE}$  telle que  $u_{TE} = Z \cdot E$ , avec  $Z$  la mobilité électrique de la particule définie par l'expression suivante (Équation A.6),

$$Z = \frac{u_{TE}}{E} = \frac{q}{3 \cdot \pi \mu_g \cdot d_p} \cdot Cu \quad (\text{A.6})$$

Où,  $\mu_g$  est la viscosité du gaz,  $d_p$  est le diamètre de particule et  $Cu$  est le facteur de correction de Cunningham.

Le diamètre de mobilité électrique d'une particule, paramètre souvent utilisé pour caractériser un aérosol, est défini comme le diamètre de la sphère qui a la même mobilité électrique que la particule.



# Instruments pour la caractérisation des aérosols

## B.1 Modification et mesure de la charge des particules

### B.1.1 Générateur d'ions bipolaires TOPAS EAN 581

La distribution de charge des particules d'un aérosol peut être modifiée grâce au générateur d'ions bipolaires Topas EAN 581, lequel peut appliquer une charge positive ou négative en fonction des conditions souhaitées. Il permet également d'atteindre l'équilibre de charge des particules (neutralisation de l'aérosol) à l'aide d'un mélange d'ions positifs et négatifs. Le fonctionnement du Topas EAN 581 repose sur le principe d'un chargeur à effet corona [12] et correspond à une chambre de mélange avec deux têtes d'ionisation séparées et une unité de contrôle (cf. Figure B.1). Les ions, positifs et négatifs générés, sont envoyés dans la chambre de mélange à l'aide d'une source d'air comprimé filtré connectée à chaque tête d'ionisation, où ils vont être mis en contact avec l'aérosol. L'aérosol n'entre ainsi pas en contact avec les électrodes de charge.

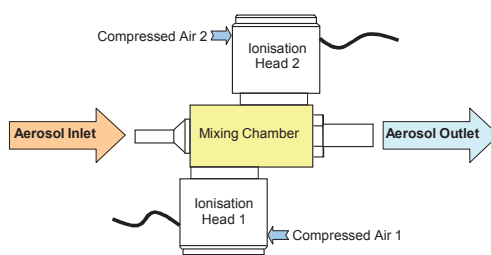


FIGURE B.1 – Principe de fonctionnement du générateur d'ions bipolaires Topas EAN 581.

### B.1.2 Electromètre pour aérosols TSI 3068B

L'électromètre TSI 3068B permet de réaliser des mesures en temps réel de la charge nette des aérosols générés. L'aérosol est envoyé dans l'électromètre à l'aide d'une pompe externe. Un débitmètre interne et une vanne contrôlée par un microprocesseur vont maintenir le débit fixé pour l'échantillon d'aérosol. Un filtre, isolé électriquement, de haute efficacité va collecter les particules chargées [77]. Finalement, un électromètre de très haute sensibilité mesure le courant électrique des particules collectées (cf. Figure B.2).

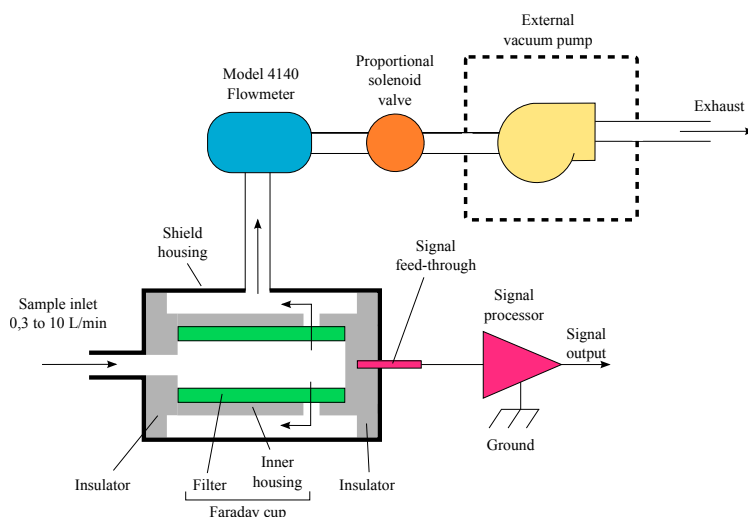


FIGURE B.2 — Principe de fonctionnement de l'électromètre pour aérosols TSI 3068B.

