



**HAL**  
open science

# Étude des mécanismes de formation des dépôts de particules appliquée à la filtration THE

Jonathan Nuvoli

► **To cite this version:**

Jonathan Nuvoli. Étude des mécanismes de formation des dépôts de particules appliquée à la filtration THE. Génie des procédés. Université de Lorraine, 2021. Français. NNT: 2021LORR0049 . tel-03338422

**HAL Id: tel-03338422**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-03338422v1>**

Submitted on 8 Sep 2021

**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 SIMPPÉ : Science et Ingénierie des Molécules, des Produits, des Procédés et  
de l'Énergie

# THÈSE

Présentée en vue de l'obtention du grade de  
**Docteur de l'Université de Lorraine**

Spécialité : Génie des Procédés, des Produits et des Molécules

Par

**Jonathan NUVOLI**

---

## Étude des mécanismes de formation des dépôts de particules appliquée à la filtration THE

---

Soutenance publique le 22 Février 2021

### Composition du jury :

|                      |                                |   |
|----------------------|--------------------------------|---|
| <i>Rapporteurs :</i> | <b>Prof. Valérie Tschamber</b> | Professeur à l'Université de Haute-Alsace                 |
|                      | <b>Dr. Jérôme YON</b>          | Maître de Conférences à l'INSA Rouen                      |
| <i>Examineurs :</i>  | <b>Prof. Évelyne Gonze</b>     | Professeur à l'Université Savoie Mont Blanc               |
|                      | <b>Dr. Sébastien Bau</b>       | Responsable d'études, INRS                                |
|                      | <b>Prof. Dominique Thomas</b>  | Professeur à l'Université de Lorraine, Directeur de thèse |
|                      | <b>Dr. Soleiman Bourrous</b>   | Ingénieur-Chercheur, IRSN                                 |

## REMERCIEMENTS

Cette thèse a été réalisée au Laboratoire d'Expérimentations sur le Comportement des Équipements et de la Ventilation (LECEV) dans le département au sein du Service de Confinement et de l'Aérodispersion des polluants (SCA) de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN). A ce titre, je tiens à remercier leurs responsables respectifs, Messieurs Alain Brunisso, remplacé par Madame Céline Monsanglant-Louvet en cours de thèse, et Laurent Bouilloux, pour m'avoir accueilli et permis de mener à bien ce travail de recherche.

Je tiens à remercier Dominique Thomas qui m'a encadré durant ces trois années et a su guider mon travail malgré la distance.

Ma reconnaissance s'adresse également à mon encadrant, Monsieur Soleiman Bourrous. Merci d'avoir été à mes côtés, tes connaissances scientifiques et techniques m'ont été d'une grande aide et ont facilité mes travaux. Tes qualités humaines ont tout autant joué dans la réussite de ma thèse, merci d'avoir rendu un tel travail de recherche agréable et motivant.

J'adresse mes remerciements à Madame Évelyne Gonze, Professeur à l'Université Savoie Mont Blanc, pour me faire l'honneur de présider ce Jury de thèse.

J'ai l'honneur de remercier Madame Tschamber Valérie, Professeur de l'Université de Haute Alsace, et Monsieur Jérôme Yon, Maître de Conférences à l'INSA Rouen, pour avoir accepté de faire partie de ce Jury de thèse et d'en être les rapporteurs.

Mes remerciements vont également à Sébastien Bau, Responsable d'études à l'Institut National de Recherche et de Sécurité pour la prévention des accidents du travail et des maladies professionnelles (INRS), pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de participer à ce Jury de thèse. Si j'en suis là aujourd'hui c'est grâce à lui, car il a été auparavant mon encadrant durant mon stage de fin d'étude, il m'a donné l'envie de me lancer dans une thèse. Tout comme Claire, qui m'a pris sous son aile et qui m'a permis de bien préparer à une thèse.

Un immense merci aux personnes qui ont fait le quotidien de ces trois années. Je pense notamment à la team du bâtiment 450 composés de Mathieu, Nadia et le *nouveau venu* Florent Dany. Merci à ceux qui ont partagé mon bureau, tout d'abord Youssef qui m'a parfaitement montré l'exemple et maintenant Marie qui va j'en suis sûr faire une grande thèse. Merci à notre alternant-stagiaire Quentin qui a beaucoup subi de notre part. Une pensée spéciale à l'ensemble des thésards, les anciens comme les nouveaux du SCA : Benjamin, Alexis, Laura, Amel, Gwen, Modou, Delphine et Zeinab. Je n'oublie pas non plus FX, qui m'a fortement aidé notamment dans la rédaction de mon premier article, pour son soutien et ses encouragements. Merci à Pascal et Yohan d'avoir squatté les pauses café du 450, vous avez contribué à la bonne ambiance inter-bâtiment. Merci au bâtiment 389 et 383, à tous ceux que j'ai pu côtoyer et qui m'ont aidé. Une spéciale dédicace à Catherine et Geneviève, pour leur gentillesse et leur efficacité concernant toute la paperasse administrative.

Une pensée émouvante à mes amis « les queutards », notamment pour Dino parti trop vite. Merci pour les moments de décompression qui m'ont permis de bien souffler entre les semaines assez chargées.

Et enfin les plus importants, les membres de ma famille ! Merci d'avoir toujours été là, malgré la distance vous avez été d'un soutien permanent et vous restez ma plus grande fierté. Merci à la femme de ma vie, Priscillia, que j'ai rencontrée en cours de thèse et que j'aime plus que tout. Merci de m'avoir supporté, notamment sur la fin, et tout simplement merci d'être rentrée dans ma vie ! Merci à *Fils*, Pitou notre chat, qui va bientôt me faire préférer les chats aux chiens.

|  |    |
|--|----|
| REMERCIEMENTS.....   | 1  |
| NOMENCLATURE.....  | 1  |
| INTRODUCTION GENERALE .....  | 1  |
| CHAPITRE I : ETAT DE L'ART .....   | 3  |
| 1. GENERALITES SUR LA FILTRATION .....   | 3  |
| 1.1. Filtration de l'air .....   | 3  |
| 1.1.1. Normes d'utilisation.....   | 3  |
| 1.1.2. Conception des filtres THE .....  | 4  |
| 1.1.3. Caractéristiques des médias .....   | 5  |
| 1.2. Phénomène de colmatage des filtres THE .....                                | 6  |
| 2. GENERALITES SUR LES AEROSOLS.....   | 7  |
| 2.1. Comportement physique des aérosols .....                                    | 8  |
| 2.1.1. Le domaine continu ( $Kn \ll 1$ ) .....                                   | 9  |
| 2.1.2. Le domaine intermédiaire ( $Kn \approx 1$ ).....                          | 10 |
| 2.1.3. Le domaine moléculaire ( $Kn \gg 1$ ).....                                | 11 |
| 2.2. Diamètres caractéristiques.....   | 12 |
| 2.2.1. Diamètre équivalent de mobilité électrique .....                          | 13 |
| 2.2.2. Diamètre équivalent aérodynamique .....                                   | 14 |
| 2.2.3. Diamètre équivalent de Stokes .....                                       | 14 |
| 2.2.4. Diamètre équivalent en volume.....  | 15 |
| 2.2.5. Diamètre équivalent en masse .....  | 15 |
| 2.3. Cas des particules nanostructurées.....                                     | 15 |
| 2.3.1. Diamètre des particules primaires et nombre de particules primaires ..... | 15 |
| 2.3.2. Diamètre de giration .....  | 16 |
| 2.3.3. Dimension fractale et préfacteur .....                                    | 16 |
| 2.3.4. Diamètre équivalent en volume.....  | 17 |
| 2.3.5. Diamètre de collision .....   | 17 |
| 2.3.6. Force de traînée d'un agrégat .....                                       | 18 |
| 2.3.7. Composition chimique des aérosols de combustion / masse volumique .....   | 20 |
| 3. DEPOT DE PARTICULES NANOSTRUCTUREES .....                                     | 22 |
| 3.1. Modèle de perte de charge.....  | 22 |

|  |    |
|--|----|
| 3.1.1. <i>Modèle capillaire</i> .....                                      | 23 |
| 3.1.2. <i>Modèle basé sur la force de traînée</i> .....                    | 24 |
| 3.1.3. <i>Comparaison des modèles</i> .....                                | 26 |
| 3.1.4. <i>Réduction de surface</i> .....                                   | 27 |
| 4. POROSITE DU DEPOT .....   | 31 |
| 4.1. Porosité d'un dépôt de particules sphériques .....                    | 34 |
| 4.1.1. <i>Résultats empiriques</i> .....                                   | 34 |
| 4.1.2. <i>Simulations numériques</i> .....                                 | 36 |
| 4.2. Porosité d'un dépôt d'agrégats de nanoparticules .....                | 41 |
| 4.2.1. <i>Résultats empiriques</i> .....                                   | 41 |
| 4.2.2. <i>Simulations numériques</i> .....                                 | 42 |
| 4.3. Notion de porosité inter et intra agrégat.....                        | 44 |
| 4.3.1. <i>Porosité inter-agrégat</i> .....                                 | 45 |
| 4.3.2. <i>Porosité intra-agrégat</i> .....                                 | 45 |
| 5. CONCLUSION .....  | 47 |
| CHAPITRE II : MATERIELS ET METHODES.....                                   | 50 |
| 1. INTRODUCTION .....  | 50 |
| 2. CARACTERISATION DES AEROSOLS .....                                      | 50 |
| 2.1. Granulométrie des aérosols générés .....                              | 50 |
| 2.2. Morphologie des agrégats.....   | 57 |
| 3. CARACTERISATION DU DEPOT.....   | 63 |
| 3.1. Caractérisation du dépôt filtre plan .....                            | 63 |
| 3.1.1. <i>Présentation des différents bancs expérimentaux</i> .....        | 64 |
| 3.1.2. <i>Protocole de détermination de la porosité du dépôt</i> .....     | 66 |
| 3.1.3. <i>Protocole pour faire varier les conditions opératoires</i> ..... | 73 |
| 3.2. Colmatage d'un filtre plissé par un aérosol de suie .....             | 74 |
| 3.2.1. <i>Présentation des deux bancs expérimentaux</i> .....              | 74 |
| 3.2.2. <i>Installation CATFISH</i> .....                                   | 74 |
| 3.2.3. <i>Installation RAFALES</i> .....                                   | 75 |
| 3.2.4. <i>Filtres testés</i> .....   | 76 |
| 4. RESUME .....  | 76 |
| CHAPITRE III : DEPOTS DE NANOPARTICULES FORMES PAR FILTRATION .....        | 79 |

|   |     |
|---|-----|
| 1. INTRODUCTION .....   | 79  |
| 2. BANC AERAUQUE .....  | 79  |
| 3. POROSITE D'UN DEPOT DE NANOPARTICULES SUR FILTRE PLAN .....  | 80  |
| 3.1. Particules pseudo-sphériques.....  | 80  |
| 3.1.1. <i>Influence du diamètre de particule</i> .....  | 82  |
| 3.1.2. <i>Influence de la masse volumique</i> .....   | 84  |
| 3.1.3. <i>Influence de la polydispersion des particules</i> .....                                       | 85  |
| 3.1.4. <i>Influence d'une vitesse variable</i> .....  | 86  |
| 3.1.5. <i>Influence de la pression</i> .....  | 87  |
| 3.1.6. <i>Influence du libre parcours moyen</i> .....   | 88  |
| 3.1.7. <i>Corrélation de la porosité d'un dépôt de nanoparticules sphériques</i> .....                  | 89  |
| 3.1.8. <i>Bilan sur la porosité d'un dépôt de nanoparticules sphériques formé sur filtre plan</i> ..... | 92  |
| 3.2. Particules nanostructurées.....  | 95  |
| 3.2.1. <i>Influence du nombre de particules primaires</i> .....   | 97  |
| 3.2.2. <i>Influence du diamètre de particules primaires</i> .....                                       | 101 |
| 3.2.3. <i>Influence de la dimension fractale</i> .....  | 102 |
| 3.2.4. <i>Corrélation de la porosité d'un dépôt de nanoparticules formées par des agrégats</i> .....    | 103 |
| 3.2.5. <i>Approche de la double porosité</i> .....  | 104 |
| 4. POROSITE D'UN DEPOT DE NANOPARTICULES SUR FILTRE PLISSE .....  | 111 |
| 4.1. Porosité macroscopique .....   | 112 |
| 5. CONCLUSION .....   | 114 |
| CHAPITRE IV : MODELE ANALYTIQUE .....   | 117 |
| 1. INTRODUCTION .....   | 117 |
| 2. DESCRIPTION PHYSIQUE .....   | 117 |
| 2.1. Hypothèses .....   | 117 |
| 2.2. Principe d'accumulation .....  | 118 |
| 2.2.1. <i>Zone de présence d'une particule</i> .....  | 119 |
| 2.2.2. <i>Hypothèse sur la vitesse de diffusion</i> .....   | 119 |
| 2.2.3. <i>Détermination du temps critique et de la distance de diffusion</i> .....                      | 121 |
| 2.2.4. <i>Distance entre plusieurs particules</i> .....   | 121 |

|   |     |
|---|-----|
| 2.2.5. Détermination de la porosité d'un dépôt monocouche ..... | 122 |
| 2.3. Modèle multicouche .....                                   | 123 |
| 3. RESULTATS POUR DES PARTICULES PSEUDO-SPHERIQUES .....        | 124 |
| 3.1. Modèle vs Expériences .....                                | 124 |
| 3.2. Étude de sensibilité.....                                  | 126 |
| 4. CONCLUSION .....   | 129 |
| CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES .....                       | 132 |
| REFERENCES.....   | 134 |
| ANNEXE I : PRINCIPE DU SMPS .....                               | 137 |
| ANNEXE II : QUALIFICATION DU DISPERSEUR DE POUDRE .....         | 139 |
| ANNEXE III : PLAN DU DISPOSITIF ULTRAPAN .....                  | 141 |
| ANNEXE IV : INCERTITUDES .....                                  | 142 |
| ANNEXE V : ETAT DE SURFACE DES DEPOTS.....                      | 146 |
| LISTE DES FIGURES .....   | 149 |
| LISTE DES TABLEAUX .....  | 155 |



## NOMENCLATURE

### Lettres latines

|                                     |  |                                    |
|-------------------------------------|--|------------------------------------|
| <b>a</b>                            | Coefficient de calcul du coefficient de Cunningham | [ ]                                |
| <b>A<sub>a</sub></b>                | Surface projetée des agrégats                      | [m <sup>2</sup> ]                  |
| <b>A<sub>pp</sub></b>               | Surface projetée d'une particule primaire          | [m <sup>2</sup> ]                  |
| <b>a<sub>p</sub></b>                | Surface spécifique de la particule                 | [m <sup>2</sup> ]                  |
| <b>b</b>                            | Coefficient de calcul du coefficient de Cunningham | [ ]                                |
| <b>B</b>                            | Mobilité dynamique                                 | [s.kg <sup>-1</sup> ]              |
| <b>c</b>                            | Coefficient de calcul du coefficient de Cunningham | [ ]                                |
| <b>C<sub>N</sub></b>                | Concentration en nombre                            | [#/cm <sup>3</sup> ]               |
| <b>Co</b>                           | Coefficient de recouvrement                        | [ ]                                |
| <b>Cu</b>                           | Coefficient de Cunningham                          | [ ]                                |
| <b>D</b>                            | Coefficient de diffusion                           | [m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ] |
| <b>d<sub>1</sub>, d<sub>2</sub></b> | Diamètre particule 1, 2                            | [m]                                |
| <b>d<sub>a</sub></b>                | Diamètre aérodynamique                             | [m]                                |
| <b>d<sub>c</sub></b>                | Diamètre de collision                              | [m]                                |
| <b>d<sub>em</sub></b>               | Diamètre équivalent en masse                       | [m]                                |
| <b>d<sub>ev</sub></b>               | Diamètre équivalent en volume                      | [m]                                |
| <b>d<sub>f</sub></b>                | Diamètre de fibre                                  | [m]                                |
| <b>D<sub>f</sub></b>                | Dimension fractale                                 | [m]                                |
| <b>d<sub>g</sub></b>                | Diamètre de giration                               | [m]                                |
| <b>d<sub>m</sub></b>                | Diamètre de mobilité électrique                    | [m]                                |
| <b>d<sub>p</sub></b>                | Diamètre de particule                              | [m]                                |
| <b>d<sub>pp</sub></b>               | Diamètre de particule primaire                     | [m]                                |
| <b>d<sub>s</sub></b>                | Diamètre de Stokes                                 | [m]                                |
| <b>d<sub>vg</sub></b>               | Diamètre géométrique moyen de d <sub>ev</sub>      | [m]                                |
| <b>e</b>                            | Épaisseur du média                                 | [m]                                |
| <b>e<sub>f/g/v,i</sub></b>          | Épaisseur des couches élémentaires de colmatage    | [m]                                |
| <b>e<sub>g</sub></b>                | Épaisseur du gâteau                                | [m]                                |
| <b>f</b>                            | Facteur de friction                                | [ ]                                |
| <b>F<sub>c</sub></b>                | Facteur de recouvrement                            | [ ]                                |
| <b>F<sub>D</sub></b>                | Force de traînée                                   | [N]                                |
| <b>F<sub>D</sub><sup>agg</sup></b>  | Force de traînée d'un agrégat                      | [N]                                |

|                                |   |                        |
|--------------------------------|---|------------------------|
| <b><math>F_{D,prim}</math></b> | Force de trainée d'une particule primaire   | [N]                    |
| <b><math>F_{VDW}</math></b>    | Force de Van der Waals  | [N]                    |
| <b>G</b>                       | Grammage  | [kg.m <sup>-2</sup> ]  |
| <b>g</b>                       | Constante d'apesanteur  | []                     |
| <b>h</b>                       | Hauteur du pli  | []                     |
| <b>H</b>                       | Constante de Hamaker  | []                     |
| <b><math>h_k</math></b>        | Coefficient de Kozeny-Carman  | []                     |
| <b>i</b>                       | Constante expérimentale du modèle de Mocho et Ouf (2011)  | []                     |
| <b>j</b>                       | Constante expérimentale du modèle de Mocho et Ouf (2011)  | []                     |
| <b>J</b>                       | Constante semi-empirique dans l'équation de la porosité selon le nombre de Stokes pour un dépôt de particules pseudo-sphériques | []                     |
| <b>k</b>                       | Perméabilité  | [m <sup>2</sup> ]      |
| <b><math>k_f</math></b>        | Préfacteur fractal  | []                     |
| <b><math>k_b</math></b>        | Constante de Boltzmann  | [J.K <sup>-1</sup> ]   |
| <b><math>K_n</math></b>        | Nombre de Knudsen   | []                     |
| <b>KnD</b>                     | Coefficient de Knudsen diffusif   | []                     |
| <b>kT</b>                      | Énergie thermique   | [J]                    |
| <b>L</b>                       | Longueur caractéristique d'un agrégat   | [m]                    |
| <b>m</b>                       | Masse du dépôt  | [kg]                   |
| <b><math>m_{agg}</math></b>    | Masse d'un agrégat  | [kg]                   |
| <b><math>m_g</math></b>        | Masse du gâteau   | [kg]                   |
| <b><math>m_p</math></b>        | Masse d'une particule   | [kg]                   |
| <b><math>m_p</math></b>        | Masse de la particule   | [kg]                   |
| <b><math>m_{pli}</math></b>    | Masse accumulée dans le pli   | [kg.m <sup>-2</sup> ]  |
| <b>M</b>                       | Constante semi-empirique dans l'équation de la porosité selon le nombre de Stokes pour un dépôt de particules nanostructurées   | []                     |
| <b>n</b>                       | Constante empirique de la porosité par Hoffman et Finkers (1994)  | []                     |
| <b><math>N_{pp}</math></b>     | Nombre de particules primaires  | []                     |
| <b>o</b>                       | Constante empirique de la porosité par Hoffman et Finkers (1994)  | []                     |
| <b>p</b>                       | Pas du pli  | [m]                    |
| <b><math>p_e</math></b>        | Nombre de charge élémentaire  | []                     |
| <b>P</b>                       | Pression  | [Pa]                   |
| <b><math>P_0</math></b>        | Pression standard   | [Pa]                   |
| <b>Pe</b>                      | Nombre de Péclet  | []                     |
| <b>q</b>                       | Constante empirique de la porosité par Hoffman et Finkers (1994)  | []                     |
| <b><math>Q_v</math></b>        | Débit de filtration   | [L.min <sup>-1</sup> ] |

|                                     |   |   |
|-------------------------------------|---|---|
| <b>R</b>                            | Résistance aéraulique   | [m <sup>-1</sup> ]                                  |
| <b>R<sub>0</sub></b>                | Résistance aéraulique du filtre vierge                            | [m <sup>-1</sup> ]                                  |
| <b>r<sub>g</sub></b>                | Rayon de giration   | [m]   |
| <b>r<sub>m</sub></b>                | Rayon de mobilité électrique                                      | [m]   |
| <b>r<sub>p</sub></b>                | Rayon de particule  | [m]   |
| <b>S<sub>f</sub></b>                | Surface de filtration   | [m <sup>2</sup> ]                                   |
| <b>S<sub>f/g,i</sub></b>            | Surface des couches élémentaires de colmatage                     | [m <sup>2</sup> ]                                   |
| <b>Stk</b>                          | Nombre de Stokes  | []  |
| <b>T</b>                            | Température   | [K]   |
| <b>T<sub>0</sub></b>                | Température aux conditions standards                              | [K]   |
| <b>t<sub>i-1/i</sub></b>            | Instants entre création de deux couches élémentaires de colmatage | [s]   |
| <b>t<sub>inertie</sub></b>          | Temps de relaxation visqueux                                      | [s]   |
| <b>t<sub>visqueux</sub></b>         | Temps caractéristique de l'inertie                                | [s]   |
| <b>T<sub>x<sub>surf</sub></sub></b> | Taux de réduction de surface                                      | []  |
| <b>T<sub>x</sub></b>                | Taux de croissance du dépôt                                       | []  |
| <b>U<sub>f</sub></b>                | Vitesse de filtration   | [m.s <sup>-1</sup> ]                                |
| <b>V<sub>p</sub></b>                | Volume d'une particule  | [m <sup>3</sup> ]                                   |
| <b>V<sub>TC</sub></b>               | Vitesse de chute  | [m.s <sup>-1</sup> ]                                |
| <b>w<sub>a</sub></b>                | Espace de vide contenu dans le dépôt                              | [m <sup>3</sup> ]                                   |
| <b>w<sub>p</sub></b>                | Volume de particule formant le gâteau                             | [m <sup>3</sup> ]                                   |
| <b>Z</b>                            | Épaisseur du média  | [m]   |
| <b>z</b>                            | Distance  | [m]   |
| <b>Z<sub>e</sub></b>                | Mobilité électrique   | [m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> .V <sup>-1</sup> ] |
| <b>V<sub>dif</sub></b>              | Vitesse de diffusion  | [m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ]                  |
| <b>l<sub>pma</sub></b>              | Libre parcours moyen de l'aérosol                                 | [m]   |
| <b>t<sub>crit</sub></b>             | Temps critique  | [s]   |

### Lettres grecques

|                          |                          |     |
|--------------------------|--------------------------|-----|
| <b>φ</b>                 | Angle de plissage        | [°] |
| <b>α</b>                 | Compacité                | []  |
| <b>ε</b>                 | Porosité                 | []  |
| <b>ε<sub>g</sub></b>     | Porosité totale du dépôt | []  |
| <b>ε<sub>0</sub></b>     | Porosité initiale        | []  |
| <b>ε<sub>inter</sub></b> | Porosité inter-agrégat   | []  |
| <b>ε<sub>intra</sub></b> | Porosité intra-agrégat   | []  |

|                                   |   |                                    |
|-----------------------------------|---|------------------------------------|
| $\epsilon_{\text{intra dg}}$      | Porosité intra-agrégat calculé à partir du diamètre de giration                                   | []                                 |
| $\epsilon_{\text{intra L}}$       | Porosité intra-agrégat calculé à partir de la longueur caractéristique                            | []                                 |
| $\epsilon_{\text{intra ellipse}}$ | Porosité intra-agrégat calculé à partir d'une enveloppe ellipsoïdale                              | []                                 |
| $\epsilon_{\text{limite,bal}}$    | Porosité limite dans le domaine diffusionnel  | []                                 |
| $\epsilon_{\text{limit,dif}}$     | Porosité limite dans le domaine balistique  | []                                 |
| $\Delta P$                        | Perte de charge   | [Pa]                               |
| $\Delta P_0$                      | Perte de charge du filtre vierge  | [Pa]                               |
| $\Delta P_g$                      | Perte de charge du gâteau   | [Pa]                               |
| $\Delta P_{\text{pli}}$           | Perte de charge d'un filtre plissé  | [Pa]                               |
| $\mu$                             | Viscosité dynamique   | [Pa.s]                             |
| $\lambda$                         | Libre parcours moyen  | [m]                                |
| $\lambda_g$                       | Libre parcours moyen du gaz   | [m]                                |
| $\lambda_0$                       | Libre parcours moyen aux conditions standards   | [m]                                |
| $\chi$                            | Facteur de forme dynamique  | []                                 |
| $x_F$                             | Rapport de l'énergie de translation de la particule aux vitesses advectives à l'énergie thermique | []                                 |
| $\tau$                            | Temps de relaxation   | [s]                                |
| $\rho$                            | Masse volumique du matériau   | [kg.m <sup>-3</sup> ]              |
| $\rho_{\text{oxyde}}$             | Masse volumique du matériau oxydé   | [kg.m <sup>-3</sup> ]              |
| $\rho_{\text{pp}}$                | Masse volumique de la particule primaire  | [kg.m <sup>-3</sup> ]              |
| $\rho_p$                          | Masse volumique de la particule   | [kg.m <sup>-3</sup> ]              |
| $\rho_{\text{eff}}$               | Masse volumique effective   | [kg.m <sup>-3</sup> ]              |
| $\delta_i$                        | Distance entre les particules primaires   | []                                 |
| $\Delta P$                        | Perte de charge   | [Pa]                               |
| $\delta$                          | Porosité macroscopique  | []                                 |
| $\sigma_g$                        | Écart-type géométrique  | []                                 |
| $v(\epsilon)$                     | Fonction de vide  | []                                 |
| $\Phi$                            | Flux de particule   | p.m <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> |
| $\zeta$                           | Coefficient de friction   | [-]                                |

## **INTRODUCTION GENERALE**

De par leur immense potentiel, les nanoparticules suscitent actuellement un vif engouement. En effet, de par leur taille, on parvient à une frontière caractérisée par l'apparition de propriétés ou de comportements nouveaux (« saut quantique »). De plus, plus la taille diminue, plus le rapport surface/volume devient grand, et plus les propriétés de surface finissent par devenir plus importantes que la masse en jeu. Cette avancée dans le domaine des nanoparticules crée de nombreuses opportunités avec l'apparition de nombreuses applications très variées dans des domaines aussi divers que la création de batterie (Poizot *et al.*, 2000), la catalyse, les techniques de séparation et de purification, l'élaboration de matériaux structuraux ultralégers (Naderi *et al.*, 2018), d'isolants électriques, le transport de gaz (Khaleel *et al.*, 2019). Mais toutes opportunités comportent leurs risques. Autour de nous, nous faisons face à de nombreuses situations où nous sommes en contact avec ces nanoparticules. Dans le milieu industriel, les nanoparticules sont présentes par l'intermédiaire de fumées de soudage, de sciure de bois, de suies lors d'un incendie... Afin de protéger l'utilisateur ou même l'environnement, le confinement aéraulique dans le cadre des travaux sur le confinement des installations est primordial. Il existe un réel besoin de maîtrise de la structure du dépôt, que ce soit pour les performances de capteurs (Maheshwari *et al.*, 2006, Castillo *et al.*, 2014), de cellule et du colmatage d'un filtre.

Les médias fibreux constituent à l'heure actuelle les dispositifs les plus performants dans le domaine de la séparation gaz/particules. Ils présentent néanmoins l'inconvénient d'une augmentation de la perte de charge au cours du colmatage qui peut, dans des cas extrêmes, conduire à la rupture des filtres et au relâchement brutal dans l'environnement des polluants accumulés sur le filtre. La plupart du temps, ce colmatage présente une évolution lente et un contrôle périodique des filtres permet de garantir leur intégrité. Toutefois, dans certaines situations, telles que le déroulement d'un incendie ou l'utilisation d'outils de découpe émettant des particules fines voire ultra-fines (torche à plasma, laser...), les filtres peuvent être soumis à un apport important de particules très colmatantes, entraînant une élévation rapide de leur perte de charge.

Depuis plusieurs années, l'IRSN conduit des programmes de recherche sur ces équipements de confinement. De nombreux résultats ont été acquis et le processus de filtration de l'air est globalement bien appréhendé. Les phénomènes physiques régissant l'efficacité de filtration des media sont connus (Stechkina et Fuchs 1966, Cheng et Yeh 1980, Wang et Kasper 1991, Heim *et al.* 2005) et de nombreuses avancées ont été effectuées sur le colmatage des filtres. Ainsi, dans le cadre du programme de recherche commun (LRGP/IRSN) LIMA qui s'intéresse notamment aux interactions médias-particules et dont l'objectif principal est de disposer de modèles phénoménologiques de colmatage en air sec, y compris en régime de filtration à débit variable, caractérisé par une diminution de la vitesse de filtration lorsque la résistance à l'écoulement augmente. Il en ressort le développement d'un modèle phénoménologique de colmatage par Alilou (2018) utilisée dans le logiciel SYLVIA (SYstème de Logiciels pour l'étude de la Ventilation, de l'Incendie et de l'Aérocontamination) de l'IRSN qui vise à appréhender le comportement en situation nominale et accidentelle des réseaux de ventilation. Ce modèle confirme, qu'en plus des caractéristiques physiques et géométriques des filtres (Fotovati *et al.* 2011, Hettkamp *et al.* 2012, Alilou 2018) et de la morphologie et de la taille des particules, la relation entre la masse accumulée et la perte de charge des filtres dépend en très grande partie de la porosité des dépôts formés dans le média et à sa surface (Thomas *et al.* 2014). En d'autres termes, la prédiction de la porosité est un paramètre clef pour une modélisation prédictive du colmatage compte tenu de son rôle dans les trois phases successivement observées lors du colmatage d'un filtre et qui présentent chacune leur spécificité qui seront détaillées dans ce rapport.

La porosité du dépôt est de ce fait un élément central de la compréhension et de la modélisation de la filtration des aérosols et il est nécessaire d'approfondir les travaux de recherche pour relier la porosité du dépôt aux caractéristiques de l'aérosol (morphologie, porosité de l'agglomérat ou agrégat) et aux conditions opératoires de la filtration (vitesse de filtration).

Ce projet de recherche mené au sein du programme de recherche avec le LRGP (UMR CNRS-Université de Lorraine) sur les interactions média aérosols (LIMA) vise à étudier les mécanismes de formation des dépôts de particules. Cette collaboration a pour objectif le développement de modèles d'efficacité de filtration et de colmatage des filtres à très haute efficacité (THE). Ces modèles sont nécessaires à l'estimation correcte des rejets potentiels des installations nucléaires pour toutes les situations de fonctionnement (incluant la phase d'exploitation, les situations accidentelles et les opérations de démantèlement).

Pour répondre à ce besoin, trois objectifs ont été fixés dans le cadre de ce travail :

1. développer des méthodes en laboratoire permettant d'étudier les propriétés d'aérosols de nanoparticules produits à partir de différents générateurs ;
2. élaborer une démarche de caractérisation en laboratoire de la porosité d'un dépôt de particules sur filtre plan et sur filtre plissé ;
3. établir des relations entre la porosité du dépôt et les propriétés morphologiques des aérosols qui peuvent être émis, cas des agrégats/agglomérats.

Le premier chapitre est consacré à l'étude de la littérature scientifique en relation avec les trois axes précédents. Cette recherche bibliographique est déterminante pour la mise en place de la démarche de travail et des choix expérimentaux pour répondre à la problématique. Ainsi ce chapitre se décompose en un bref rappel sur la filtration de l'air, une description bibliographique de l'aérosol et de ses propriétés, de son transport jusqu'à son dépôt sur filtre. Ensuite, une description des modèles de colmatage actuels est faite en mettant en avant les effets de la porosité d'un dépôt de nanoparticules. Enfin, une étude détaillée des résultats actuels de la porosité du dépôt permet de mettre en évidence les paramètres dont dépend cette dernière.

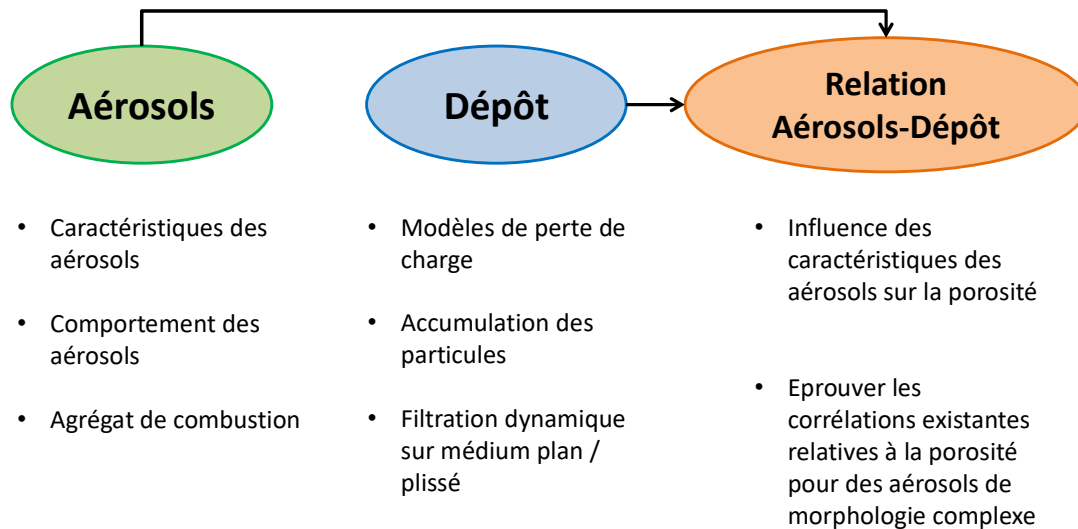
Le deuxième chapitre décrit le banc expérimental permettant de caractériser un dépôt de nanoparticules formé sur le filtre ainsi que l'élévation de sa perte de charge et la présentation du dispositif expérimental de mesure du taux de croissance d'un dépôt de nanoparticules. L'instrumentation utilisée est détaillée et les différentes conditions expérimentales sont exposées et justifiées. Enfin, une caractérisation des aérosols étudiés est faite.

Le troisième chapitre est consacré aux résultats expérimentaux de la porosité d'un dépôt de nanoparticules. Une première partie se focalise sur des particules sphériques, en analysant l'impact du transport et des caractéristiques de l'aérosol. La seconde partie se concentre sur l'influence de la morphologie des nanoparticules. La dernière partie présente les résultats obtenus sur filtre plissé afin de se rapprocher des conditions de filtration sur un média plissé.

Le quatrième chapitre présente une approche analytique permettant de déterminer la porosité d'un dépôt de nanoparticules en connaissant les caractéristiques de l'aérosol et les conditions opératoires.

## CHAPITRE I : ETAT DE L'ART

Ce chapitre présente un état de l'art sur la filtration des aérosols solides par des médias fibreux. La Figure 1 illustre la répartition des idées générales pour guider la recherche thématique. L'axe 1 est orienté sur la science des aérosols en mettant en avant la complexité morphologique des particules étudiées. L'axe 2 s'intéresse à l'étude du dépôt. L'axe 3 s'attache à la relation entre l'aérosol et le dépôt. La partie *Aérosol* et *Dépôt* peuvent être traitées indépendamment tandis que la partie *Relation Aérosols-Dépôt* est alimentée par les deux précédentes. C'est dans cet ordre chronologique que les résultats de la recherche bibliographique sont présentés dans ce chapitre.



*Figure 1 : Schéma de la stratégie bibliographique*

## 1. GENERALITES SUR LA FILTRATION

### 1.1. Filtration de l'air

La filtration des aérosols est un procédé qui permet de séparer des particules solides ou liquides en suspension dans l'air. Cette technique repose sur l'utilisation d'un milieu poreux, appelé média. Il est généralement constitué de fibres qui vont permettre la collecte de particules tout en laissant passer le flux d'air. Ces médias sont plissés afin d'augmenter la surface de filtration tout en limitant l'encombrement des filtres.

Ce chapitre présente un rappel des normes relatives à la filtration de l'air, les caractéristiques d'un média filtrant et enfin, un bref récapitulatif du phénomène de colmatage.

#### 1.1.1. Normes d'utilisation

Dans le domaine de la ventilation, les performances des médias sont évaluées afin de répondre aux exigences des environnements auxquels ils sont soumis et aux performances attendues. Il existe en Europe deux types de normes pour les filtres à air : la norme EN 779 qui concerne les filtres grossiers et fins, et la norme EN 1822 qui s'applique aux filtres à très haute efficacité. L'ISO a publié en décembre 2016 une nouvelle norme pour l'industrie de la filtration de l'air et de la ventilation générale : la norme EN ISO 16890. Cette norme décrit une méthode de tests et de classification des filtres à air utilisés dans les systèmes de ventilation générale, applicable dans tous les lieux publics. Les nouveaux tests de conformité issus de cette norme consistent à exposer un

filtre à des particules allant de 0,3  $\mu\text{m}$  à 10  $\mu\text{m}$  afin de se placer dans un cas proche d'une situation réelle. Les filtres sont classés en fonction de leur efficacité vis-à-vis des particules PM10, PM2,5 et PM1, soit des particules dont le diamètre aérodynamique est respectivement inférieur à 10  $\mu\text{m}$ , 2,5  $\mu\text{m}$  et 1  $\mu\text{m}$ . Le Tableau 1 résume les différents groupes où « e » signifie « efficacité ».

| Classe de filtre      | Efficacité globale (%)              |
|-----------------------|-------------------------------------|
| ePM1                  | $\geq 50$ pour des particules PM1   |
| ePM2.5                | $\geq 50$ pour des particules PM2.5 |
| ePM10                 | $\geq 50$ pour des particules PM10  |
| Poussières grossières | $< 50$ pour des particules PM1      |

Tableau 1 : Classification des filtres à air selon la norme ISO 16890 (2016)

La norme EN 1822 de 2009 classe les filtres à très haute efficacité en filtres Efficient Particulate Air (EPA), High Efficiency Particulate Air (HEPA) et Ultra Low Penetrate Air (ULPA) (voir Tableau 2). Cette norme repose sur deux protocoles de mesure. Le premier repose sur une mesure d'efficacité globale, le second consiste à scanner la surface du filtre afin de vérifier qu'en chaque point, un niveau minimal d'efficacité est garanti (efficacité locale).

| Type de filtre | Classe de filtre | Efficacité globale (%)                                | Efficacité locale (%) |
|----------------|------------------|---|-----------------------|
|                |                  | <i>Pour la taille de particule la plus pénétrante</i> |                       |
| EPA            | E10              | $\geq 85$   |                       |
|                | E11              | $\geq 95$   |                       |
|                | E12              | $\geq 99,5$   |                       |
| HEPA           | H13              | $\geq 99,95$  | $\geq 99,75$          |
|                | H14              | $\geq 99,995$   | $\geq 99,975$         |
| ULPA           | U15              | $\geq 99,9995$  | $\geq 99,9975$        |
|                | U16              | $\geq 99,99995$                                       | $\geq 99,99975$       |
|                | U17              | $\geq 99,999995$                                      | $\geq 99,9999$        |

Tableau 2 : Classification des filtres à air selon la norme EN 1822 (2009)

### 1.1.2. Conception des filtres THE

Un filtre THE est constitué d'un cadre ou d'une armature en acier galvanisé comme le montre la photographie en Figure 2. Le lut est un produit placé à l'intérieur du cadre afin d'assurer l'étanchéité entre le média filtrant et l'armature. Ce lut est en matière minérale ou organique (polyuréthane, silicone), les joints d'étanchéité amont/aval placés autour de l'armature étant en néoprène, fibres de verre ou silicone.



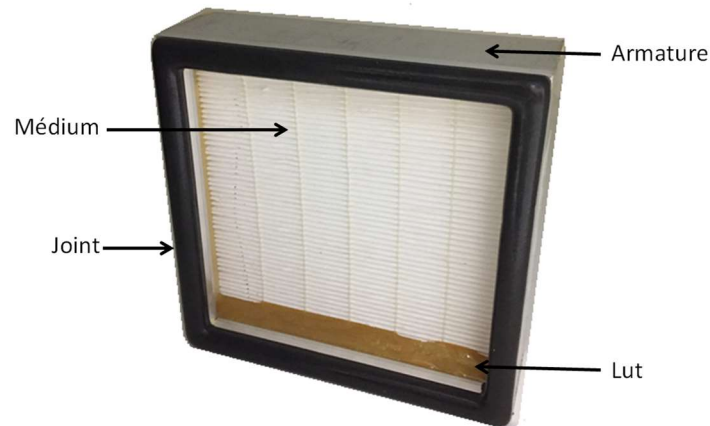


Figure 2 : Filtre plissé avec un média THE industriel

Le média constituant les filtres THE étudiés, utilisé dans l'industrie nucléaire, est à base de fibres de verre. En général, la nappe du média est organisée en dièdres. Le traitement de l'air demandant des débits à traiter importants avec des dimensions réduites, il a fallu obtenir de grandes surfaces d'échange pour garder des vitesses nominales de filtration faibles ( $\approx 2 \text{ cm.s}^{-1}$ ). Raison pour laquelle les médias sont plissés afin de réduire l'encombrement des filtres pour un maximum de surface de filtration.

Il existe deux techniques de plissage dans l'industrie nucléaire. Tout d'abord, on trouve la conception américaine dite « à plis profonds ». Le média est plié suivant toute la profondeur de l'armature dans lequel il est agencé. On trouve également la conception française dite à petits plis, dans laquelle les plis sont entrecroisés à l'aide de fils intercalaires organisés en dièdres. Les paramètres déterminants d'un filtre plissé sont la hauteur  $h$  du pli, le pas  $p$  (ou l'angle de plissage  $\varphi$ ) comme le montre la Figure 3.

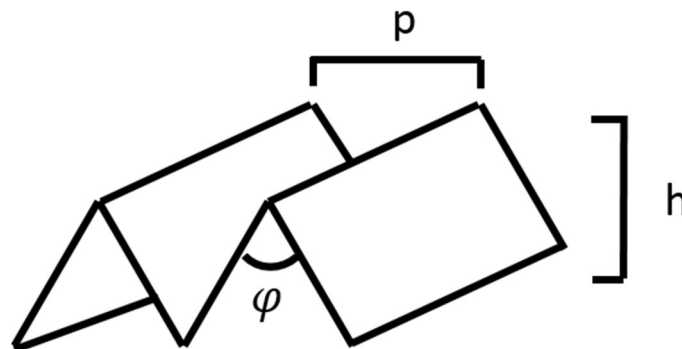


Figure 3 : Schéma des caractéristiques d'un pli du filtre

### 1.1.3. Caractéristiques des médias

Les media fibreux utilisés en ventilation sont caractérisés par plusieurs paramètres physiques :

- la distribution en taille des fibres  $d_f$  ;
- l'épaisseur du média  $Z$  ;
- le grammage  $G$  représentant le rapport entre la masse du média et sa surface ;
- la compacité  $\alpha$  représentant le rapport entre le volume occupé par les fibres et le volume total du média. La notion de porosité  $\varepsilon$  peut également être employée et s'exprime comme suit :

$$\varepsilon = 1 - \alpha \quad (\text{eq. 1})$$

Les performances des filtres caractérisées par :

- le coefficient d'épuration, égal au rapport entre la concentration de particules en amont du filtre sur celle en aval ;
- la perte de charge, égale à la différence de pression de l'air traversant le filtre entre l'amont et l'aval.
- la résistance aéraulique ou résistance à l'écoulement définie par :

$$R = \frac{\Delta P}{U_f \mu} \quad (\text{eq. 2})$$

Avec  $\mu$  la viscosité dynamique du fluide,  $U_f$  la vitesse de filtration et  $\Delta P$  la perte de charge ;

## 1.2. Phénomène de colmatage des filtres THE

Lors de l'accumulation des particules sur un filtre, on distingue trois phases d'évolution de la perte de charge schématisées sur la Figure 4.