## B.2 Granulomètres

### B.2.1 Compteur optique de particules LASAIR 1001 et LASAIR 310

Le compteur optique de particules mesure l'intensité du flux de lumière diffusé à un angle donné pour une seule particule [12] (cf. Figure B.3).

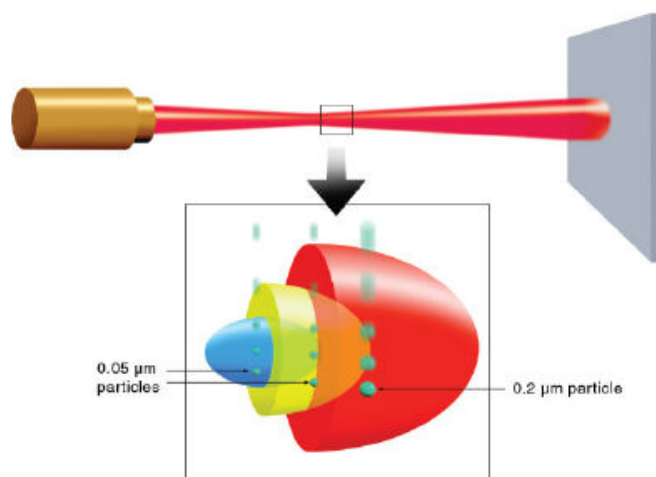


FIGURE B.3 — Principe de fonctionnement du compteur optique de particules [12].

Afin de permettre ceci, l'aérosol est mélangé avec un courant d'air propre, de sorte qu'il n'y ait qu'une seule particule illuminée à un instant donné. Cet instrument permet de déterminer la granulométrie en nombre de l'aérosol, avec une gamme comprise entre 0,1 et 2  $\mu\text{m}$  pour le PMS LASAIR 1001 et entre 0,3 et 10  $\mu\text{m}$  pour le PMS LASAIR 310. La concentration de l'aérosol ne doit pas dépasser les 1340 particules  $\cdot \text{cm}^{-3}$  pour le PMS LASAIR 1001 et pour le PMS LASAIR 310 la concentration maximale est de 27 particules  $\cdot \text{cm}^{-3}$ .

### B.2.2 Analyseur de mobilité électrique FMPS 3091

L'analyseur de mobilité FMPS 3091 (Fast Mobility Particle Sizer) est un spectromètre qui permet une mesure, en temps réel, des particules très fines des aérosols dans un domaine de diamètres compris entre 5,6 à 560 nm [75]. L'aérosol entre dans l'instrument avec un débit de  $10 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ . Les particules sont alors chargées positivement à l'aide d'un chargeur de type corona [12] placé à l'entrée du FMPS (cf. Figure B.4).

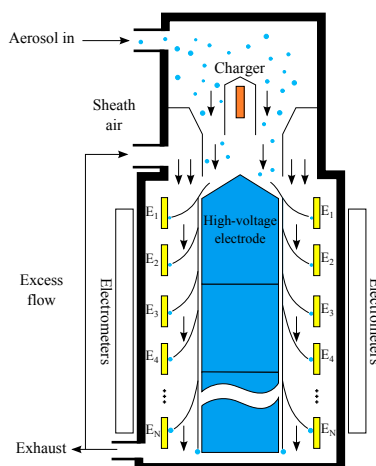


FIGURE B.4 — Schéma du fonctionnement du FMPS 3091.

Les particules chargées sont ensuite introduites dans la région de mesure à proximité du centre de l'électrode de haute tension et sont transportées vers le bas de la colonne. Une tension positive est appliquée dans l'électrode afin de créer un champ électrique qui repousse les particules vers l'extérieur en fonction de leur mobilité électrique. Les particules chargées entrent en contact avec les électromètres respectifs. Une particule de mobilité électrique élevée atteindra un électromètre près du sommet, alors qu'une particule de faible mobilité électrique atteindra un électromètre plus bas dans la colonne. Par mesure de la charge transmise par les particules à chaque électromètre, le FMPS remonte à la distribution granulométrique de l'aérosol analysé.

### B.2.3 Impacteur électrique en cascade à basse pression Dekati ELPI

L'impacteur électrique à basse pression, Dekati ELPI, est un instrument de mesure permettant de déterminer en temps réel la distribution de taille de l'aérosol dans une gamme comprise entre 28 nm et  $10 \mu\text{m}$ . Il est composé de trois éléments [12]: un chargeur à effet corona (charge positive), un impacteur en cascade à basse pression muni de 12 électromètres, et une pompe à vide qui sert à prélever l'aérosol avec un débit constant de  $10 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ . La figure B.5 permet de visualiser le principe de fonctionnement de l'ELPI.