- la filtration en profondeur : pour des masses collectées faibles, les particules s'accumulent dans le média. Durant cette phase, la perte de charge du filtre dépend de la pénétration des particules dans l'épaisseur du média filtrant (liée à son efficacité) et de la porosité des dépôts au sein du média (Bergman *et al.* 1976, Kanoaka *et al.* 1998, Kasper *et al.* 2010...) ;
- la filtration en surface : les particules s'accumulent à la surface du filtre. Cette phase, dont la contribution à l'augmentation de la perte de charge d'un filtre est importante, reste conditionnée à la structure du dépôt, notamment à sa porosité et à la taille des particules collectées. Par ailleurs, selon les conditions opératoires, ce dépôt peut également faire l'objet de phénomènes de compression, de fissuration... (Novick *et al.* 1992, Endo *et al.* 1998, Kozeny 1927,...);
- la réduction de surface : dans des conditions extrêmes d'utilisation, les plis du filtre s'obstruent, la surface effective de filtration est alors drastiquement réduite et la résistance aéraulique du filtre augmente très fortement. À ce stade, la porosité conditionne non seulement la résistance aéraulique du dépôt mais également le volume occupé par ce dépôt dans le pli. À très faible débit, le remplissage du pli est un paramètre qui peut devenir dominant (Hettkamp *et al.* 2012, Fotovati *et al.* 2011, Del Fabbro 2001...).

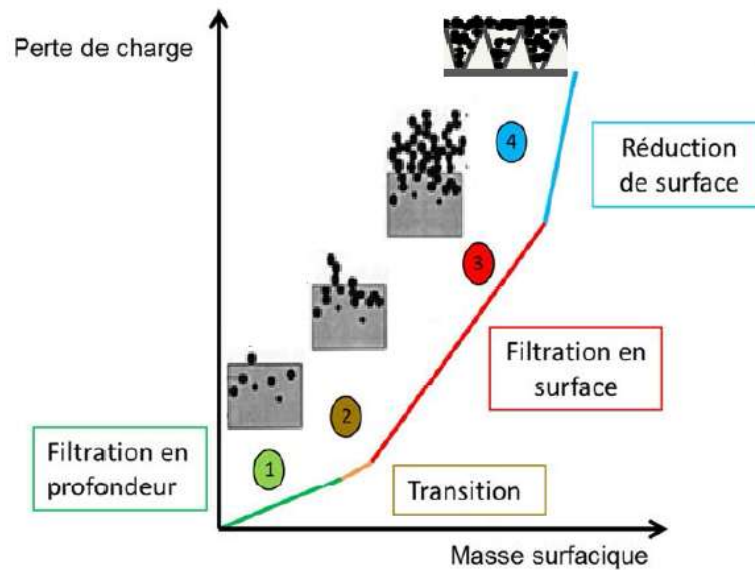


Figure 4 : Évolution de la perte de charge au cours du colmatage (Del Fabbro 2001)

Il est intéressant de comprendre comment se comportent les particules afin de minimiser la résistance aéraulique du dépôt et, par la même occasion, augmenter la durée de vie du filtre en anticipant les colmatages excessifs. De ce fait, il est nécessaire de comprendre le phénomène de colmatage qui est l'inconvénient principal des filtres poreux. Ce sujet a fait l'objet de nombreux travaux de recherche portant sur la modélisation du colmatage (Del Fabbro 2001, Fotovati 2011, Alilou 2018).

Lors du colmatage d'un filtre, la porosité des dépôts formés au cours du colmatage est un paramètre qui a un fort impact sur l'évolution de la résistance aéraulique d'un filtre. Outre la résistance aéraulique du dépôt qui est une problématique bien connue (Novick *et al.* 1992, Mauret *et al.* 1997, Endo *et al.* 2002, Kim *et al.* 2009, Thomas *et al.* 2014), la porosité pilote également le volume occupé par ce dépôt dans le pli (Hettkamp *et al.* 2012, Bourrous 2014, Alilou 2018) et donc la surface de filtration disponible.

## 2. GENERALITES SUR LES AEROSOLS

Au cours du colmatage, on s'intéresse à la manière dont les aérosols s'accumulent et donc leur comportement dans le fluide. L'intensité du colmatage dépend des propriétés des particules, de leur nature, de leur transport. De ce fait, il convient d'identifier comment un aérosol est caractérisé. En effet, un aérosol peut présenter plusieurs morphologies. Dans notre étude, nous désignerons l'aérosol en termes de particules pseudo-sphériques et particules nanostructurées. Ce dernier est employé pour désigner les agglomérats ou les agrégats. Il existe un consensus pour désigner par « agglomérat » un groupe de particules liées par des forces relativement faibles (Friedlander, 2000), l'agrégat désigne plutôt un groupe de particules qu'il est difficile d'individualiser.

Quelle que soit la nature de l'aérosol ou de sa morphologie, sa taille est généralement caractérisée par un équivalent physique. Les diamètres équivalents qui sont appliqués aux aérosols sont rapportés à leur caractéristique physique, on parle de diamètre équivalent en : masse, volume.... C'est-à-dire le diamètre qu'aurait une particule sphérique ayant le même comportement ou la même caractérisation physique que celui de l'aérosol considéré.

Dans cette partie on va lister les grandeurs que l'on considère pour caractériser nos aérosols et leur comportement physique.

## 2.1. Comportement physique des aérosols

« Le mot aérosol désigne la suspension, dans un milieu gazeux (air, dans la plupart des cas), de particules liquides, solides ou les deux, présentant une vitesse limite de chute négligeable, inférieur à  $25 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ . Dans l'air, dans les conditions normales, cela correspond à des particules de dimensions inférieures à  $100 \mu\text{m}$  ». Ainsi, quand on considère une particule aéroportée on doit considérer non seulement la particule mais aussi le milieu dans laquelle elle évolue : l'air. Il est à noter que par abus de langage, il est fréquent d'assimiler l'aérosol à la particule. Nous ne dérogerons pas à cet usage dans la suite du texte.

L'interaction d'une particule avec un gaz nécessite de considérer le libre parcours moyen (distance moyenne d'un point de vue statistique entre deux collisions successives des molécules d'un gaz.) qui peut être déterminé par la relation empirique de Willeke (1976) en fonction des conditions de température  $T$  et de pression  $P$  :

$$\lambda_g = \lambda_0 \left(\frac{T}{T_0}\right) \left(\frac{P_0}{P}\right) \left(\frac{1 + \frac{110,4}{T_0}}{1 + \frac{110,4}{T}}\right) \quad (\text{eq. 3})$$

Avec  $\lambda_0 = 67,3 \cdot 10^{-9} \text{ m}$ ,  $P_0 = 101325 \text{ Pa}$  et  $T_0 = 296,15 \text{ K}$ .

Pour des particules très petites, l'air ne peut pas être considéré comme un continuum. Les lois de la mécanique des fluides ne peuvent pas s'appliquer.

Il existe trois domaines d'écoulement définis en fonction du diamètre des particules. La continuité du milieu est caractérisée par le nombre adimensionnel de Knudsen  $Kn$  défini comme étant le rapport entre le libre parcours moyen des molécules d'air et le rayon d'une particule.

$$Kn = \frac{2\lambda_g}{d_p} \quad (\text{eq. 4})$$

Lorsque le nombre de Knudsen est inférieur à 0,1, c'est-à-dire que le libre parcours moyen est très petit devant le diamètre de la particule, le milieu peut être considéré comme continu. Lorsque  $Kn$  est compris entre 0,1 et 10 (régime intermédiaire), des discontinuités interfaciales apparaissent, introduisant un glissement de l'écoulement à la surface des particules. Cela entraîne la diminution des forces de frottement sur la particule. Pour un nombre de Knudsen supérieur à 10, le milieu n'est plus continu. La Figure 5 représente l'évolution du nombre de Knudsen selon le diamètre des particules à une pression de 101325 Pa et à la température de  $23^\circ\text{C}$ . Elle met en évidence les trois domaines

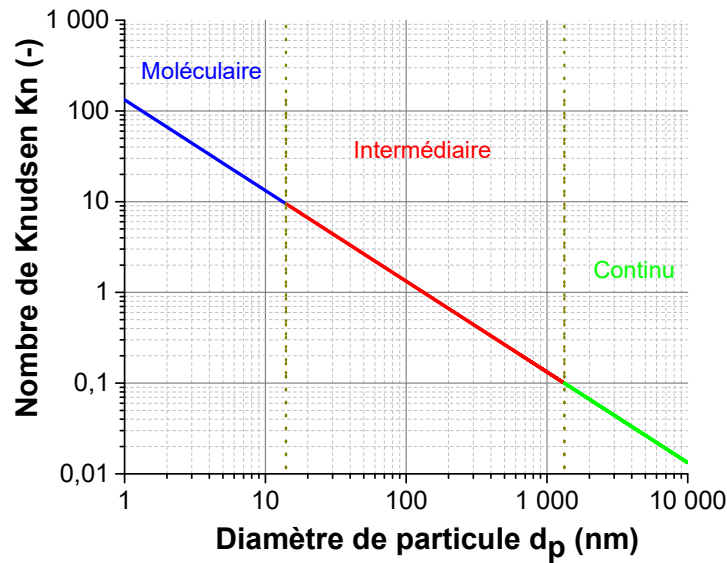


Figure 5 : Évolution du nombre de Knudsen (Kn) selon le diamètre de particule  $d_p$

### 2.1.1. Le domaine continu ( $Kn \ll 1$ )

Il correspond à des dimensions de particules supérieures au micromètre et dont le comportement est décrit par les lois de la mécanique des fluides. Le nombre de Stokes est un nombre adimensionnel qui permet d'évaluer l'importance relative de la force de dissipation visqueuse et de la force inertielle.

$$Stk = \frac{t_{visqueux}}{t_{inertie}} \quad (eq. 5)$$

Il représente le rapport entre le temps de relaxation de la particule et un temps caractéristique de l'écoulement. Le temps de relaxation visqueux  $t_{visqueux}$  caractérise la décroissance exponentielle de la vitesse d'une particule soumise à un frottement visqueux. Le temps  $t_{inertie}$  est la durée caractéristique de l'inertie. Si la particule est entraînée à la même vitesse  $U_f$  que le fluide, elle parcourt une distance égale à son diamètre en un temps donné. En considérant une particule lisse, sphérique, le nombre de Stokes est exprimé par :

$$Stk = \frac{\rho_p d_p U_f}{9 \mu} \quad (eq. 6)$$

Avec :  $\rho_p$ , la masse volumique de la particule,  $d_p$ , le diamètre de la particule,  $U_f$  la vitesse du fluide,  $\mu$  la viscosité dynamique du fluide.

La Figure 6 présente l'évolution de ce paramètre adimensionnel en fonction du diamètre de particule. Ainsi, si  $Stk < 1$ , alors les particules vont suivre les lignes de courant du fluide. Si  $Stk > 1$ , la particule va être entraînée par son inertie et sa trajectoire ne sera que peu influencée par le mouvement du fluide.

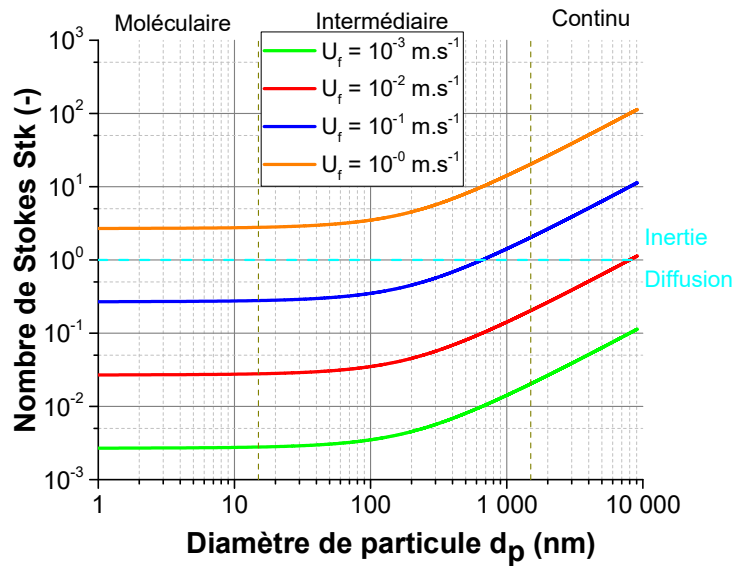


Figure 6 : Évolution du nombre de Stokes  $Stk$  selon le diamètre de particule  $d_p$

Dans le domaine continu, l'interaction entre le fluide et la particule se caractérise par la force de traînée  $F_D$ . Cette force est particulièrement importante non seulement pour évaluer le transport des particules (trajectoire) mais également pour évaluer la perte de charge d'un filtre colmaté. Elle revêt donc des formes différentes suivant le régime d'écoulement. La force de traînée d'une particule sphérique de diamètre  $d_p$  vaut :

$$F_D = 3\pi \mu U_f d_p \quad (\text{eq. 7})$$

### 2.1.2. Le domaine intermédiaire ( $Kn \approx 1$ )

Le domaine intermédiaire correspond à des particules de dimensions comprises entre la dizaine de nanomètres et le micromètre et dont le comportement est décrit par extrapolation du domaine moléculaire ou du domaine continu.

Le coefficient de Cunningham, noté  $C_u$ , est utilisé pour les particules pour lesquelles le milieu ne peut plus être considéré comme continu. Il permet de prendre en compte la vitesse relative non nulle à la surface des particules. Cette vitesse relative induit une diminution de la force de frottement du gaz sur la particule en mouvement, corrigée par ce facteur. Le facteur de correction de Cunningham  $C_u$  traduit la diminution de la force de frottement du gaz sur une sphère en mouvement. Millikan (1923) a proposé d'utiliser une expression exponentielle à trois paramètres adimensionnels ( $a$ ,  $b$  et  $c$ ), ainsi :

$$C_u(d_p) = 1 + \frac{2\lambda_g}{d_p} \left[ a + b \exp\left(-\frac{c d_p}{2\lambda_g}\right) \right] \quad (\text{eq. 8})$$

Cette relation est couramment employée pour déterminer le facteur de correction de Cunningham, et a fait l'objet de nombreuses études expérimentales visant à optimiser les valeurs des constantes. Nous utiliserons dans ce travail les valeurs issues des travaux de Jung *et al.* (2012), l'étude la plus récente où les précédentes valeurs de Kim *et al.* (2005) ont été réévaluées. Ils se sont concentrés sur des tailles de particules entre 19 et 102 nm à température ambiante, à pression atmosphérique. Ainsi, nous retenons pour  $a$ ,  $b$  et  $c$  respectivement 1,165, 0,480 et 1,001.

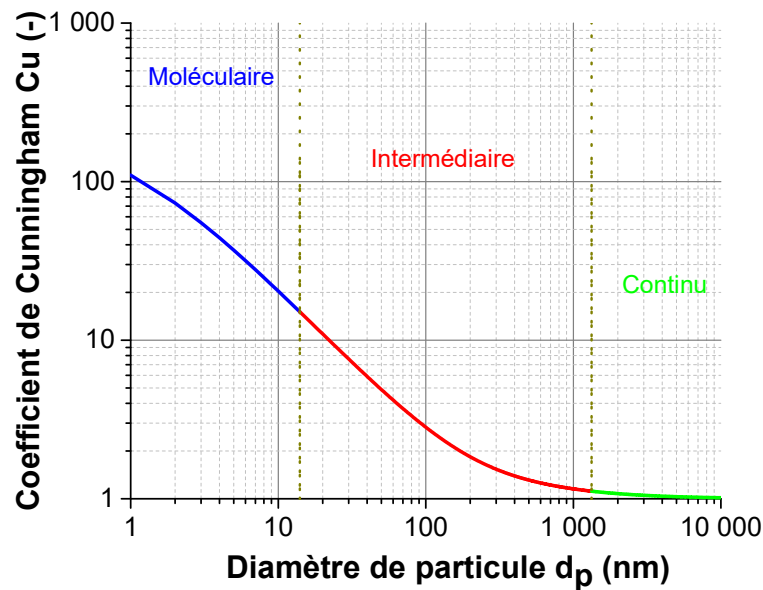


Figure 7 : Évolution du coefficient de Cunningham  $C_u$  selon le diamètre de la particule  $d_p$

On voit sur la Figure 7 que le coefficient de Cunningham  $C_u$  augmente lorsque la taille des particules diminue, c'est-à-dire lorsque le nombre de Knudsen augmente.  $C_u$  tend vers 1 lorsqu'on s'approche du domaine continu.

En utilisant le facteur de correction de Cunningham, une nouvelle expression de la force de trainée est déterminée. En effet, lorsque la vitesse relative du gaz au niveau de la surface de la particule n'est plus nulle, cette force diminue, d'où l'expression :

$$F_D = \frac{3\pi\mu U_f d_p}{C_u(Kn)} \quad (\text{eq. 9})$$

### 2.1.3. Le domaine moléculaire ( $Kn \gg 1$ )

Le domaine moléculaire correspond à des dimensions de particules de l'ordre du nanomètre à la dizaine de nanomètres et dont le comportement est décrit par la thermodynamique et plus particulièrement par la théorie cinétique des gaz.

La diffusion est un phénomène de transport de particules. Ce mécanisme est régi par la loi de Fick qui traduit le flux de particules  $\Phi$  se déplaçant des régions riches en particules vers les régions pauvres en particules : la diffusion tend à rendre homogène les concentrations de particules.

$$\phi = -D \frac{dC_N}{dz} \quad (\text{eq. 10})$$

Avec  $C_N$  la concentration en nombre de particules,  $z$  la distance et  $D$  le coefficient de diffusion brownienne.

Ce flux de matière engendré par ce phénomène de transport est, d'après cette loi, proportionnel au gradient de concentration par l'intermédiaire du coefficient de diffusion.

En raison de leur petite taille et de leur faible inertie, les aérosols sont sensibles aux forces qui peuvent n'avoir aucun effet sur les particules de plus grande taille. Ainsi, en l'absence d'écoulement, les particules en suspension dans un gaz à température et pression constantes se déplacent sous l'action du mouvement brownien et tendent vers une concentration uniforme dans

l'ensemble du volume statique. D'après l'équation d'Einstein, le coefficient de diffusion  $D$  est donné par :

$$D = \frac{k_B T}{\zeta} \tag{eq. 11}$$

où  $k_b$  est la constante de Boltzmann ( $1,38.10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$ ) et  $\zeta$  le coefficient de friction.

Pour une particule sphérique, le coefficient de friction  $\zeta$  est relié à sa taille par la formule de Stokes :

$$\zeta = \frac{3\pi\mu d_p}{Cu} \tag{eq. 12}$$

Ainsi, le coefficient de diffusion brownienne  $D$  d'une particule sphérique s'écrit :

$$D = \frac{k_B TCu}{3\pi\mu d_p} \tag{eq. 13}$$

Pour analyser physiquement le rôle du coefficient de diffusion, il est intéressant d'introduire le nombre de Péclet qui compare les propriétés convectives et diffusives d'un écoulement :

$$Pe = \frac{d_p U_f}{D} \tag{eq. 14}$$

Avec  $d_p$  le diamètre de particule,  $U_f$  la vitesse de filtration et  $D$  le coefficient de diffusion.

Si  $Pe \ll 1$ , la diffusion brownienne domine alors que si  $Pe \gg 1$ , la convection domine.

La Figure 8 montre l'évolution du nombre de Péclet en fonction de la taille des particules. Une vitesse élevée ou un diamètre élevé implique un nombre de Péclet important.

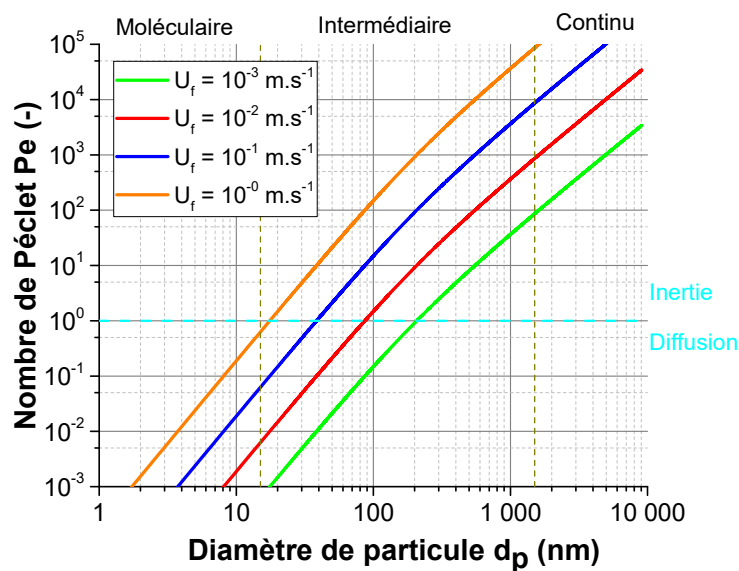


Figure 8 : Évolution du nombre de Péclet  $Pe$  selon le diamètre de particule  $d_p$

## 2.2. Diamètres caractéristiques

Dans cette partie seront présentées les différentes grandeurs utilisées dans le domaine des aérosols pour des particules nanométriques, en spécifiant à chaque fois leur intérêt dans notre étude. La



Figure 9 renvoi à la définition même d'un aérosol et de la distinction entre particule sphérique et particules fractale.

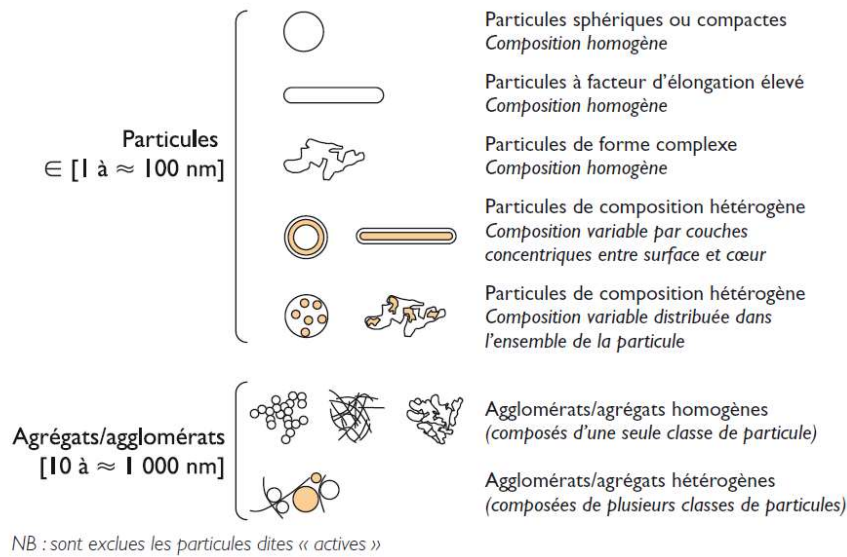


Figure 9 : Catégorisation des nanoparticules d'après Maynard et Aitken (2007).

### 2.2.1. Diamètre équivalent de mobilité électrique

Le diamètre équivalent de mobilité électrique  $d_m$  rend compte du comportement de la particule lorsqu'elle interagit avec un champ électrique et possède une ou plusieurs charges élémentaires (Flagan, 2001). La mobilité électrique  $Z_e$  correspondant au déplacement de la particule quand elle est soumise à un champ électrique s'exprime en  $m^2.V^{-1}.s^{-1}$  et est définie par :

$$Z_e = \frac{p_e e Cu(d_m)}{3\pi \mu d_m} \tag{eq. 15}$$

Avec  $p$  le nombre de charges élémentaires portées par la particule,  $e$  la charge élémentaire valant  $1,6.10^{-19}$  C,  $Cu$  le coefficient de Cunningham,  $\mu$  la viscosité dynamique du gaz et  $d_m$  le diamètre de mobilité électrique.

Le diamètre de mobilité électrique correspond, d'après DeCarlo *et al.* (2004), à l'équivalence suivante :

$$Z(d_p) = Z(d_m) \Leftrightarrow \frac{Cu(d_p)}{d_p} = \frac{Cu(d_m)}{d_m} \tag{eq. 16}$$

Où  $d_p$  représente le diamètre de la particule exprimé en m.

Pour des particules sphériques, le diamètre de mobilité électrique est égal au diamètre équivalent en volume ou établi pour une loi de charge définie.

Ce diamètre de mobilité électrique est le diamètre mesuré par la majorité des études impliquant des aérosols nanostructurés. En effet, le diamètre d'un agrégat sera souvent ramené au diamètre de mobilité électrique.

### 2.2.2. Diamètre équivalent aérodynamique

Le diamètre équivalent aérodynamique  $d_a$  correspond au diamètre d'une sphère de masse volumique  $\rho_0 = 1 \text{ g.cm}^{-3}$  et ayant la même vitesse de chute  $V_{TC}$  que la particule considérée.

$$V_{TC}(d_p) = \frac{d_p^2 \rho_p g}{18\mu} Cu(d_p) = \frac{d_a^2 \rho_0 g}{18\mu} Cu(d_a) \quad (\text{eq. 17})$$

On peut notamment l'exprimer de deux façons, la première en fonction du diamètre de particule  $d_p$  :

$$d_a = d_p \left( \frac{Cu(d_p) \rho_p}{Cu(d_a) \rho_0} \right)^{1/2} \quad (\text{eq. 18})$$

La seconde façon prend en compte la notion de mobilité dynamique. De manière générale, la mobilité correspond au rapport entre la vitesse stationnaire de la particule et la force agissant sur cette dernière. La mobilité dynamique  $B$  est ainsi définie par :

$$B = \frac{V_{TC}}{F_D} \quad (\text{eq. 19})$$

On peut, de plus, définir cette mobilité dynamique à partir du diamètre de mobilité électrique  $d_m$  :

$$B = \frac{Cu(d_m)}{3\pi \mu d_m} \quad (\text{eq. 20})$$

Une particule ne subit plus d'accélération lorsque les forces agissant sur celle-ci s'équilibrent. La particule a ainsi atteint sa vitesse terminale relative. Le temps nécessaire pour atteindre cette vitesse est le temps de relaxation  $\tau$ , exprimé par :

$$\tau = \frac{V_{TC}}{g} = m_p B \quad (\text{eq. 21})$$

Avec  $g$  le coefficient de pesanteur exprimé en  $\text{m.s}^{-2}$ ,  $m_p$  la masse de la particule,  $B$  la mobilité dynamique.

On obtient donc une expression du diamètre aérodynamique :

$$d_a = \left( \frac{18 \mu \tau}{\rho_0 Cu} \right)^{1/2} \quad (\text{eq. 22})$$

Avec  $\rho_0 = 1000 \text{ kg.m}^{-3}$

### 2.2.3. Diamètre équivalent de Stokes

Le diamètre de Stokes  $d_s$  correspond au diamètre d'une sphère ayant la même vitesse de chute  $V_{TC}$  et la même masse volumique que la particule considérée :

$$V_{TC}(d_p) = V_{TC}(d_s) \Leftrightarrow d_p^2 Cu(d_p) = d_s^2 Cu(d_s) \quad (\text{eq. 23})$$

D'où

$$d_s = \left( \frac{18\mu V_{TC}(d_s)}{\rho_p Cu(d_s)g} \right)^{1/2} \quad (\text{eq. 24})$$

### 2.2.4. Diamètre équivalent en volume

Le diamètre équivalent en volume correspond au diamètre de la sphère possédant le même volume total  $V_p$  que la particule considérée. Si la particule n'est pas poreuse, le diamètre équivalent en volume correspond au diamètre équivalent en masse.

$$d_{ev} = \left( \frac{6 V_p}{\pi} \right)^{1/3} \quad (eq. 25)$$

### 2.2.5. Diamètre équivalent en masse

Le diamètre équivalent en masse correspond au diamètre d'une particule sphérique possédant la même masse que la particule considérée. Dans cette relation, les vides internes ne sont pas pris en compte.

$$d_{em} = \left( \frac{6m_p}{\pi\rho_p} \right)^{1/3} \quad (eq. 26)$$

Ici la porosité interne est nulle.

## 2.3. Cas des particules nanostructurées

De nombreux processus de formation des aérosols existent (incendie, condensation...). Il est difficile de caractériser ces aérosols car ils présentent une morphologie complexe. Dans cette partie, les différents paramètres caractéristiques des aérosols dits pseudo-fractals sont présentés.

### 2.3.1. Diamètre des particules primaires et nombre de particules primaires

La particule primaire est le composant élémentaire de l'agrégat. La connaissance de sa dimension est nécessaire à la description de l'agrégat. Les particules primaires peuvent se lier entre elles de façon rigide, on parle alors d'agrégats. Si cet assemblage local n'est pas rigide, on parle alors d'agglomérat. Cette définition est schématisée sur la Figure 10, elle reprend celle proposée par l'ISO/TS 80004-1.

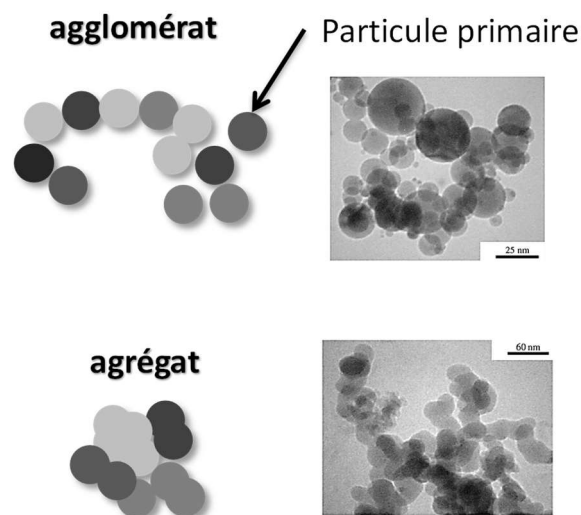


Figure 10 : Illustrations de la définition des agglomérats (alumine  $Al_2O_3$ ) et agrégats (silice  $SiO_2$ ) de particules en image de Microscopie Électronique en Transmission (MET)

Dans le cas d'une combustion, le nombre de particules primaires  $N_{pp}$  varie selon le combustible et dépend bien évidemment du processus d'agrégation des particules de suie. Concernant les suies, ce nombre dépend du type de flamme et de l'endroit de prélèvements des suies. La structure de l'agrégat varie selon que le prélèvement est effectué en sortie de flamme ou dans la fumée où les agrégats peuvent continuer à interagir entre eux et voir leur nombre de particules primaires augmenter par coagulation. On trouve dans la littérature des valeurs de  $N_{pp}$  très dispersées, allant de quelques particules à quelques centaines.

### 2.3.2. Diamètre de giration

Le diamètre de giration,  $d_g$ , est lié à la répartition massique des agrégats. Il correspond à la moyenne du carré des distances  $\delta_i$  des particules primaires au centre de masse (barycentre B) de la particule :

$$\delta_i = \sqrt{(x_i - x_B)^2 + (y_i - y_B)^2} \quad (\text{eq. 27})$$

D'où l'expression du rayon de giration :

$$r_g^2 = \frac{1}{N_{pp}} \sum_{N_{pp}} \delta_i^2 \quad (\text{eq. 28})$$

Avec  $N_{pp}$  le nombre de particules primaires.

Ce diamètre ne dépend ni de l'environnement de la particule ni du régime d'écoulement. L'étude bibliographique de Sorensen (2011) reprend les résultats d'études reliant le rayon de giration au rayon de mobilité électrique  $r_m$ . Il aboutit à des relations variant selon le régime d'écoulement :

- régime moléculaire :

$$r_m = r_p N_{pp}^{0,45} \quad (\text{eq. 29})$$

- régime continu :

$$r_m = r_p N_{pp}^{0,45}, \text{ pour } N_{pp} < 100 \quad (\text{eq. 30})$$

$$r_m = 0,65 r_p N_{pp}, \text{ pour } N_{pp} > 100 \quad (\text{eq. 31})$$

Pour le régime intermédiaire, il est difficile de définir une relation du rayon de giration. Vainsthein et Shapiro (2005) ont mis en évidence de manière numérique l'influence de la dimension fractale d'agrégats poreux sur la force de traînée. Cette force de traînée qui est liée au rayon de mobilité croît quand la dimension fractale augmente.

### 2.3.3. Dimension fractale et préfacteur

La dimension fractale  $D_f$  est un nombre réel positif caractérisant la manière dont la masse d'un objet est répartie dans l'espace. Si l'objet est de longueur  $L$  et que l'on reporte  $N$  fois un étalon de longueur  $n$  sur l'objet, sa dimension fractale est :

$$D_f = \frac{\ln N}{\ln \left( \frac{L}{n} \right)} \quad (\text{eq. 32})$$

La dimension fractale d'un objet est toujours inférieure à la dimension  $d$  de l'espace où il est inscrit : avec  $d=3$  si la fractale est volumique et  $d=2$  si la fractale est tracée dans une surface. Cela

vient simplement du fait que le volume de cette fractale ne peut croître plus vite que son diamètre à la puissance  $d$ , cas de l'objet compact. Ainsi, plus  $D_f$  s'approche de  $d$ , plus l'objet est « compact » et moins il est fractal, comme le montre la Figure 11.

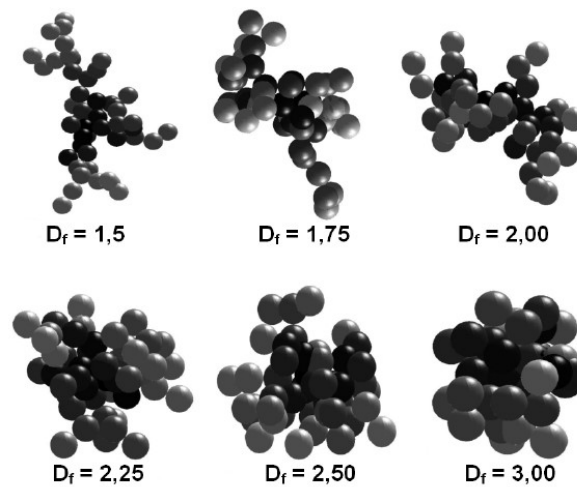


Figure 11 : Représentation d'agrégats à différentes valeurs de dimension fractale  $D_f$

Le préfacteur  $k_f$  est généralement considéré comme un paramètre secondaire. Il représente le facteur de structure et est une fonction de la dimension fractale. Si la dimension fractale est le plus souvent du même ordre de grandeur pour des agrégats issus de différents combustibles, le préfacteur est sensible à la nature du combustible.

L'analyse fractale des agrégats passe par l'établissement des trois paramètres précédemment cités :  $d_g$ ,  $N_{pp}$ ,  $d_{pp}$ . On peut à l'aide de ces trois paramètres établir une relation caractéristique de l'agrégat. Cette relation, dite relation fractale, fait intervenir  $D_f$  et  $k_f$  :

$$N_{pp} = k_f \left( \frac{d_g}{d_{pp}} \right)^{D_f} \quad (\text{eq. 33})$$

#### 2.3.4. Diamètre équivalent en volume

Dans les particules de suie, il peut être exprimé en fonction du nombre de particules primaires et du diamètre de ces dernières. On a ainsi :

$$d_{ev} = N_{pp}^{1/3} d_{pp} \quad (\text{eq. 34})$$

Ce diamètre équivalent en volume peut permettre de déterminer la masse de l'agrégat  $m_a$  qui s'exprime par la relation suivante :

$$m_a = \frac{\pi}{6} \rho_{pp} d_{ev}^3 \quad (\text{eq. 35})$$

Avec  $\rho_{pp}$  la masse volumique des particules primaires exprimée en  $\text{kg.m}^{-3}$ .

#### 2.3.5. Diamètre de collision

Le terme diamètre est assez "déroutant" car la littérature montre une diversité des types de diamètres choisis. Dans cette étude concernant les agrégats, il faut un paramètre qui prend en compte l'ensemble des propriétés morphologiques de l'aérosol ( $N_{pp}$ ,  $d_{pp}$ ,  $D_f$  et  $k_f$ ). Notre choix se porte sur le diamètre effectif de collision  $d_c$ . Ce diamètre se réfère à la somme des rayons de deux

sphères (comptées par rapport aux centres de masse des agrégats participants) qui donnerait la même probabilité de collision que les agrégats réels, schématisé en Figure 12 avec  $U_{diff}$  la vitesse de l'agrégat (vitesse de diffusion),  $\sigma_{ij}$  la section efficace de collision,  $R_{i,j}$  le rayon de la particule  $i$  et  $j$ .

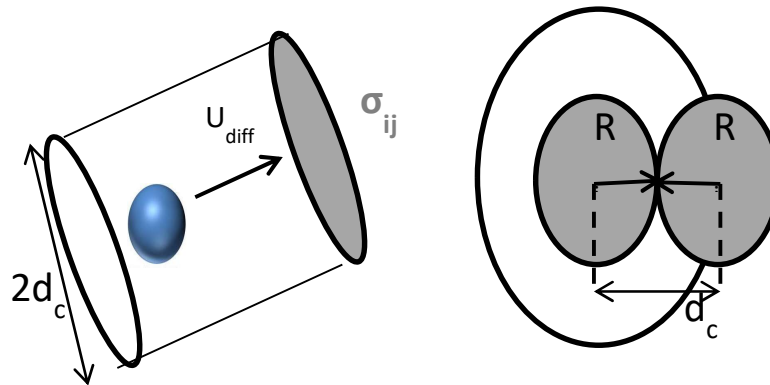


Figure 12 : Description du diamètre de collision basé sur un modèle de sphères équivalentes (Zurita et al. 2002)

Ainsi on peut exprimer le diamètre de collision comme étant :

$$d_c = d_{pp} \left( \frac{N_{pp}}{k_f} \right)^{(1/D_f)} \quad (\text{eq. 36})$$

avec  $d_{pp}$  le diamètre de particule primaire,  $N_{pp}$  le nombre de particule primaire,  $k_f$  le préfacteur fractal et  $D_f$  la dimension fractale.

La complexité morphologique des particules étudiées rend compte de l'importance des paramètres que sont la dimension fractale  $D_f$ , le préfacteur  $k_f$ , le nombre  $N_{pp}$  de particules primaires, le diamètre  $d_{pp}$  de ces particules primaires et le nombre de Knudsen  $Kn$ .

### 2.3.6. Force de traînée d'un agrégat

La traînée d'un agrégat est plus importante que celle d'une particule sphérique de même volume car sa surface spécifique est plus grande. Une première étude reposant sur la sédimentation a été réalisée par Gruy (2004). Il a calculé le coefficient de traînée dans le glycérol afin de préserver la nature stokesienne de l'écoulement de particules. Il a montré que le rayon hydrodynamique des agrégats est très proche du rayon basé sur la surface moyenne projetée. La porosité et la perméabilité n'ont pas d'influence réelle pour de petits agrégats disposant d'un très faible nombre de particules primaires. Ses résultats montrent l'influence de la morphologie et de la rugosité de la particule sur le coefficient de traînée. L'effet de la porosité n'est perceptible que pour de grandes surfaces poreuses, c'est-à-dire pour un nombre de particules primaires supérieur à 100 et une dimension fractale inférieure à 2,5.

Pour des particules non sphériques, un facteur de correction intervient, à savoir le facteur de forme dynamique  $X$ . Ce facteur de forme est le rapport du comportement d'une particule sur celui d'une particule sphérique de même diamètre équivalent en volume. La force de traînée devient :

$$F_D = \frac{3\pi\mu U_f X d_{ev}}{C_u(d_{ev})} \quad (\text{eq. 37})$$

Avec  $X$  dépendant de la porosité  $\varepsilon$  de l'agglomérat mais très peu du nombre de particules primaires d'après l'étude de Brockmann et Rader (1990) :

$$\chi = \frac{\kappa \varepsilon C(d_m)}{C(\varepsilon d_m)} \quad (\text{eq. 38})$$

Avec  $C(d_m)$  le facteur de correction du diamètre équivalent en masse et  $\kappa$  une constante dépendant de la forme de la particule.

Gieseke *et al.* (1977) emploient cette porosité pour exprimer le facteur de forme dynamique dans la caractérisation de particules d'oxyde de sodium. Wegrzyn et Shaw (1979) utilisent également cette composante qu'est la porosité.

L'évaluation de la force de traînée dans le cas des agrégats a déjà fait l'objet d'un certain nombre de travaux, la plupart théoriques (Filipov *et al.* 2000). Vanni (2000) a calculé numériquement la force de traînée et l'efficacité de collecte d'un agrégat fractal dans un écoulement uniforme. Pour ce faire, il a résolu les équations de Stokes et de Brinkman en prenant en compte la structure non homogène de l'agrégat.

Mackowski (2006) étudie l'influence d'une morphologie fractale sur l'hydrodynamisme et la thermophorèse de ce type d'agrégat en régime moléculaire. Il observe l'évolution du diamètre équivalent hydrodynamique de ses agrégats en fonction du nombre de particules primaires et ceci pour différentes dimensions fractales. Le rayon hydrodynamique est le rayon d'une sphère ayant la même force de traînée dans l'eau que l'agrégat. Dans l'étude, il varie entre 0,01 et 1,3  $\mu\text{m}$  pour des particules primaires comprises entre 0,01  $\mu\text{m}$  et 0,03  $\mu\text{m}$ . Sur la Figure 13, on observe que le rayon hydrodynamique augmente avec le nombre de particules primaires de l'agrégat ; cependant celui-ci semble faiblement dépendre de la dimension fractale pour des valeurs comprises entre 1,7 et 2.

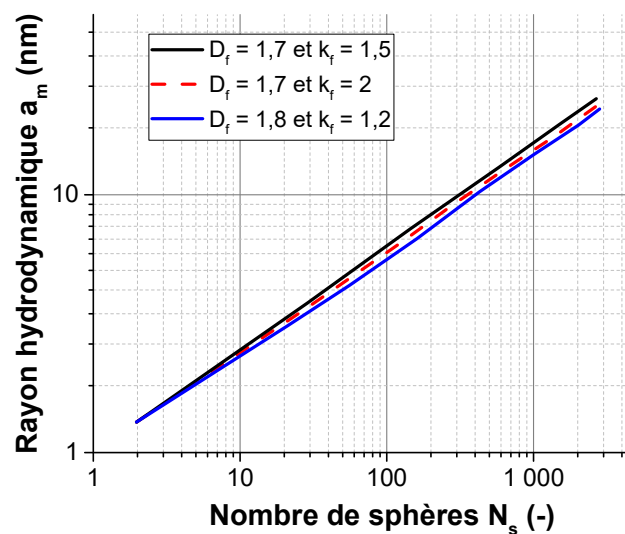


Figure 13 : Évolution du rayon hydrodynamique en fonction du nombre de particules primaires (Mackowski 2006)

Binder *et al.* (2006) ont évalué la force de traînée d'agrégats en utilisant la méthode de Lattice-Boltzmann (Lattice Boltzmann Method) et la méthode de la dynamique stokesienne (Accelerated Stokesian Dynamic). Ces méthodes ont été comparées et montrent des résultats comparables. Une comparaison des forces de traînée moyennes sur des agrégats avec différents nombres de particules montre une augmentation non linéaire. Il a également mis en évidence que le facteur de forme dynamique était dépendant de l'orientation des agrégats. Une variation de 20% a été constatée pour des agrégats de dimension fractale de 1,85.