Les particules entrant dans l'ELPI à un débit de  $10 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  sont chargées par le chargeur à effet couronne puis pénètrent dans l'impacteur en cascade à basse pression où elles vont être collectées sur les différents étages d'impaction en fonction de leur diamètre aérodynamique. La charge apportée par les particules est mesurée en temps réel pour chaque étage à l'aide des électromètres (multicanaux). Le nombre de particules en fonction de leur diamètre aérodynamique est alors calculé à partir du courant mesuré et de la loi de charge de l'appareil. Dans le chargeur de l'ELPI, l'aérosol transite au voisinage de l'électrode de charge (+) à la différence du chargeur Topas.

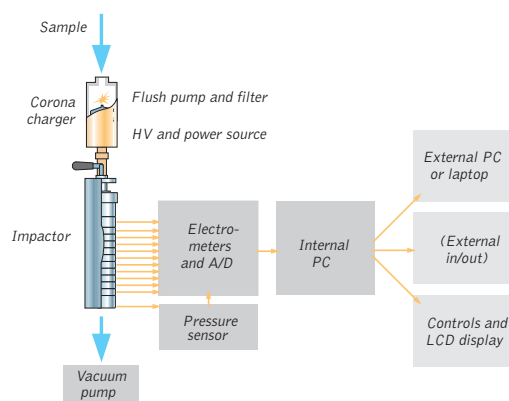


FIGURE B.5 — Schéma du fonctionnement de l'impacteur en cascade à basse pression Dekati ELPI [12].

En effectuant une mesure « chargeur ON, piège à ions ON » on détermine le nombre de particules en fonction de leur taille en se basant sur la loi de charge. La mesure « chargeur OFF, piège à ions OFF » fournit le courant en fonction de la taille des particules.

#### B.2.4 Analyseur de mobilité électrique SMPS TSI 3936 et SMPS Grimm

Le SMPS mesure la distribution granulométrique des particules nanométriques et submicroniques à l'aide d'une technique de détection de mobilité électrique [12, 75]. Les particules sont classifiées par un analyseur électrostatique (DMA TSI 3080) et leur concentration est mesurée par un compteur de noyaux de condensation (CNC TSI 3022A).

La sélection des particules est effectuée à l'aide d'un DMA (cf. Figure B.6). Celui-ci est constitué de deux électrodes concentriques entre lesquelles est appliquée une tension. Les particules préalablement portées à un état de charge électrique maîtrisé (équilibre de Boltzmann obtenu à l'aide d'une source radioactive de  $^{85}\text{Kr}$ ) sont déviées suivant leur mobilité électrique. Dans la partie inférieure de la colonne, une fente très étroite permet de recueillir les particules ayant suivi une trajectoire précise, et donc d'une mobilité électrique donnée.

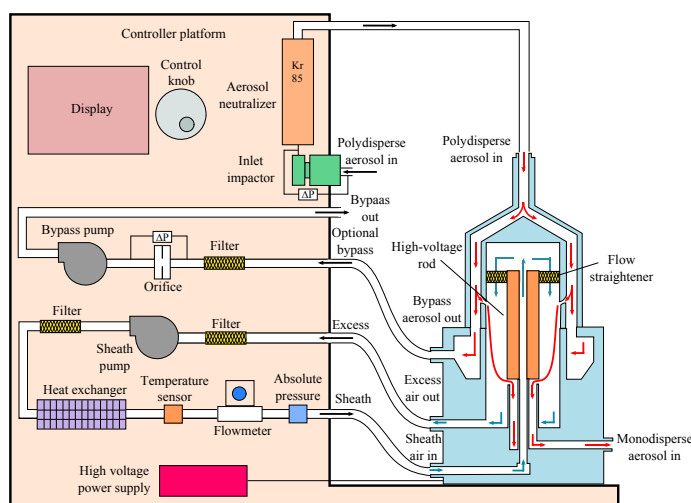


FIGURE B.6 — Principe de fonctionnement du nanoDMA 3085.