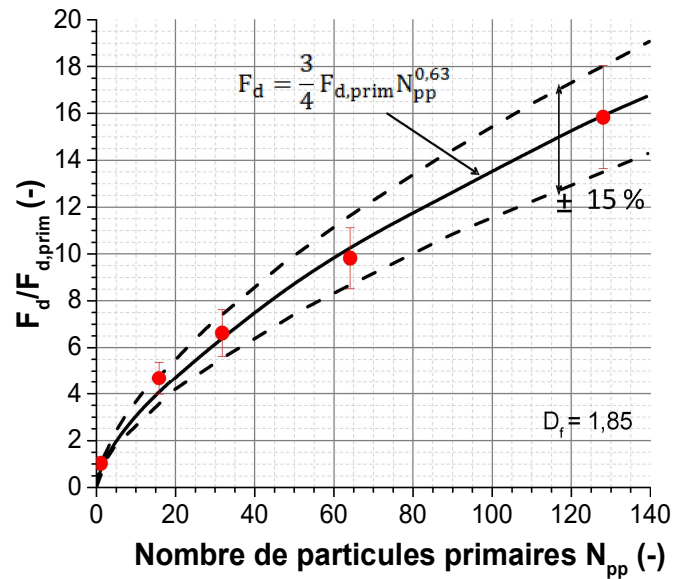


Figure 14 : Influence du nombre de particules primaires sur la force de traînée (simulation ASD)

Cela est dû au fait que les particules externes des agrégats « filtrent » le fluide de sorte que les particules au centre de l'agrégat contribuent moins à la force de traînée en raison d'un effet dit «bouclier». La ligne en tirets sur la Figure 14 désigne la force de traînée d'un certain nombre de particules qui ne s'influencent pas mutuellement, c'est-à-dire  $N$  fois la force exercée sur une particule primaire dans un milieu infini. Cet effet de bouclier augmente rapidement avec l'augmentation du nombre de particules. Les agrégats analysés formés avec un algorithme de Monte Carlo ont une dimension fractale relativement constante  $D_f \approx 1,85$ . En corrélant la force de traînée moyenne au nombre de particules, une équation approximative peut être donnée :

$$F_D = \frac{3}{4} F_{D,prim} N_{pp}^{0,63} \quad (eq. 39)$$

Avec  $F_{d,prim}$  la force de traînée d'une particule primaire.

On peut raisonnablement faire l'hypothèse que la force de traînée d'un agrégat est liée à la force de traînée agissant sur chaque particule primaire et est, par définition, liée au nombre de particules primaires à l'intérieur de l'agrégat (Binder *et al.*, 2006) :

$$F_D^{agg} = F_{D,prim} N_{pp}^\beta \quad (eq. 40)$$

Une loi puissance est supposée entre la force de traînée d'un agrégat et le nombre de particules primaires car la compacité de l'agrégat peut modifier le nombre effectif de particules primaires interagissant avec le gaz environnant. Il semble donc évident que  $\beta$  doit être lié à la dimension fractale.

### 2.3.7. Composition chimique des aérosols de combustion / masse volumique

La spécificité de suies réside dans leur composition chimique qui dépend des conditions de combustion à travers une fraction Elemental Carbon (EC) sur l'Organic Carbon (OC). L'EC désigne le carbone élémentaire alors que l'OC provient notamment de la combustion. Ainsi la masse volumique du composé varie pour un même matériau : dans le cas du carbone, elle varie entre 1000 et 2000  $\text{kg.m}^{-3}$ .



Dans le cas de particules nanostructurées de suie, la masse volumique effective d'un agrégat n'est pas directement corrélée à la composition chimique de l'aérosol. Elle est également liée à la morphologie même de l'agrégat, c'est-à-dire sa porosité entre les particules primaires. C'est un paramètre souvent défini dans la littérature pour la combinaison de deux mesures d'aérosols (Baron *et al.*, 2001, Han *et al.*, 2002, Jimenez *et al.* 2003). Elle résulte de la connaissance de la masse de l'agrégat et de son diamètre de mobilité électrique :

$$\rho_e = \frac{6m_{agg}}{\pi d_{me}^3} \quad (eq. 41)$$

Dernièrement, Yon *et al.* (2015) proposent un modèle simple semi-empirique qui permet l'interprétation quantitative des mesures de densité effective afin de déterminer des paramètres tels que la dimension fractale, la taille des particules primaires et la masse volumique apparente d'un agrégat. Le modèle proposé est basé sur l'hypothèse que la force de traînée aérodynamique d'un agrégat est proportionnelle à la force de traînée appliquée à des particules primaires isolées et au nombre de particules primaires à la puissance  $\alpha$ . Le modèle a été appliqué sur les particules de suie produites soit par une décharge d'étincelle ou par combustion. Les deux mécanismes permettent la génération d'agrégats ou d'agglomérats très différents possédant des diamètres de particules primaires bien distincts (respectivement 7 et 25 nm). Le modèle proposé rend compte de toutes les mesures de densité effective obtenues dans cette étude ; le paramètre  $\alpha$  a été déterminé par la dimension fractale agrégée et par le nombre de Knudsen déterminé sur la base du diamètre des particules primaires. Enfin, pour un diamètre de particules primaires connue, la dimension fractale et la densité effective ont été déterminées avec succès avec le modèle proposé.

Une relation entre la masse et la taille des particules est généralement supposée pour les agglomérats de nanoparticules. Cette caractéristique est fréquemment incorporée dans la loi fractale,  $D_f$  et  $k_f$  sont généralement supposés constants pour les particules plus grandes que  $N_{pp} = 10-20$  (Lattuada, Wu et Morbidelli, 2003).

Une modélisation précise de la densité effective de particules non sphériques nécessite de décrire la relation entre le diamètre de mobilité des particules et les paramètres morphologiques de la particule, à savoir  $k_f$ ,  $D_f$ ,  $N_{pp}$  et  $d_{pp}$ . Plusieurs études ont étudié ce problème, notamment une revue écrite par Sorensen (2011). Ces études démontrent clairement l'impact du changement de régime d'écoulement, caractérisé par le nombre de Knudsen, à mesure que la particule se développe.

Dans une récente étude, Ouf *et al.* (2019) proposent d'utiliser la méthode ISO 787-23 pour la mesure de la masse volumique effective de particules carbonées à distribution de taille micronique et nanométrique. Ces valeurs ont été comparées aux valeurs rapportées dans la littérature ou indirectement obtenues. Une corrélation intéressante entre la masse volumique des particules émises par combustion et la teneur en carbone organique (CO) est observée : la densité réelle diminue lorsque la teneur en CO augmente, comme on peut le voir à travers le Tableau 3.

| Source                                   | Carburant                                    | Contenu CO (%)             | Masse volumique Effective | Référence                  |
|--|--|----------------------------|---------------------------|----------------------------|
| Flamme de diffusion (calorimètre à cône) | C <sub>2</sub> H <sub>2</sub>                | 5                          | 1719 +/- 30*              | (Ouf <i>et al.</i> , 2019) |
|  | C <sub>7</sub> H <sub>8</sub>                | 16.3                       | 1515 +/- 191              |                            |
|  | C <sub>7</sub> H <sub>8</sub>                | 25.0                       | 1483 +/- 100**            |                            |
|  | C <sub>5</sub> H <sub>8</sub> O <sub>2</sub> | 10.1                       | 1648 +/- 78               |                            |
|  | 2/3 PMMA <sup>1</sup> + 1/3 PVC <sup>1</sup> | 14.8 +/- 2.3               | 1315 +/- 82               |                            |
|  | TBP <sup>2</sup> / TPH <sup>2</sup>          | 15.0 +/- 1.4               | 1534 +/- 78 <sup>†</sup>  |                            |
| miniCAST                                 | Propane                                      | 16.2                       | 1543                      | (Yon <i>et al.</i> , 2015) |
|  |  | 58.3                       | 1234**                    |                            |
|  |  | 87                         | 1321**                    |                            |
|  |  | 22                         | 1227**                    |                            |
| Feu à échelle réelle                     | Élément électriques                          | 37.6 +/- 1.7               | 1762 +/- 6 <sup>††</sup>  | (Ouf <i>et al.</i> , 2019) |
|  | Armoire électrique                           | 37.6 +/- 1.7               | 1672 +/- 29 <sup>††</sup> |                            |
|  | Câbles électrique                            | 55.3 +/- 2.8 <sup>††</sup> | 2000 +/- 68 <sup>††</sup> |                            |
|  | Câbles électrique avec PVC                   | 8.4 +/- 1.0 <sup>††</sup>  | 1768 +/- 39 <sup>††</sup> |                            |
|  | Huile hydraulique                            | 10.3 +/- 0.4               | 1665 +/- 164              |                            |
|  | Boîte à gants                                | 6.2 +/- 0.6                | 1749 +/- 82               |                            |
| 48.1 +/- 3.4 <sup>††</sup>               |  | 2069 +/- 35 <sup>††</sup>  |                           |                            |

Tableau 3 : Valeurs expérimentales de la masse volumique de différentes suies d'après Ouf *et al.* (2019) avec \* densités prises en compte pour les suies, \*\* densités prises en compte pour les échantillons à CO élevé, <sup>1</sup> PMMA et PVC se réfèrent au solvant de traitement des déchets nucléaires composé de phosphates de tributyle et de liquides d'hydrogène tétrapropylène, <sup>†</sup>Suie contenant une teneur importante en H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> et <sup>††</sup>Suie contenant une teneur importante en métal

### 3. DEPOT DE PARTICULES NANOSTRUCTUREES

#### 3.1. Modèle de perte de charge

« Le logiciel SYLVIA permet le dimensionnement et l'étude du comportement en situation nominale et accidentelle des réseaux de ventilation. Il calcule le développement du foyer, le transport des gaz chauds et des suies, la remise en suspension et le transport d'aérosols radioactifs, le colmatage des filtres et éventuellement les contraintes générées sur des équipements de sectorisation comme les portes ou les clapets coupe-feu. SYLVIA est l'outil de calcul de référence de l'IRSN utilisé en support aux évaluations de la sûreté des installations nucléaires » (irsn.fr).

Cet outil est destiné à être constamment amélioré. Cette étude a pour objectif d'améliorer les modèles disponibles vis-à-vis de la donnée d'entrée du modèle de colmatage, qu'est la porosité du gâteau de suie formé à la surface des filtres THE. Nous détaillerons ici quatre grands modèles, les autres seront simplement évoqués.

### 3.1.1. Modèle capillaire

Les équations de Stokes décrivent le mouvement des fluides newtoniens :

$$\rho \frac{dV}{dt} = -\nabla p + \sum_{k=1}^n \rho_k F_k + \mu \nabla^2 V + \frac{\mu}{3} \nabla(\nabla V) \quad (\text{eq. 42})$$

Où  $F_k$  est la force extérieure massique exercée sur chaque espèce  $k$ ,  $\rho_k$  la masse volumique locale,  $V$  la vitesse locale et  $\mu$  la viscosité dynamique.

Il est possible de résoudre le système d'équations différentielles de Stokes pour obtenir l'expression de la perte de charge en fonction du débit dans un capillaire en supposant un fluide non compressible et un écoulement laminaire :

$$\frac{\Delta P}{\Delta L} = \frac{8\mu}{\pi r_p^4} Q_v \quad (\text{eq. 43})$$

Avec  $Q_v$  le débit volumique de filtration,  $\Delta L$  la longueur d'un pore cylindrique et  $r_p$  le diamètre d'un pore cylindrique.

En se basant sur cette équation dite de Hagen-Poiseuille, Kozeny établit son modèle d'écoulement en milieu poreux qui fait l'hypothèse d'un régime continu et se consacre principalement aux particules microniques. Un dépôt est notamment caractérisé par :

- la porosité qui représente le rapport entre le volume de vide et le volume total :

$$\varepsilon = \frac{V_{\text{vide}}}{V_{\text{total}}} \quad (\text{eq. 44})$$

Elle varie entre 0 (solide plein) et 1 (solide vide). Elle est souvent ramenée à la compacité  $\alpha$ .

$$\alpha = 1 - \varepsilon \quad (\text{eq. 45})$$

- la perméabilité  $k$  représente la facilité qu'a un matériau à permettre le transfert d'un fluide sous l'effet d'un gradient de pression

$$k = \frac{Q_v}{S_f} \frac{\Delta x}{\Delta P} \mu \quad (\text{eq. 46})$$

Avec  $Q_v$  le débit volumique de filtration,  $S_f$  la surface de filtration,  $\frac{\Delta x}{\Delta P}$  le gradient de pression.

La loi de Darcy permet de relier le débit en écoulement laminaire au gradient hydraulique par le coefficient de perméabilité par unité de surface. Ainsi

$$Q_v = S_f \frac{k}{\mu} \frac{\Delta P}{\Delta x} \quad (\text{eq. 47})$$

Darcy (1856) a mis en évidence une relation linéaire entre la vitesse de l'écoulement,  $U_f$ , à travers un milieu poreux isotrope et le gradient de pression. Il en a déduit que la perte de charge  $\Delta P$  pour un écoulement stationnaire d'un fluide visqueux incompressible à travers une longueur  $Z$  d'un milieu poreux est régie par :

$$\frac{\Delta P}{Z} = \frac{\mu U_f}{k} \quad (\text{eq. 48})$$

Cette loi se vérifie très facilement expérimentalement en supposant que l'écoulement à l'échelle des pores est laminaire.

Afin de tenir compte du fait que les particules sont en contact les unes avec les autres et qu'elles ne sont pas toutes de la même taille, Kozeny (1927) et Carman (1937) ont proposé une équation semi-empirique :

$$\Delta P_g = \frac{h_k a_p^2 \alpha \mu}{C_u (1 - \alpha)^3 \rho_p} U_f \left( \frac{m_g}{S_f} \right) \quad (\text{eq. 49})$$

Avec  $h_k$  le coefficient de Kozeny-Carman,  $\alpha$  la compacité du gâteau et  $a_p$  la surface spécifique de grain qui vaut :

$$a_p = \frac{6}{d_{ev}} \quad (\text{eq. 50})$$

Le coefficient de Kozeny-Carman permet de relier la porosité d'un milieu et sa tortuosité. Cette dernière représente le rapport de la longueur réellement parcourue par le fluide dans le milieu poreux sur la longueur totale du domaine d'étude.

Le modèle de Novick *et al.* (1992) se consacre aux effets de la masse d'aérosol collectée par des filtres THE sur la perte de charge. En utilisant la loi de Kozeny-Carman, il exprime la perte de charge comme étant la somme des pertes de charge du média vierge  $\Delta P_0$  et du gâteau de particules  $\Delta P_g$ .

$$\Delta P = \Delta P_0 + \Delta P_g \quad (\text{eq. 51})$$

La loi de Darcy permet le calcul de la perte de charge. La perte de charge du filtre vierge s'ajoute à celle du gâteau qui est exprimée à partir de la relation de Kozeny-Carman pour la prise en compte de la porosité du dépôt. L'expression de la perte de charge du dépôt est donc décrite par une fonction linéaire de la masse de particules collectée en surface.

Ce modèle ne prend pas en compte la filtration en surface : les variations de compacité du gâteau en fonction de l'épaisseur du gâteau de filtration (Holland et Rothwell 1977, Schmidt 1992). Il s'applique à des particules microniques mais n'est pas valable pour des particules organisées en dendrites et présentant des compacités plus faibles.

### 3.1.2. Modèle basé sur la force de traînée

De la même manière, le modèle d'Endo (Endo *et al.* 1998) est un modèle physique établi par l'analyse des forces aérauliques s'exerçant sur les particules. Il vise à exprimer la perte de charge en régime laminaire d'un aérosol polydispersé suivant une loi log-normale. En effet, la très grande majorité des aérosols suit ce type de loi. Les hypothèses de ce modèle sont :

- une distribution log-normale des particules considérées comme des sphères;
- une distribution unimodale (Endo *et al.* 2002) ;
- une forme des particules régulières (prise en compte du facteur de forme dynamique) ;
- un gâteau homogène ;
- un régime continu autour de la particule.

La difficulté de ce modèle est d'estimer la porosité et le facteur de forme dans le cas de particules non sphériques. Il considère que la chute de pression à travers une couche de gâteau doit être égale

à la somme des forces de traînée du fluide agissant sur toutes les particules du gâteau. Ce modèle donne des liens entre la structure du gâteau (porosité), les conditions opératoires (vitesse de filtration), les caractéristiques des particules (distribution granulométrique et forme des particules) et l'épaisseur du gâteau.

$$\Delta P_g = 18\mu U_f \frac{m_g}{\rho S_f d_g^2} \frac{X}{\exp(4 \ln^2 \sigma_g)} \frac{v(\varepsilon)}{\varepsilon^2} \quad (\text{eq. 52})$$

Où  $d_g$  est le diamètre géométrique moyen de  $d_{ev}$ , le diamètre équivalent en volume,  $\sigma_g$  est l'écart-type géométrique et  $v(\varepsilon)$  est la fonction de vide proposée par Endo *et al.* (2001). Cette fonction permet de prendre en compte l'effet des particules voisines dans les couches de particules. Elle peut être interprétée comme étant la viscosité apparente du fluide. La viscosité apparente dépend de la porosité  $\varepsilon$ . Elle augmente avec la densité (Van de Ven, 1989). Bien qu'il ne soit pas possible d'obtenir  $v(\varepsilon)$  pour des lits de particules non sphériques et polydispersées de manière théorique, de nombreuses formules empiriques de  $v(\varepsilon)$  ont été proposées (Steinour (1944), Molerus *et al.* (1971), Dulien (1975)...). Ainsi, Endo exprime la fonction de vide comme étant :

$$v(\varepsilon) = \frac{10(1-\varepsilon)}{\varepsilon} \text{ avec } 0,3 < \varepsilon < 0,6 \quad (\text{eq. 53})$$

Ces relations ont été obtenues à partir des tests de perméation à l'eau et à l'air en utilisant des filtres de petite taille et divers types de poudre. Le travail de Kim *et al.* (2009) montre que cette relation peut également être bien adaptée pour des porosités plus grandes que 0,9. Ils ont caractérisé des agglomérats de suie produits par une flamme de diffusion, et ont mené des essais de colmatage en utilisant un media fibreux. En outre, ils ont appliqué le modèle d'Endo afin de modéliser la perte de charge du gâteau en utilisant la distribution granulométrique des particules primaires. Bien que le modèle ne soit pas développé pour des agglomérats, ils ont constaté que ce modèle traduisait bien les résultats expérimentaux. Afin d'affiner les modèles existants, il est primordial de prendre en compte cette morphologie bien caractéristique.

Plus récemment, Thomas (Thomas *et al.*, 2011) s'est attaché à décrire le dépôt en rendant compte de la structure formée par les particules. Il assimile le dépôt nanostructuré à un enchevêtrement de chaînes composées de particules juxtaposées avec (agrégats) ou sans (agglomérats) chevauchement partiel. Il propose donc d'utiliser la force de traînée agissant sur la chaîne de particules plutôt que sur les particules. Pour cela, il se base sur la loi de Davies et considère le dépôt comme un matelas de chaînette de particules primaires. L'évolution de la perte de charge du gâteau se base sur le calcul de la force de traînée par unité de longueur comme défini par Sakano *et al.* (2002) à l'aide de la relation empirique de Davies.

$$\Delta P_g = \frac{64\alpha^{1/2}(1 + 56\alpha^3)}{Cu d_{pp}^2 \rho_p} F_{c\mu} \frac{m_g}{S_f} U_f \quad (\text{eq. 54})$$

Avec  $F_c$ , le facteur correctif (-) qui prend en compte la différence de longueur totale de la chaîne par rapport à celle des fibres pour une même densité et un même diamètre de particule primaire.

Pour tenir compte de l'interpénétration des particules primaires, il introduit le coefficient de recouvrement  $Co$  défini à partir de la distance entre les centres de deux particules primaires séparées par une distance  $d$ . Dans le cas d'une juxtaposition sans fusion des particules primaires (c'est-à-dire un agglomérat), la distance  $d$  vaut le diamètre de particule primaire  $d_{pp}$ . Ainsi  $Co = 0$ .

La Figure 15 permet de se rendre compte de l'évolution de ce facteur selon le taux de recouvrement. Ce facteur correctif tend vers 1 lorsque le taux de recouvrement est proche de 1. Ces deux paramètres s'expriment comme suit :

$$C_0 = \frac{d_{pp} - d}{d_{pp}} \quad (\text{eq. 55})$$

$$F_c = \frac{1 - C_0}{\left[\frac{2}{3} - C_0^2 \left(1 - \frac{C_0}{3}\right)\right]} \quad (\text{eq. 56})$$

En prenant en compte la longueur totale de fibre et le taux de recouvrement des particules primaires, l'expression de la perte de charge est telle que :

$$\Delta P = \frac{64(1 - \varepsilon)^{0.5}(1 + 56(1 - \varepsilon)^3)}{Cud_p^2 \rho_p} F_c \mu m_g U_f \quad (\text{eq. 57})$$

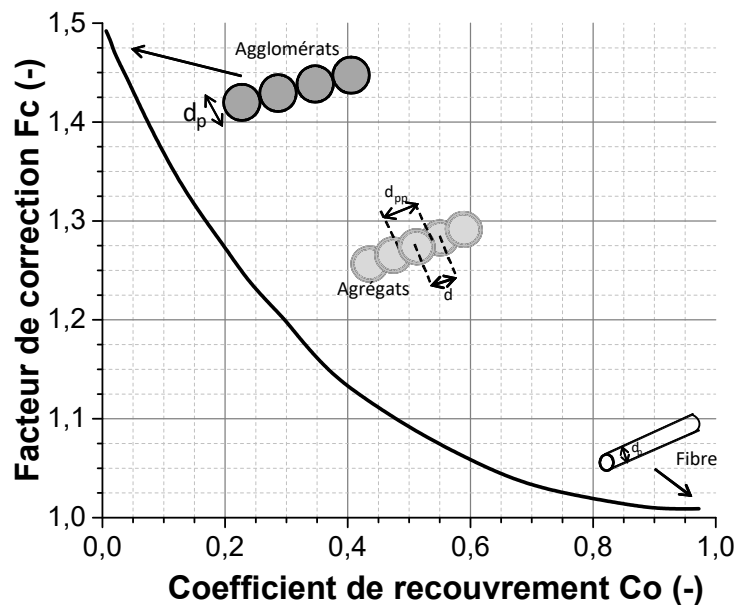


Figure 15 : Évolution du facteur de correction  $F_c$  en fonction du coefficient de recouvrement  $C_0$

Le modèle de Thomas *et al.* (2014) rend compte de la réalité des particules rencontrées au cours d'un incendie, dans le cas des particules pseudo fractales.

### 3.1.3. Comparaison des modèles

Le Tableau 4 ci-dessous reprend l'évolution des grands modèles de perte de charge. Nous avons fait le choix de retenir les modèles les plus appropriés à notre étude consacrée à la filtration en surface. De ce fait, nous avons pu restreindre le nombre de modèles.

| Expression de la perte de charge $\Delta P$   | Domaine d'utilisation | Références                |
|---|-----------------------|---------------------------|
| $\Delta P = \frac{h_k a_p^2 \alpha \mu}{(1 - \alpha)^3 \rho_p C u} U_f \frac{m_g}{S_f}$   | Particules isolées    | Novick <i>et al.</i> 1991 |
| $\Delta P_g = 18\mu U_0 \frac{m_g}{\rho S_f d_{vg}^2} \frac{X}{\exp(4 \ln^2 \sigma_g)} \frac{v(\varepsilon)}{\varepsilon^2}$  | Agrégats              | Endo <i>et al.</i> 2002   |
| $\Delta P = \frac{64(1 - \varepsilon)^{\frac{1}{2}}(1 + 56(1 - \varepsilon)^3)}{C u d_p^2 \rho_p} \frac{(1 - Co)}{\left[\frac{2}{3} - Co^2 \left(1 - \frac{Co}{3}\right)\right]} \mu m_g U_f$ | Agglomérats           | Thomas <i>et al.</i> 2014 |

Tableau 4 : Récapitulatif des modèles de perte de charge pour de la filtration en surface

Pour des particules fines, le paramètre le plus sensible de ces différents modèles de perte de charge (filtre plan) est la porosité comme le montre la Figure 16. Tout ceci nous amène à nous poser les questions suivantes : quelles sont les variables desquelles dépendent principalement la porosité des dépôts d'agrégats ? Dans quelle mesure ces variables affectent elles l'accumulation des particules lors de la formation du dépôt ? Dans cette partie, nous ferons le bilan des changements de réponse des porosités dans la littérature scientifique.

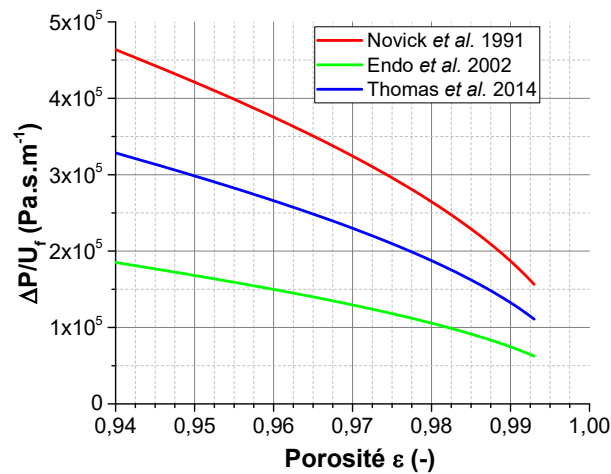


Figure 16 : Évolution de la perte de charge en fonction de la porosité du dépôt  $\varepsilon$

### 3.1.4. Réduction de surface

Pour les filtres plissés, une phase de réduction de surface est identifiée dans les conditions extrêmes d'utilisation ou accidentelle comme l'incendie dans les installations confinées, notamment pour des filtres THE, le premier niveau de filtration. À cause de la géométrie du pli (Figure 17), les aérosols s'accumulent dans certaines zones préférentielles, créant des ponts de particules dans le pli engendrant une diminution drastique de la surface de filtration disponible.

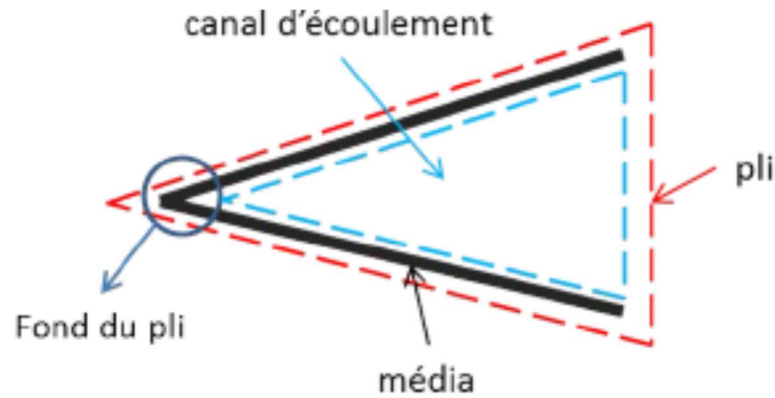


Figure 17 : Schéma représentatif du pli (Alilou 2018)

- Modèle empirique

Le plissage entraîne une perte de charge supplémentaire. Mocho et Ouf (2011) ont travaillé sur le colmatage de media plissés THE utilisés dans le milieu nucléaire par des aérosols issus de la combustion de divers polymères. Ils montrent alors une influence de la vitesse de filtration sur la résistance aéraulique pendant la phase de filtration en surface comme le montre la Figure 18. Elle présente l'évolution du rapport  $R/R_0$  en fonction de la masse déposée sur le filtre à différentes vitesses de filtration, avec  $R_0$  la résistance aéraulique du filtre vierge. Plus la vitesse est faible, plus la résistance aéraulique croît de manière importante en fonction de la masse déposée.

Ils ont relié différents paramètres avec la perte de charge, notamment les propriétés du gâteau de suie :

$$\frac{R}{R_0} = 1 + i(1 - TC) \cdot \frac{m_s}{d_p} + j \left( (1 - TC) \cdot \frac{m_s}{U_f \cdot d_p} \right)^2 \quad (\text{eq. 58})$$

Avec  $R_0$  et  $R$  les résistances aérauliques du filtre vierge et du filtre en cours de colmatage exprimé en  $\text{m}^{-3}$ ,  $TC$  le taux de condensats des aérosols déposés sur le filtre,  $d_p$  la dimension caractéristique des aérosols déposés,  $U_f$  la vitesse de filtration,  $m_s$  la masse surfacique déposée,  $i$  et  $j$  les constantes du modèle. Le diamètre caractéristique à prendre en compte est soit le diamètre des particules primaires dans le cas de suies de type « fractal », soit le diamètre équivalent en volume lorsque les particules de suie sont entourées d'une gangue liquide.

Cette relation permet de reproduire de manière acceptable les résultats expérimentaux comme le montre la Figure 18 en maintenant constants les paramètres empiriques  $i$  et  $j$ . Elle permet de prédire la perte de charge occasionnée par le gâteau de suie pour des vitesses de filtration constantes sur des filtres THE. De par son caractère empirique, elle ne permet pas d'apporter de conclusion. De plus, elle est limitée au vu de son domaine d'étude.



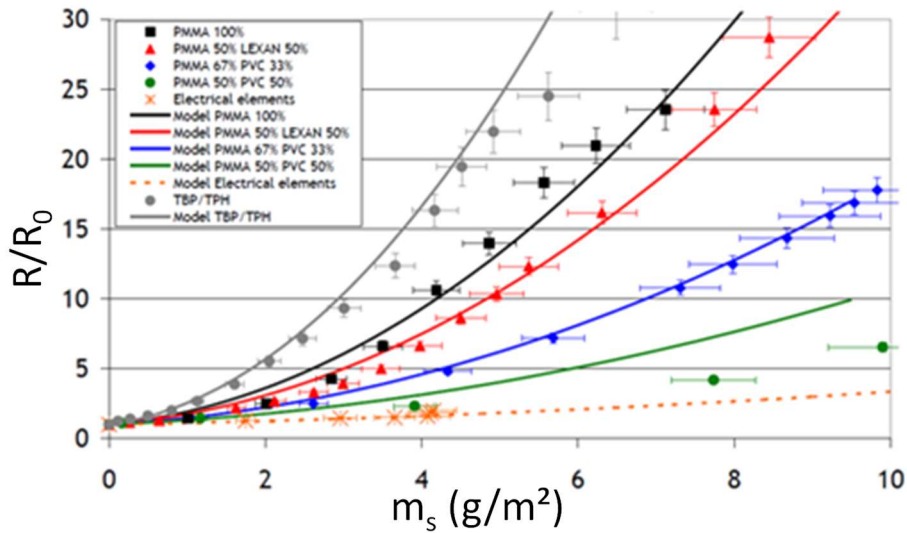


Figure 18 : Comparaison entre la corrélation empirique et les données expérimentales de colmatage pour des particules produites lors d'un essai d'incendie (Ouf et Mocho 2014)

- Modèle phénoménologique

Del Fabbro (Del Fabbro, 2001, 2002) a établi un modèle de colmatage en considérant une répartition homogène des particules sur la surface de filtration disponible et en prenant en compte la réduction de surface due au pli.

Le taux de réduction de surface  $T_{X_{surf}}$  a été établi. Cette grandeur apparaît dans l'expression finale de la perte de charge pour un filtre plissé :

$$\Delta P_{pli} = T_{X_{surf}}(\Delta P_0 + \Delta P_g) \tag{eq. 59}$$

$$T_{X_{surf}} = \frac{\sqrt{(p^2 + h^2)}}{\sqrt{(p - 2 \cdot e_g)^2 + \left( h \left( \frac{2 \cdot m_{pli}}{S_f \cdot p \cdot \rho_p \cdot \alpha} \right) \right)^2}} \tag{eq. 60}$$

Les paramètres intervenant dans le taux de réduction de surface sont le pas initial du pli  $p$ , l'épaisseur du dépôt  $e_g$ , la profondeur initiale du pli  $h$ , la masse accumulée dans le pli  $m_{pli}$ , la surface initiale du média dans le pli  $S_f$ , la masse volumique des particules  $\rho_p$  et la compacité du gâteau  $\alpha$ .

Les effets liés à l'inertie des particules sont favorisés avec l'augmentation de la vitesse de filtration comme schématisé en Figure 19. Ainsi, un dépôt préférentiel se forme, impliquant un dépôt hétérogène et donc une perte de charge moindre. Ceci est en contradiction avec l'une des hypothèses du modèle.

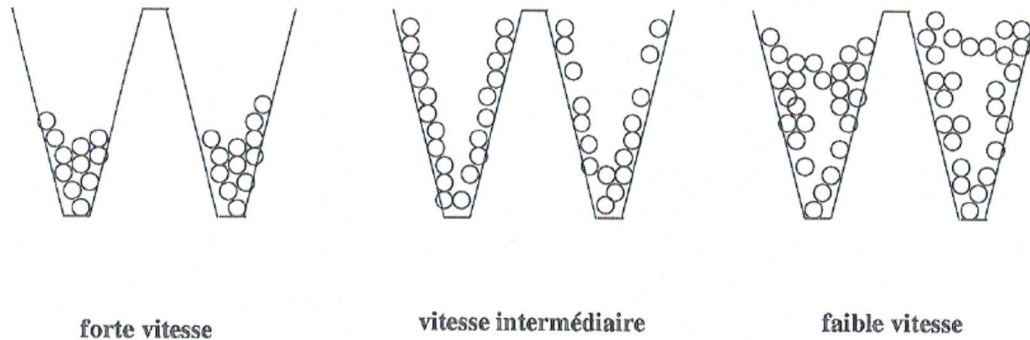


Figure 19 : Trois configurations du dépôt de particules dans un filtre THE selon la vitesse de filtration (Del Fabbro 2001)

Ainsi, l'évolution de la perte de charge d'un filtre plissé n'est pas linéaire en fonction de la vitesse de filtration. Hettkamp *et al.* (2012) montrent l'influence des paramètres géométriques et cinétiques sur les performances des filtres plissés. Leur étude basée sur de la tomographie aboutit à une simulation numérique qui prédit le comportement d'une surface plissée, en forme de U ou V, soumise à une collecte de particules. De ces travaux, est déduite la modélisation simplifiée suivante :

Forme en U :

$$\frac{\Delta P}{U_f} = \frac{1}{k} \frac{\mu}{\left(1 + \frac{2h}{p}\right)^2 \rho_p (1 - \varepsilon)} \frac{m_s}{S_f} \quad (\text{eq. 61})$$

où h et p sont respectivement la hauteur et la pas de pli, k la perméabilité du gâteau.

Ce modèle suppose que le gâteau de particules croît uniformément à la surface du média. Si l'agencement des particules est plus homogène pour les faibles vitesses, l'expérience montre que cette hypothèse n'est pas vérifiée pour des vitesses importantes.

Une tentative d'amélioration de ce modèle, en faisant intervenir l'efficacité de collecte dans un pli et un terme de réentraînement des dépôts, n'a pas pu aboutir à un modèle phénoménologique plus développé, de par la complexité du phénomène d'obturation des plis et du manque de données expérimentales disponibles. Bourrous (2014) a néanmoins mis en évidence les perspectives d'amélioration à travers l'identification de certains phénomènes et paramètres qu'il serait judicieux d'étudier à l'échelle analytique sont la forme des singularités, la cohésion des dépôts formés dans les plis, le coefficient de force de traînée de la particule, le champ de vitesse en tous points de l'intérieur d'un pli, l'efficacité de collecte du pli.

Ces travaux reflètent particulièrement la complexité du modèle de colmatage des filtres THE par des particules nanométriques ainsi que la variété des paramètres jouant un rôle dans la perte de charge de ces filtres. La perte de charge semble être influencée par un dépôt de particules non homogène à la surface du filtre. Bourrous (2014) montre l'apparition de ponts de particules à l'entrée du pli. Ces ponts vont entraîner une diminution de la surface de filtration disponible comme le montre la Figure 20.

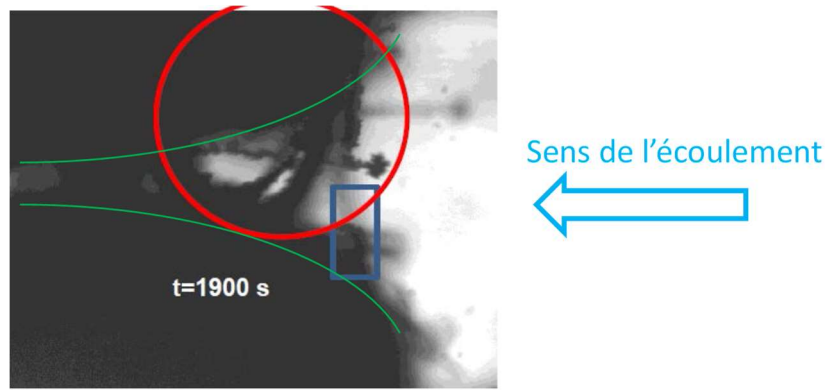


Figure 20 : Image à l'entrée du pli lors d'un colmatage à une vitesse de filtration de 0,25 cm/s (Bourrous 2014)

Le Tableau 5 regroupe les paramètres présents dans les modèles de colmatage existants.

| Modèle                    | Paramètres   |
|---------------------------|--|
| Modèles empiriques        | Diamètre des particules primaires $d_{pp}$ (ou diamètre équivalent en volume $d_{ev}$ dans le cas de présence d'une gangue liquide autour de la particule de suie) |
|                           | Masse surfacique de suies déposées $m_g$   |
|                           | Masse volumique  |
|                           | Vitesse de filtration  |
|                           | Porosité macroscopique   |
| Modèles phénoménologiques | Diamètre des particules primaires $d_{pp}$   |
|                           | Diamètre de mobilité électrique des suies $d_m$ pilotant la porosité du gâteau (et donc la compacité) via le nombre de Péclet                                      |
|                           | Masse surfacique de suies déposées $m_s$   |
|                           | Compacité du gâteau $\alpha$   |
|                           | Masse volumique des particules   |
|                           | Libre parcours moyen   |
|                           | Taux de recouvrement des particules primaires $Co$   |

Tableau 5 : Paramètres pertinents dans l'étude de l'évolution de la porosité d'un dépôt de nanoparticules

## 4. POROSITE DU DEPOT

À partir des corrélations de perte de charge des différents modèles présentés précédemment, on se consacre à la porosité du dépôt et aux paramètres qui peuvent l'influencer. L'influence globale de la porosité sur la perte de charge a été étudiée à travers la Figure 16. Le diamètre des particules a été fixé à 100 nm, la vitesse de filtration à 1 cm.s<sup>-1</sup>. Une comparaison entre les modèles n'est pas possible car leur domaine d'utilisation est différent (particule sphérique / agglomérat / agrégat).

Elmoe *et al.* (2009) ont étudié l'accumulation de particules et la construction du dépôt pendant la filtration de gaz compressibles chargés de nanoparticules (diamètre  $d_p = 50$  nm) à travers des capillaires pour des nombres de Péclet variant de 0,01 à 10, en faisant varier la vitesse entre  $x$  et  $y$ . Ils mettent également en avant l'influence de l'épaisseur du dépôt sur la compacité, comme illustré en Figure 21. Entre une épaisseur de 750 et 1250  $\mu\text{m}$ , le gâteau est moins soumis à cet effet de tassement.

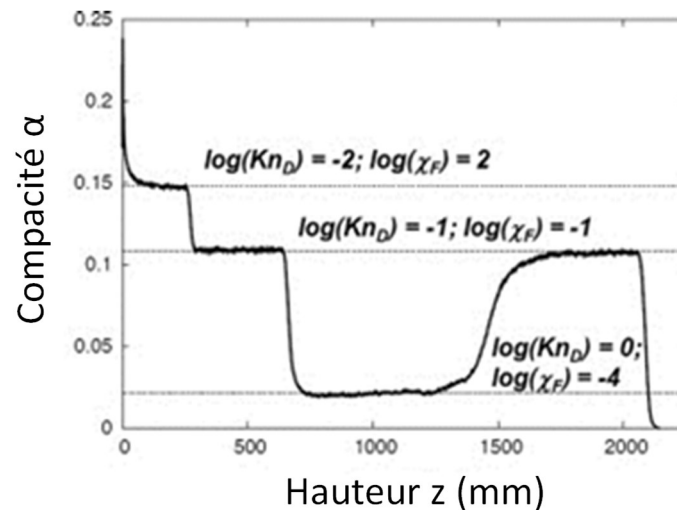


Figure 21 : Variation de la compacité en fonction de l'épaisseur du dépôt pour différentes conditions (Elmoe *et al.* 2009)

À faible Péclet, illustré par la Figure 22, des dépôts hautement poreux (98%) sont formés tandis qu'à  $Pe$  plus élevé, la porosité est légèrement plus faible, avec l'apparition de cônes vides en amont du capillaire. Trois régimes de dépôt distincts ont été identifiés : dépôt capillaire, colmatage et croissance des gâteaux. Au moment du colmatage, un gâteau avec une fraction volumique solide constante commence à se former, accompagné d'une élévation proportionnelle de la perte de charge, ce qui est en accord avec la théorie classique de la filtration.

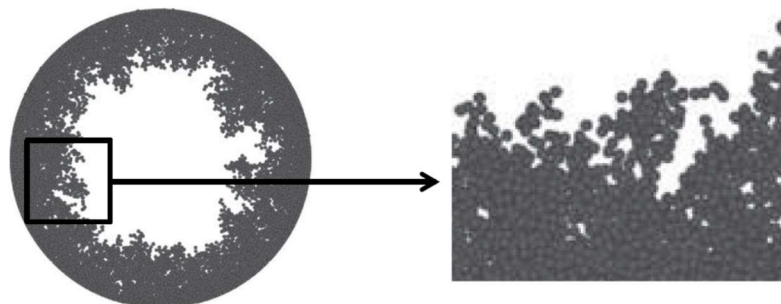


Figure 22 : Structure du dépôt formé pour un nombre de Péclet faible (Elmo *et al.* 2009)

Concernant la cinétique de colmatage, Elmoe *et al.* (2009) ont mis en évidence un dépôt en trois phases menant à une obstruction complète du capillaire et à la formation d'un gâteau de particules. La première phase est caractérisée par un dépôt uniforme ne se faisant qu'à l'intérieur du capillaire sous l'effet de la diffusion brownienne. Dans un deuxième temps, un dépôt mixte se forme, dans le capillaire et à son entrée, menant graduellement à son obstruction sous la forme d'un cône s'élevant à l'extérieur du capillaire. La formation de ce cône est expliquée par un dépôt se faisant simultanément au-dessus des couches déjà présentes notamment par diffusion et au centre de la zone libre du capillaire par un mécanisme d'interception interparticulaire. La Figure 23 montre la

structure des dépôts au moment du colmatage. Le dépôt a principalement lieu à l'extérieur du capillaire et le développement de la structure forme un cône de vide où le volume solide augmente avec le nombre de Péclet. Cette zone de vide n'est pas prise en compte dans le calcul de la porosité du dépôt. Cette dernière diminue significativement avec l'augmentation du nombre de Péclet, passant de 98,5 % pour un Péclet de 0,01 à 86% pour un Péclet proche de 10. En effet, le régime balistique va influencer la taille des pores et va notamment faire varier la porosité du dépôt. Elmoe *et al.* montrent que la largeur limite de ce cône de vide est de  $2R_0$  :

$$e_g = 2R_0 \quad (\text{eq. 62})$$

Où  $e_g$  représente l'épaisseur du gâteau et  $R_0$  le rayon d'une sphère

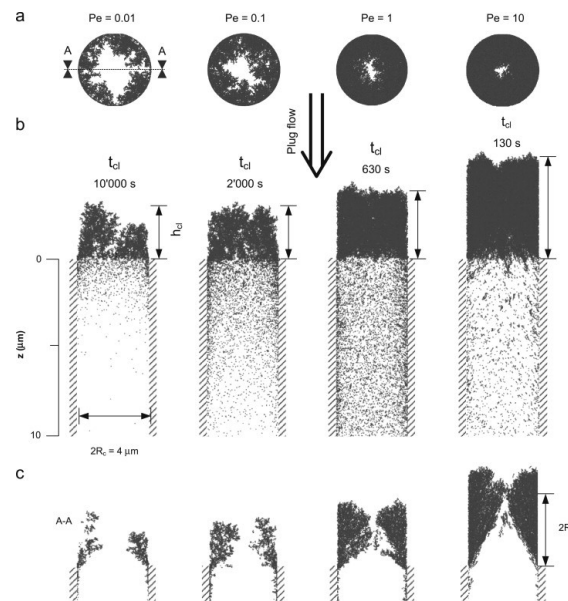


Figure 23 : Structure du dépôt formé par filtration composée de nanoparticules de 50 nm (Elmo *et al.* 2009)

Ainsi au cours de la filtration, l'obstruction de la section de passage conduit à une augmentation du nombre de Péclet.