Cet aérosol entre ensuite dans un CNC (cf. Figure B.7), qui permet la détermination de la concentration en nombre de particules. Le CNC permet de compter des particules de diamètre compris entre  $0,007$  et  $3\text{ }\mu\text{m}$ , pour des concentrations en nombre comprises entre  $0,01\text{ particules} \cdot \text{cm}^{-3}$  et  $9,99 \cdot 10^6\text{ particules} \cdot \text{cm}^{-3}$ . L'aérosol prélevé à  $0,3\text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$  pénètre dans le saturateur, constitué d'un tube incliné dont l'extrémité plonge dans le réservoir de butanol. Après saturation de l'air en vapeur d'alcool à  $35\text{ }^{\circ}\text{C}$ , l'échantillon prélevé entre dans le condenseur vertical maintenu à  $10\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Après grossissement des particules par condensation du butanol sur leur surface, les gouttelettes ainsi formées, pénètrent dans le volume optique, éclairé par le faisceau d'une diode laser, afin d'être comptées. La lumière diffusée par les gouttelettes est envoyée sur une photodiode à bas bruit de fond.

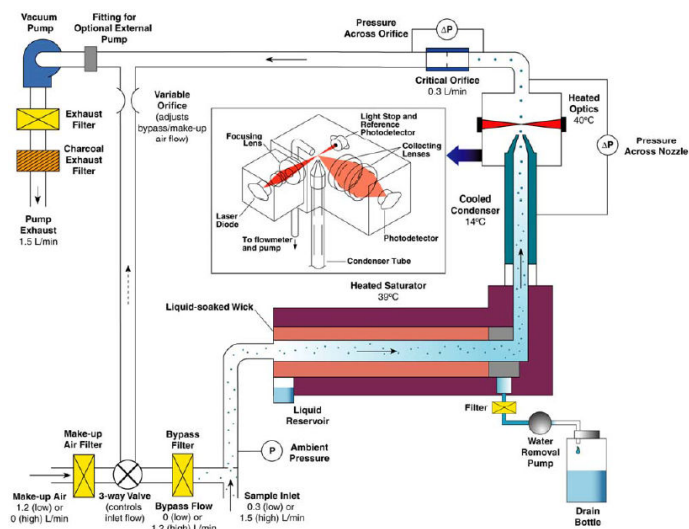


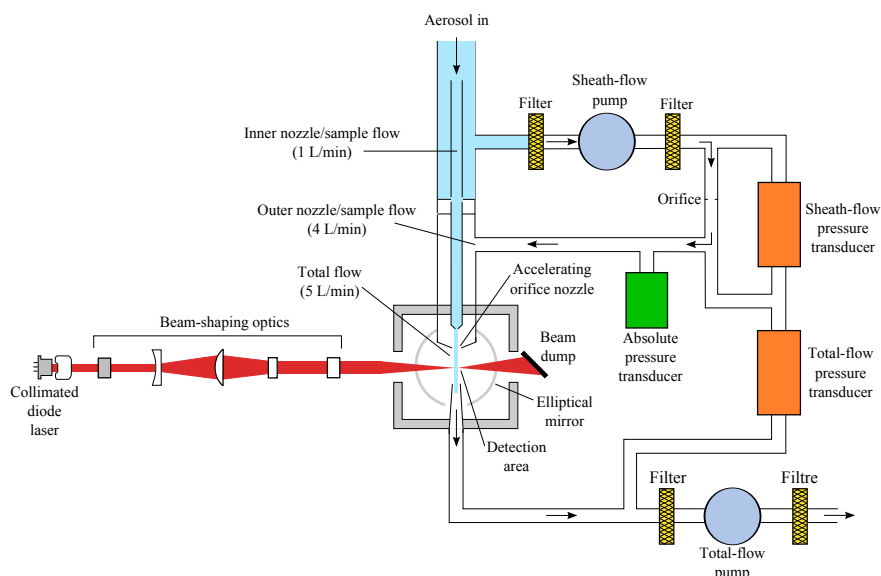
FIGURE B.7 — Principe de fonctionnement du CNC 3776.

Une fois le comptage effectué dans le CNC, la tension appliquée dans le DMA est modifiée de façon à sélectionner une autre taille de particules à envoyer vers le CNC. Ce cycle (sélection puis comptage) est effectué jusqu'à obtention de la distribution granulométrique de l'aérosol (environ 120 secondes).

### B.2.5 Analyseur de mobilité aérodynamique des particules APS TSI 3321

L'APS TSI 3321 utilise le principe de l'inertie pour classifier des particules (cf. Figure B.8). Dans cet appareil, les particules et le flux de gainage sont confinés dans une buse, afin d'accélérer la circulation de l'air. Les particules présentes dans le débit d'air sont également accélérées, mais en quantités différentes en fonction de la surface et de la masse des particules, ainsi les particules sortant de l'écoulement ont une vitesse en rapport avec leur diamètre aérodynamique, lequel est déterminé sous l'hypothèse que les particules sont sphériques et avec une masse volumique proche de 1.