Les différences découlent de différentes méthodes d'intégration, comme Rodríguez-Pérez *et al.* (2004) qui ont utilisé la méthode Monte Carlo pour simuler la croissance de dépôts de particules par advection et diffusion sur une surface plane comme le montre la Figure 24.



Figure 24 : Croissance d'un dépôt de suie pour un Péclet de 0,1 à gauche contre un Péclet de 100 à droite pour une même masse de gâteau déposée (Rodríguez-Pérez *et al.* 2004)

L'analyse des données de simulation a permis aux auteurs d'observer une diminution significative de la porosité du dépôt qui semble qualitativement cohérente avec d'autres résultats de la littérature (Thomas *et al.*, 2014). D'un point de vue plus critique, il semble légitime de se demander si la croissance du dépôt durant la seconde phase peut réellement être attribuée à un mécanisme d'interception. En effet, si le terme d'interception fait référence à des particules suivant les lignes de courant passant à une distance du collecteur inférieure à leur rayon, on peut également supposer que la collecte des particules durant cette phase s'effectue toujours par diffusion mais en étant favorisée par l'irrégularité et la grande surface spécifique du dépôt déjà présent qui augmenteraient la probabilité de collecte. Une expression de la hauteur du cône de vide a été exprimée qui est de l'ordre du diamètre du capillaire pour un Péclet proche de 10. Le phénomène de cône de vide à l'intérieur d'un gâteau de nanoparticules met en évidence une porosité interne dans le dépôt qui n'est pas pris en compte à l'heure actuelle.

#### 4.1. Porosité d'un dépôt de particules sphériques

L'évaluation de la porosité peut être déterminée en utilisant des mesures directes ou indirectes. En mesurant, par exemple, l'épaisseur et la masse du gâteau. L'épaisseur peut être mesurée en observant une tranche du milieu au moyen d'un MEB ou par topomicroscopie (Callé 2000 ; Joubert 2009 ; Penicot Baugé 1998 ; Schmidt & Löffler 1991) ou en utilisant la triangulation laser pendant le processus de filtration (Bourrous, 2014). La masse des particules collectées est égale à la différence de masse entre le filtre colmaté et le filtre vierge. Si le milieu est fortement colmaté ou si les particules ne pénètrent pas beaucoup, cette masse peut être comparée à la masse des particules collectées ( $m$ ) sur la surface du milieu ( $S$ ).

Ainsi, la compacité des particules déposées (gâteau) est

$$\alpha = \frac{m}{S_f \rho_p e} \quad (\text{eq. 63})$$

Cette approche peut être utilisée pour obtenir une compacité moyenne pour le dépôt, à condition qu'il s'agisse d'un dépôt homogène. Cependant, la valeur obtenue dépend fortement de l'incertitude de mesure de l'épaisseur du dépôt. Schmidt et Löffler (1991) ont proposé de résoudre le problème de l'incertitude en traitant de plus grandes épaisseurs afin de minimiser l'incertitude liée aux valeurs d'épaisseur.

##### 4.1.1. Résultats empiriques

La mesure indirecte consiste à se baser sur la modélisation d'une perte de charge linéaire. Cette méthode a été utilisée par Penicot Baugé (1998) avec le modèle de Kozeny-Carman. Elle est validée dans une gamme de compacité comprise entre 0,2 et 0,7. Appliquer cette méthode aux données expérimentales sur l'évolution des pertes de charge démontre une relation entre la compacité calculée et le diamètre des particules qui forment le dépôt. En conséquence, la compacité du gâteau est définie de la façon suivante :

$$\alpha = 0,58 \left[ 1 - \exp\left(-\frac{d_p}{0,53}\right) \right] \quad (\text{eq. 64})$$

Cette évolution est confirmée par Brock & Tarleton (1998) via la simulation de la formation d'un dépôt de particules et aussi par la simulation de Jeon & Jung (2004).

Hoffmann et Finkers en 1994 établissent une relation semi-empirique de la porosité :

$$\varepsilon(\rho, \mu, \sigma_g, X) = 1 - \{1 - [(1 - \varepsilon_0) \exp(n\rho\mu) + \varepsilon_0] \exp(o\sigma_g)\} X^q \quad (\text{eq. 65})$$

Avec  $X$  le facteur de forme,  $\sigma_g$  l'écart-type géométrique,  $n$ ,  $o$  et  $q$  des constantes.

Dans cette relation, quatre paramètres décrivent les propriétés des particules. À savoir, le diamètre médian en nombre, la distribution granulométrique, la densité et le facteur de forme pour un lit de particules. Les constantes sont optimisées à partir de données expérimentales et des caractéristiques des particules microniques que la littérature fournit ; ici  $\varepsilon_0 = 0,320$ ,  $n = -0,0371$ ,  $o = -1,72$  et  $q = 0,848$ .

Yu *et al.* (2003) proposent une relation empirique sur la base d'essais réalisés sur des poudres d'oxyde d'aluminium avec un diamètre médian en nombre allant de 2,8 à 54  $\mu\text{m}$  (Yu *et al.* 1997). La relation de Hoffman est reprise, seules les constantes varient :

$$\alpha = 0,606 [1 - \exp(-275d_p^{0,468})] \quad (\text{eq. 66})$$

Certaines approches se basent sur la simulation (Yu *et al.* (2003)), d'autres sur une mesure expérimentale de l'épaisseur et de la masse déposée sur une membrane. Dans la littérature, la porosité peut s'écrire pour des particules microniques sous la forme (Hoffman *et al.* (1995)) :

$$\varepsilon = \varepsilon_0 + (1 - \varepsilon_0) \exp(-Cu \rho_p d_p) \quad (\text{eq. 67})$$

Kasper *et al.* (2010) proposent une relation basée sur leur observation de particules sphériques monodispersées de polystyrène déposées sur des fibres d'acier avec un diamètre de 8 et 30  $\mu\text{m}$  :

$$\alpha = 0,64 [1 - \exp(-290\rho_p d_p)] \quad (\text{eq. 68})$$

Les porosités ont été déterminées pour toutes les tailles de particules et vitesses d'écoulement pour lesquelles il existait des données fiables. La procédure est basée sur deux mesures, à savoir le volume de particules déposé sur une section donnée de fibre (typiquement 200  $\mu\text{m}$ ) et le volume de l'enveloppe géométrique entourant la structure de dépôt. Le rapport des deux donne la compacité moyenne  $\alpha$  et la porosité moyenne. Les données sont représentées sur la Figure 25. Il est à noter que pour un diamètre de particule donné, il n'y a pas eu de différences systématiques pour  $\varepsilon$  entre les mesures effectuées à différentes vitesses d'écoulement. Bien qu'il soit difficile d'estimer les erreurs systématiques de la porosité, les points expérimentaux de chaque série sont relativement cohérents une fois les courbes stabilisées. Néanmoins, une gamme aussi large pour seulement cinq points expérimentaux met en avant des zones d'ombre. Un travail plus approfondi et moins vaste est nécessaire afin de valider l'ensemble de la courbe.

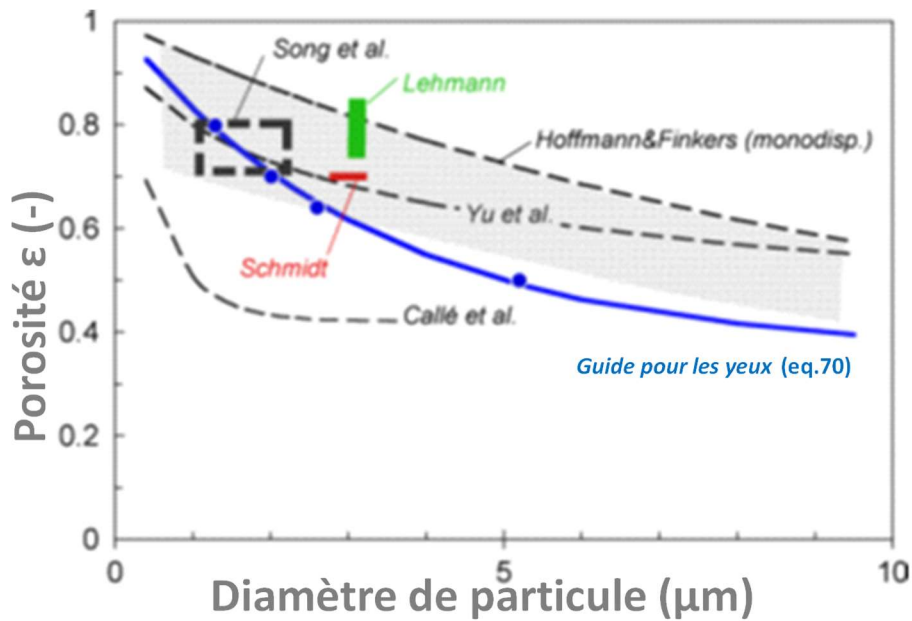


Figure 25 : Évolution de la porosité selon le diamètre des particules en comparant le modèle et la littérature (Kasper *et al.* 2010)

Le Tableau 6 reprend les données expérimentales issues de la littérature concernant les valeurs de porosité pour des particules microniques.

| Porosité $\epsilon$ (-) | Diamètre de particule $d_p$ ( $\mu\text{m}$ ) | Vitesse de filtration $U_f$ (cm/s) | Nombre de Péclet $Pe$ (-) | Masse volumique ( $\text{kg}/\text{m}^3$ ) | Références                  |
|-------------------------|---|------------------------------------|---------------------------|--|-----------------------------|
| 0,76                    | 1-2   | < 4                                | nd                        | nd   | Rudnick and First (1976)    |
| 0,7                     | 3,5   | nd                                 | nd                        | nd   | Schmidt (1993)              |
| 0,85                    | 6-10  | 0,03                               | nd                        | 2700                                       | Schmidt (1996)              |
| 0,83                    | 3,1   | 50                                 | $4,06 \cdot 10^8$         | 1050                                       | Lehman (2005)               |
| 0,76                    |   | 100                                | nd                        |  |                             |
| 0,8                     | 1,3   | 6                                  | $3,59 \cdot 10^6$         | 1050                                       | Kasper <i>et al.</i> (2010) |
| 0,70                    | 2,0   | 4,3                                | $9,38 \cdot 10^6$         |  |                             |
| 0,63                    | 2,6   | 4,3                                | $2,06 \cdot 10^7$         |  |                             |
| 0,55                    | 5,2   | 2,1                                | $8,05 \cdot 10^7$         |  |                             |

Tableau 6 : Valeurs de porosité avec les caractéristiques morphologique des particules correspondantes issues de la littérature (nd : non disponible)

**4.1.2. Simulations numériques**

- Filtre plan :

Kulkarni et Biswas (2003, 2004) ont étudié le dépôt en tenant compte de l'influence des interactions particule-particule et particule-surface, ainsi que du frittage lors d'un colmatage. Cependant, ces études ont été réalisées dans le domaine diffusionnel de sorte que les résultats obtenus ne s'appliquent que dans les cas où le nombre de Knudsen diffusif ( $Kn_D$ ) est suffisamment petit, avec  $Kn_D$  défini par :



$$Kn_D = \frac{(kTm_p)^{1/2}}{f r_p} \quad (\text{eq. 69})$$

Avec  $kT$  l'énergie thermique,  $m_p$  la masse de la particule,  $r_p$  le rayon de la particule et  $f$  le facteur de friction de la particule valant :

Pour  $Kn \ll 1$   $f = 3\pi\mu d_p$  (eq. 70)

Pour  $Kn \approx 1$  et  $Kn \gg 1$   $f = \frac{3\pi\mu d_p}{Cu(d_p)}$  (eq. 71)

Lindquist *et al.* 2014 ont étudié la formation de films particulaires via des simulations dynamiques de dépôts de particules monodispersées sur des substrats plats. Ils ont considéré l'inertie des particules, le mouvement thermique et une force d'advection constante dirigeant les particules vers le substrat, visible en Figure 26. Ces conditions imitent effectivement la formation de galettes de poussières lors de la filtration, ainsi que la production de films nanostructurés à la sortie des réacteurs de synthèse en phase gazeuse. Le paramétrage des équations de mouvement montre que le mouvement de chaque particule ne dépend que de  $Kn_D$  et  $\chi_F$  (le rapport de l'énergie de translation de la particule aux vitesses advectives à l'énergie thermique) :

$$\chi_F = \frac{m_p U_f^2}{kT} = (Pe Kn_D)^2 = \left(\frac{Stk}{Kn_D}\right)^2 \quad (\text{eq. 72})$$

Avec  $kT$  l'énergie thermique,  $m_p$  la masse de la particule et  $U_f$  la vitesse de filtration.

L'utilisation de ces rapports est avantageuse car un nombre sans dimension ( $Kn_D$ ) est indépendant de la vitesse d'advection, tandis que le second ( $\chi_F$ ) est indépendant de la pression du gaz. Ceci est en contraste avec les nombres de Péclet et Stokes traditionnellement employés, qui dépendent tous deux de la vitesse d'advection et de la pression du gaz. Les structures de film résultant des simulations sont quantifiées en termes de porosité et les résultats sont rapportés pour des simulations sur une large gamme de zones de dépôt en taille et avec plus de 106 particules déposées. Pour chaque dépôt simulé, trois régions distinctes sont observées : (I) une région proche du substrat (à moins de 50 rayons de particules primaires), dans laquelle la porosité commence au minimum et augmente jusqu'à une valeur constante ; (II) une région où cette porosité constante est maintenue (qui dépend de  $Kn_D$  et de  $\chi_F$  comme le montre Figure 26 dont la hauteur augmente constamment et englobe la majorité du film après un dépôt suffisant) ; (III) la région externe, dans laquelle le film continue de croître, et la porosité augmente de la valeur de la région II à l'unité, couvrant moins de 100 rayons de particules en hauteur dans la plupart des cas.

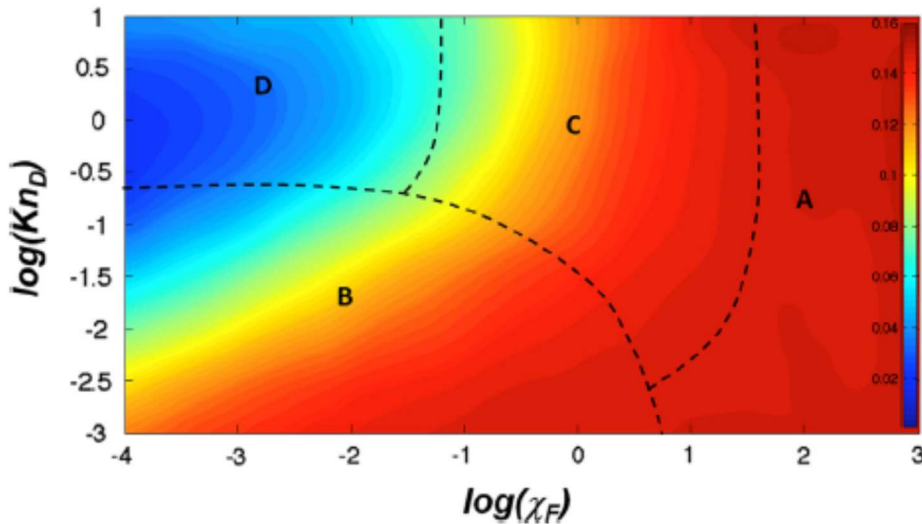


Figure 26 : Compacité de la région II en fonction de  $\log(Kn_D)$  et  $\log(\chi_F)$  ; Zone A = compacité proche du maximum théorique ; Zone B = nombre de Peclet dépendant de la compacité ; Zone C =  $\chi_F$  dépendant de la compacité et Zone D = région haute pour  $Kn_D$  et region basse pour  $\chi_F$

Une équation de régression est fournie pour prédire la porosité du film dans la seconde région. Les résultats rapportés ici peuvent tous deux servir de lignes directrices pour de futures études expérimentales sur le dépôt de films à base d'aérosols et la technique de simulation présentée peut être élargie aux particules polydispersées, aux forces interparticulaires, au frittage et/ou au dépôt de particules non sphériques. *Linquist et al. (2014)* suggère d'évaluer les propriétés des films particulaires à partir des paramètres  $Kn_D$  et  $\chi_F$ . Par son approche, il montre trois régions distinctes de porosité le long des films regroupées dans le Tableau 7.

| Expression de la porosité $\varepsilon$ (-)   | Domaine de validité   |
|---|---|
| $1 - [0,8987 - 0,024 \log_{10}(\chi_F) + 0,0087 \log_{10}(Kn_D) + 0,00062 \log_{10}^2(\chi_F) - 0,0024 \log_{10}(\chi_F) \log_{10}(Kn_D) + 0,0029 \log_{10}^2(Kn_D) + 0,00087 \log_{10}^3(\chi_F) - 0,00082 \log_{10}^2(\chi_F) \log_{10}(Kn_D) + 0,0021 \log_{10}(\chi_F) \log_{10}^2(Kn_D) - 0,0005 \log_{10}^3(Kn_D)]$   | $1,5 < \log_{10}(\chi_F) < 0,5$<br>$-1 < \log_{10}(Kn_D) < 1$ |
| $1 - [0,9701 - 0,0077 \log_{10}(\chi_F) + 0,00085 \log_{10}(Kn_D) - 0,0015 \log_{10}^2(\chi_F) + 0,0034 \log_{10}(\chi_F) \log_{10}(Kn_D) - 0,0066 \log_{10}^2(Kn_D) - 0,00016 \log_{10}^3(\chi_F) + 0,00037 \log_{10}^2(\chi_F) \log_{10}(Kn_D) - 0,00074 \log_{10}(\chi_F) \log_{10}^2(Kn_D) + 0,0006 \log_{10}^3(Kn_D)]$ | $-4 < \log_{10}(\chi_F) < -2$<br>$-1 < \log_{10}(Kn_D) < 1$   |
| $1 - [0,888 - 0,019 \log_{10}(\chi_F) + 0,024 \log_{10}(Kn_D) + 0,0017 \log_{10}^2(\chi_F) - 0,006 \log_{10}(\chi_F) \log_{10}(Kn_D) + 0,0027 \log_{10}^2(Kn_D) + 0,00049 \log_{10}^3(\chi_F) - 0,0001 \log_{10}^2(\chi_F) \log_{10}(Kn_D) + 0,0001 \log_{10}(\chi_F) \log_{10}^2(Kn_D) - 0,0007 \log_{10}^3(Kn_D)]$        | $-4 < \log_{10}(\chi_F) < -1$<br>$-3 < \log_{10}(Kn_D) < -1$  |

Tableau 7 : Corrélations de la porosité selon *Lindquist et al. (2014)*

Il est donc nécessaire de confirmer si la variation de porosité dans un même dépôt est significative ou non comme décrit par *Elmoe et al. (2002)*.

Pour les nanoparticules en phase gazeuse, le critère  $Kn_D$  n'est pas valable dans toutes les circonstances. *Madler et al. (2006)* ont tenté de modéliser les dépôts sans la restriction  $Kn_D$ .

Cependant, dans leurs travaux, les porosités et les épaisseurs de film prédites étaient à nouveau déterminées uniquement en fonction du nombre de Péclet comme le montre la Figure 27.

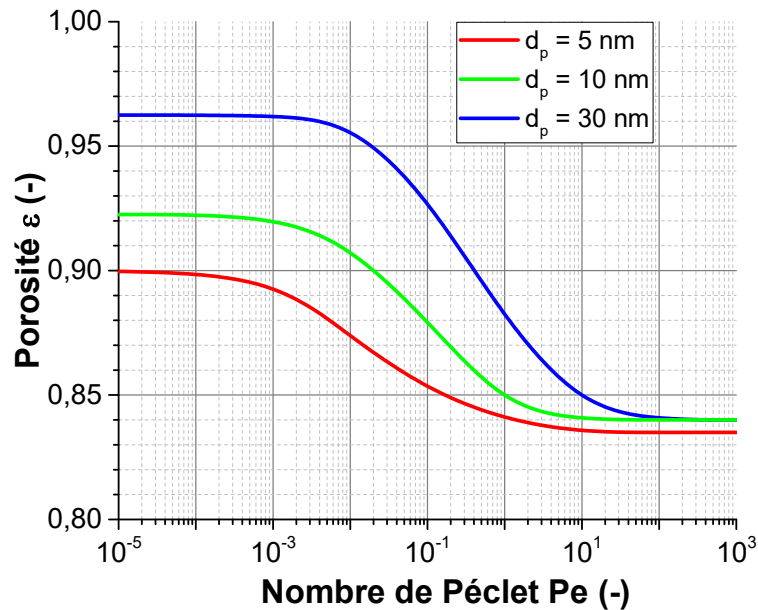


Figure 27 : évolution de la porosité pour des particules sphériques de différent diamètre en fonction du nombre de Péclet

- Filtre plissé

Récemment, Alilou (2018) a développé à un modèle phénoménologique de la perte de charge d'un filtre plissé. Il a porté une attention particulière aux écoulements à travers les plis du filtre et à leur impact sur la formation du dépôt au cours du colmatage. De son étude est ressorti un nouveau paramètre évolutif au cours du colmatage pour caractériser l'inhomogénéité de la formation du dépôt sur le media plissé : la « porosité macroscopique », qui rend compte de volumes vides de particules au sein du dépôt consécutifs à la formation de dendrites lors de l'écoulement de particules en surface du pli. En effet, il a mis en évidence des espaces vides au sein même du dépôt augmentant ainsi le volume apparent de ce dépôt. Ces vides offrent donc une réduction supplémentaire de la surface de filtration. Ces dendrites vont influencer le taux de perte de surface de filtration au cours du colmatage comme le montre la Figure 28 d'un pli colmaté et modélisé par Alilou (2018).

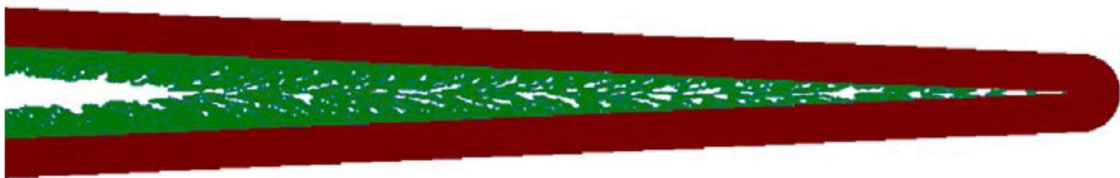


Figure 28 : Formation du dépôt à une vitesse de filtration de  $2,34 \text{ cm.s}^{-1}$  dont la masse déposée est de  $204 \text{ g.m}^{-2}$  (Alilou 2018)

Alilou (2018) exprime la porosité macroscopique de la manière suivante et schématisé en Figure 29 :

$$\delta = \frac{\omega_a}{\omega_a + \omega_p} \quad (\text{eq. 73})$$

Avec  $\omega_a$  l'espace vide contenu dans le dépôt et  $(\omega_a + \omega_p)$  le volume total du dépôt.