Deux faisceaux lasers séparés de  $200\text{ }\mu\text{m}$  positionnés perpendiculairement à l'écoulement et un miroir elliptique qui capte la lumière diffusée sur un photo-détecteur, servent à mesurer la vitesse des particules. Une particule traversant les deux faisceaux lasers produit deux impulsions de lumière diffusée, le délai temporel entre les impulsions est lié directement à la vitesse de la particule et par conséquent à son diamètre aérodynamique. L'APS enregistre également la hauteur des pics secondaires permettant un calcul de la taille des particules basé sur la diffusion optique.



**FIGURE B.8** – Principe de fonctionnement de l'analyseur de mobilité aérodynamique des particules APS TSI 3321.

Le comptage des particules n'est valable que si les deux pics se produisent exactement dans le temps du signal de diffusion nécessaire pour que la particule traverse les faisceaux. Les particules rejetées sont séparées en trois catégories:

- Présence d'un seul pic avec faible signal de dispersion: les particules sont très petites ou ont manqué le deuxième faisceau,
- Présence d'un seul pic avec forte signal de dispersion: les particules ont un diamètre trop important et se déplacent donc très lentement, ou il y a de la recirculation,
- Présence de plus de deux pics: mesure de plusieurs particules simultanément.

Le nombre de particules rejetées dans chaque catégorie est comptabilisé ce qui permet de faire des corrections statistiques. L'intervalle de mesure de l'APS est entre 0,5 et 20  $\mu\text{m}$  de diamètre aérodynamique avec 52 canaux. La mesure optique est faite dans le même intervalle de diamètres, mais avec un canal extra allant de 0,3 à 0,5  $\mu\text{m}$ . Les distributions granulométriques peuvent être obtenues à une fréquence de 10 par seconde [12].

---

---

## **Les laveurs: une alternative aux médias fibreux pour le traitement des nanoparticules issues des fumées de métallisation?**

**Résumé:** Les techniques de dépoussiérage les plus efficaces et largement utilisées pour séparer des particules ultrafines d'un fluide porteur sont les médias fibreux. Le principal problème est le colmatage du filtre qui induit une augmentation de la perte de charge dans le temps et nécessite donc un nettoyage régulier des médias (ou son remplacement). La séparation des particules ultrafines par voie liquide au moyen d'une colonne à bulles a été envisagée. L'influence des différentes conditions opératoires telles que la hauteur du liquide de piégeage, le débit de filtration, la taille des bulles et la présence d'un garnissage, sur la collecte des particules a été étudiée. Malgré des rendements de collecte inférieurs à ceux des filtres à fibres, les résultats expérimentaux montrent que les colonnes à bulles présentent des performances d'autant plus importantes que le niveau du liquide est élevé et que les orifices de bullage sont petits. Par ailleurs, si l'étude de l'influence de la vitesse de gaz à l'orifice sur l'efficacité de collecte des nanoparticules ne montre pas une tendance bien définie, la présence d'un garnissage dans le liquide de collecte permet d'augmenter significativement le temps de séjour des bulles dans la colonne et donc l'efficacité de collecte.

**Mots clés:** Colonne à bulles, efficacité de collecte, fumées de métallisation

---

## **Can bubble columns be an alternative to fibrous filters for nanoparticles collection?**

**Abstract:** The most effective and widely used dust separation techniques to separate ultrafine particles of a carrier fluid are fibrous media. The main problem is the clogging of the filter that induces a pressure drop increase over time and thus requires a regular cleaning of the media (or its replacement). In this context, the idea is to test bubble columns, which operate at a constant pressure drop, as an alternative to fibrous filters. This study proposes to investigate the influence of different operating conditions such as the liquid level, the air flow rate, the bubble size and the presence of beads, on the collection of ultrafine particles. Despite collection efficiencies lower than those of fibrous filters, experimental results show that bubble columns present high collection efficiency when the liquid level is high and bubbling orifices have low diameters. Besides, if gas velocity does not show an important influence on the collection efficiency, the presence of beads in the liquid increases the residence time of the bubbles in the column and thus the collection efficiency.

**Keywords:** Bubble column, collection efficiency, metal particles

---

---