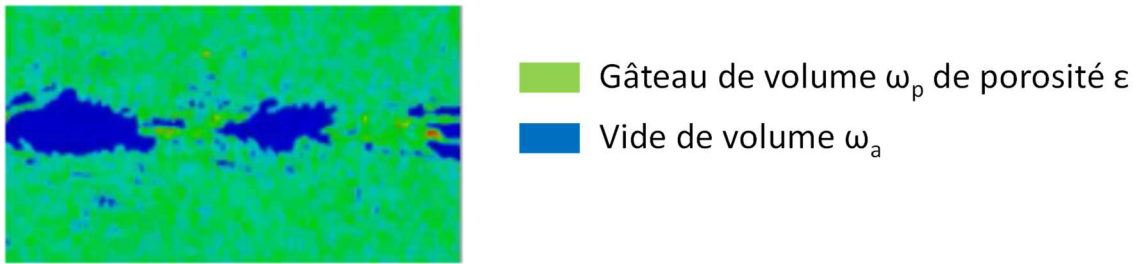


Figure 29 : Schéma d'un dépôt de particules monodispersées (Alilou 2018)

Son modèle de colmatage nécessite deux données d'entrée indispensables à savoir la porosité du dépôt  $\varepsilon$  et la porosité macroscopique  $\delta$  auquel il est fortement sensible et qui ne fait, à ce jour, l'objet d'aucune corrélation. Il est à souligner que, pour tenir compte de la présence d'espaces vides observée expérimentalement dans le gâteau de particules, chaque couche élémentaire du gâteau définie par Alilou est dissociée en deux sous-couches comme imaginé en Figure 30 : la première est une sous-couche correspondant à l'accumulation de particules entre les instants  $t_{i-1}$  et  $t_i$ , dont l'épaisseur est notée  $e_{g,i}$  et la porosité,  $\varepsilon_{g,i}$ ; la seconde est une sous couche de vide d'épaisseur  $e_{v,i}$ .

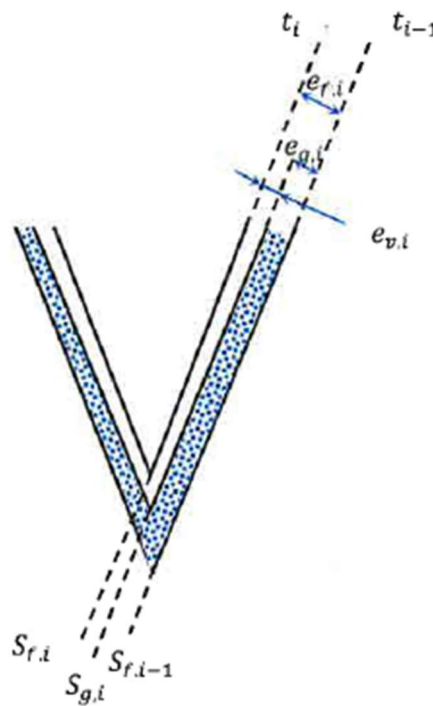


Figure 30 : Définition des couches élémentaires de colmatage dans le modèle d'Alilou

$$e_{f,i} = e_{g,i} + e_{v,i} \quad (\text{eq. 74})$$

$$S_{f,i} = \frac{\delta}{1 - \delta} S_{g,i} \quad (\text{eq. 75})$$

Où  $\delta$  est la porosité macroscopique,  $S_{f,i}$  et  $S_{g,i}$ , sont respectivement, à l'instant  $t_i$ , la surface de filtration et la surface de la sous-couche correspondant à l'accumulation de particules entre les instants  $t_{i-1}$  et  $t_i$ .

Il est important de noter que la couche de vide ne joue aucun rôle dans l'estimation de la perte de charge induite par la traversée d'une couche élémentaire,  $\Delta P_{g,i}$ , mais elle permet de prendre en compte la présence d'espaces libres lors du processus de remplissage des plis par les particules dans la réduction de la surface de filtration.

## 4.2. Porosité d'un dépôt d'agrégats de nanoparticules

Cette porosité, qui est une donnée fondamentale, reste encore à ce jour prédite par une approche purement empirique. D'une part, l'importance du transport des particules conditionné par le régime d'écoulement va influencer la trajectoire de la particule, d'autre part l'importance se porte sur la morphologie même des particules dont l'influence n'est pour l'heure pas démontrée expérimentalement.

### 4.2.1. Résultats empiriques

L'étude de Thomas *et al.* (2014), dont l'un des objectifs était d'évaluer la porosité d'un gâteau d'agrégats de nanoparticules, a montré que la porosité du gâteau est déterminée par le diamètre des agrégats alors que la perte de charge est reliée aux diamètres des particules primaires et au coefficient de recouvrement. Finalement, une relation empirique de la porosité a été proposée en fonction du nombre de Péclet aboutissant à la Figure 31 :

$$\varepsilon = \frac{(1 + 0,44Pe)}{(1,019 + 0,46Pe)} \quad (\text{eq. 76})$$

Une telle approche s'avère limitée par la morphologie des objets considérés. En effet, il est à suspecter qu'une telle corrélation empirique, ayant été développée pour des agrégats de morphologie proche, ne pourra être étendue à des agrégats de morphologie plus linéaire ou plus compacte. L'intégration de la morphologie dans un modèle décrivant la porosité des agrégats reste donc une lacune des travaux actuels.

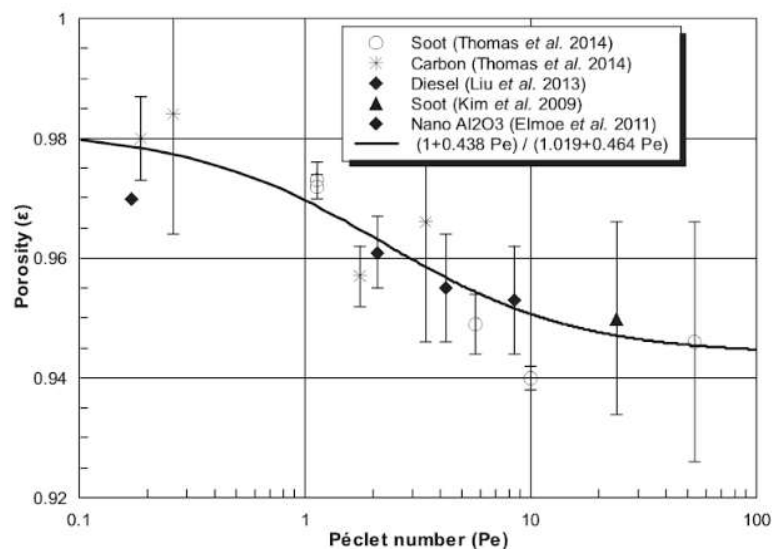


Figure 31 : Évolution de la porosité du dépôt en fonction du nombre de Péclet (Thomas *et al.* (2014))

Le Tableau 8 reprend l'ensemble des valeurs de porosité issues de la littérature pour des agrégats de particules nanostructurées. Il est évident que la morphologie de la particule étudiée va impacter la porosité mesurée. Il est donc nécessaire de faire varier un paramètre à la fois afin d'obtenir des

corrélations entre la porosité et un paramètre spécifique de l'agrégat (diamètre de particules primaires, nombre de particules primaires...).

| Porosité ε (-) | d <sub>m</sub> (nm) | d <sub>pp</sub> (nm) | N <sub>pp</sub> (-) | D <sub>f</sub> (-) | ρ (kg.m <sup>-3</sup> ) | U <sub>f</sub> (cm.s <sup>-1</sup> ) | Pe (-) | Références                  |
|----------------|---------------------|----------------------|---------------------|--------------------|-------------------------|--------------------------------------|--------|-----------------------------|
| 0,7-0,8        | 2 000               | 200                  | nd                  | nd                 | 2 650                   | 9,87                                 | 15 452 | Endo <i>et al.</i> (1998)   |
| 0,886          | 1 200               | nd                   | nd                  | nd                 | 2 310                   | 3                                    | 1 614  | Choi <i>et al.</i> (2004)   |
|                | 2 200               |                      |                     |                    | 5 720                   |                                      |        |                             |
|                | 3 600               |                      |                     |                    | 15 719                  |                                      |        |                             |
| 0,949          | 120                 | 28                   | 190                 | 1,9                | 1 770                   | 10                                   | 24,24  | Kim <i>et al.</i> (2009)    |
| 0,97           | 30,5                | 4,1                  | 91                  | 1,8                | nd                      | 1,93                                 | 0,17   | Elmoe <i>et al.</i> (2011)  |
| 0,961          | 63,8                | 44,9                 | nd                  | nd                 | 1 770                   | 5                                    | 1,48   | Liu <i>et al.</i> (2013)    |
| 0,955          |                     |                      |                     |                    |                         | 10                                   | 2,95   |                             |
| 0,953          |                     |                      |                     |                    |                         | 20                                   | 5,9    |                             |
| 0,98           | 48                  | 7                    | nd                  | 1,8                | 2 000                   | 1                                    | 0,2    | Thomas <i>et al.</i> (2014) |
| 0,984          | 54                  |                      |                     |                    |                         |                                      | 0,3    |                             |
| 0,957          | 49                  |                      |                     |                    |                         | 9                                    | 1,8    |                             |
| 0,966          | 62                  |                      |                     |                    |                         |                                      | 3,4    |                             |
| 0,973          | 91                  | 24                   | nd                  | 1,7                | 1 745                   | 1                                    | 1,1    |                             |
| 0,95           |                     |                      |                     |                    |                         | 5                                    | 5,7    |                             |
| 0,94           |                     |                      |                     |                    |                         | 9                                    | 10     |                             |
| 0,946          | 170                 |                      |                     |                    |                         | 9                                    | 52,9   |                             |

Tableau 8 : Données des porosités mesurées selon les caractéristiques de l'agrégat issues de la littérature provenant d'aérosol de carbone, de diesel ou de suie (nd : non disponible)

A travers ce tableau, on voit que toutes les grandeurs d'influence que l'on peut supposer pour un dépôt d'agrégats ne sont pas nécessairement connues. Il reste donc une zone d'ombre au niveau de l'influence des paramètres constituant un agrégat.

#### 4.2.2. Simulations numériques

En 2002, Konstandopoulos *et al.* ont étudié le processus de croissance du gâteau sur un filtre céramique en nid d'abeilles. Ils ont mis en évidence que la porosité du dépôt reste constante pour des nombres de Péclet supérieurs à 1 et limités à 30. Pour des faibles valeurs de Péclet (< 1), la porosité varie entre 98 et 93% car, à ce niveau, la diffusion domine et le gâteau est moins compact. La porosité suit selon eux une loi puissance semblable à la relation de Hoffmann :

$$\epsilon = APe^{-B} + C \tag{eq. 77}$$

A, B et C sont des constantes.

L'approche numérique de Mädler *et al.* (2006) quant à elle montre l'influence de la morphologie des particules sur la porosité visible en Figures 32, 33 et 34. La porosité augmente quand N<sub>pp</sub> augmente et diminue quand D<sub>f</sub> augmente. La porosité calculée du film était de 0,989 pour les agglomérats de

vingt particules primaires ( $d_{pp} = 10 \text{ nm}$ ) et une dimension fractale de 1,8. Cette valeur était en accord avec les observations expérimentales de films de nanoparticules de  $\text{SnO}_2$  formés par des agglomérats similaires (Mädler et al 2006). Les porosités calculées rapportées dans la littérature étaient basées sur le dépôt de particules sphériques simples et étaient significativement inférieures aux valeurs expérimentales

Pour les nombres de Péclet inférieurs à  $10^{-2}$ , le dépôt est contrôlé par la diffusion. Pour les nombres de Péclet supérieurs à 10, les effets balistiques sont dominants et permettent à l'agglomérat de pénétrer dans la structure qui est alors plus dense. La tendance observable est une répartition en « S inversé ». La zone de transition se situe dans les trois cas pour une valeur de Péclet proche de 1, zone transitive entre le transport diffusif et convectif. On remarque également deux plateaux bien distincts pour un Péclet  $< 1$  et pour un Péclet  $> 1$ . Au vu des résultats, le nombre adimensionnel qu'est le nombre de Péclet semble être un critère cohérent pour étudier l'évolution de la porosité.

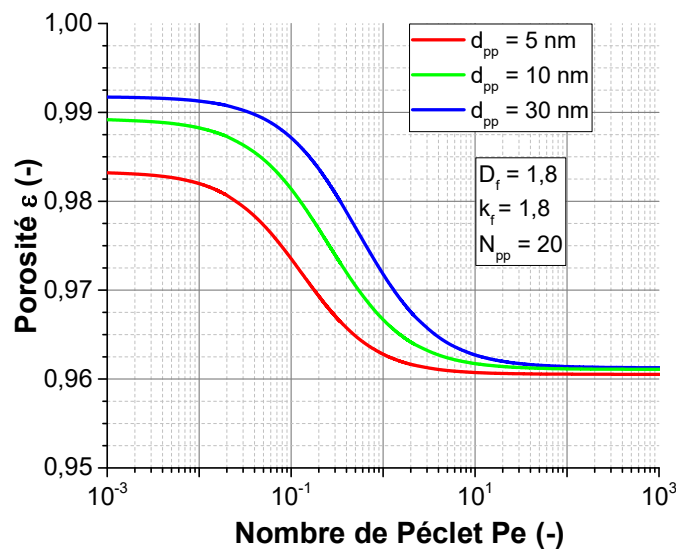


Figure 32 : Évolution de la porosité d'un dépôt pour différents diamètres de particules primaires en fonction du nombre de Péclet (d'après Mädler et al. (2006))

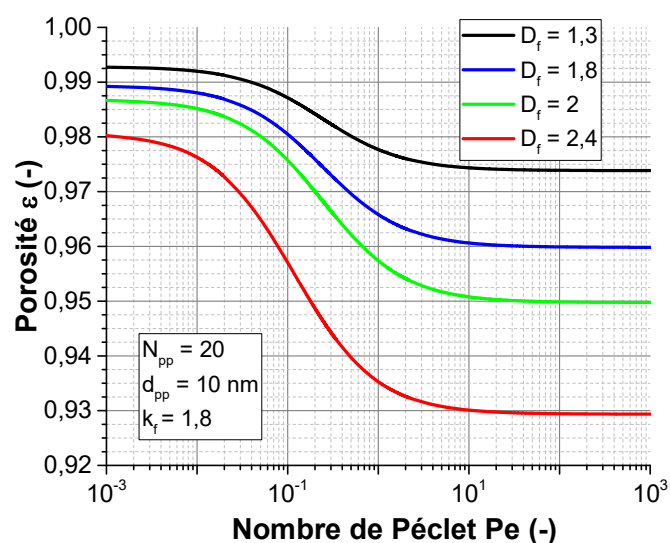


Figure 33 : Évolution de la porosité d'un dépôt pour différentes dimensions fractales en fonction du nombre de Péclet (d'après Mädler et al. (2006))

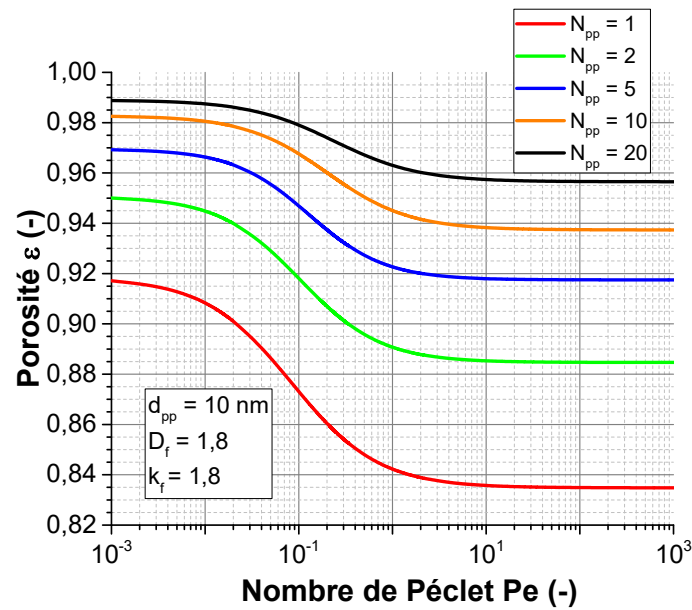


Figure 34 : Évolution de la porosité d'un dépôt pour différents nombres de particules primaires en fonction du nombre de Péclet (d'après Mädler et al. (2006))

Leur étude est en désaccord avec la corrélation proposée par Thomas *et al.* (2014) car une dépendance des propriétés morphologiques est mise en avant. La limite de l'étude de Konstandopoulos *et al.* est que seule la vitesse de filtration a été le paramètre changeant dans le calcul du nombre de Péclet. De plus, leur étude s'est arrêtée à des valeurs de Péclet proches de 3. Par conséquent, la corrélation de Thomas semble plus pertinente car elle fait le lien avec de précédentes études, les points expérimentaux ont été obtenus pour des tailles de particules et des vitesses différentes et la gamme balayée est plus grande, comme le montre la Figure 31. Un autre constat à soulever est l'incertitude associée aux points expérimentaux.

### 4.3. Notion de porosité inter et intra agrégat

Les particules nanostructurées, c'est-à-dire les agglomérats et les agrégats de nanoparticules, présentent une porosité interne. Par filtration, les particules nanostructurées forment un dépôt où la porosité  $\varepsilon_d$  dépend de la porosité intra  $\varepsilon_{intra}$  et inter  $\varepsilon_{inter}$ . La structure des agglomérats est schématisée en Figure 35 .

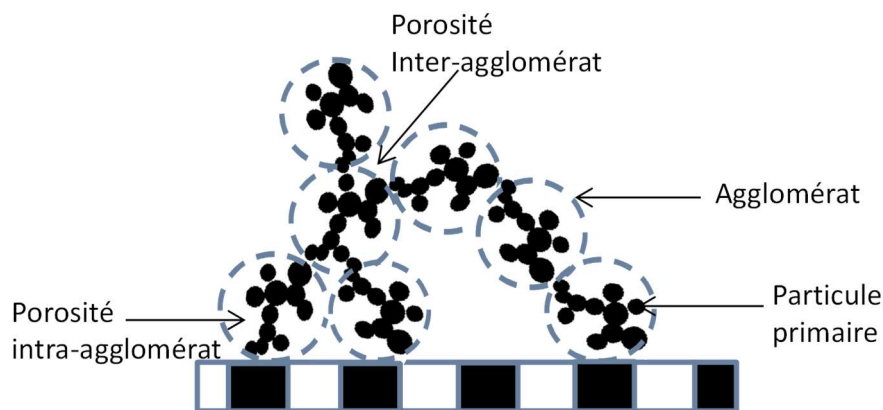


Figure 35 : Schéma d'un dépôt d'agglomérats



Le volume de solide constituant le gâteau s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{\text{Volume solide}}{\text{Volume total}} &= \frac{\text{Volume des particules primaires}}{\text{Volume total}} \\ &= \left( \frac{\text{Volume particules primaires}}{\text{Volume agrégats}} \right) \left( \frac{\text{Volume agrégats}}{\text{Volume total}} \right) \end{aligned} \quad (\text{eq. 78})$$

Donc

$$1 - \varepsilon_g = (1 - \varepsilon_{intra})(1 - \varepsilon_{inter}) \quad (\text{eq. 79})$$

D'où

$$\varepsilon_g = \varepsilon_{inter} + (1 - \varepsilon_{inter}) \varepsilon_{intra} \quad (\text{eq. 80})$$

#### 4.3.1. Porosité inter-agrégat

La porosité inter-agrégat est la porosité déterminée par les différentes corrélations précédemment exposées. Elle sera donc approximée par les modèles existants. Elle rend compte du volume occupé par les particules constituant le dépôt comme schématisé en Figure 35. Son évolution est notamment due au comportement de l'aérosol qui se dépose.

$$\varepsilon_{inter} = 1 - \frac{\text{Volume agrégats}}{\text{Volume total}} \quad (\text{eq. 81})$$

#### 4.3.2. Porosité intra-agrégat

La porosité intra-agrégat, qui ne fait l'objet d'aucune étude, décrit le vide issu de la création d'un agrégat.

$$\varepsilon_{intra} = 1 - \frac{\text{Volume de particules primaires}}{\text{Volume agrégats}} \quad (\text{eq. 82})$$

Avec le volume de la particule primaire valant :

$$V_{pp} = \frac{m_{ag}}{N_{pp}\rho} \quad (\text{eq. 83})$$

Dans la littérature, deux paramètres sont utilisés pour caractériser la porosité intra d'un agrégat. Le diamètre de giration que nous avons déjà décrit (cf. 2.3.5.) et la longueur maximale projetée. Cette longueur est proportionnelle au diamètre de giration (Oh et Sorensen (1997), Brasil et al. (1999)) :

$$L = \sqrt{\frac{D_f + 2}{D_f}} d_g = \sqrt{\frac{D_f + 2}{D_f}} d_{pp} \left( \frac{N_{pp}}{k_f} \right)^{1/D_f} \quad (\text{eq. 84})$$

Les deux relations de porosité intra-agrégat s'expriment de la manière suivante :

$$\varepsilon_{intra L} = 1 - k_f^{\frac{3}{D_f}} \cdot (N_{pp})^{\frac{D_f-3}{D_f}} \cdot \left( \frac{D_f}{D_f + 2} \right)^{3/2} \quad (\text{eq. 85})$$

$$\varepsilon_{intra d_g} = 1 - k_f^{\frac{3}{D_f}} \cdot (N_{pp})^{\frac{D_f-3}{D_f}} \quad (\text{eq. 86})$$

Les récents travaux de Ouf (2016) montrent l'importance de dissocier la porosité intra et inter agrégats. À partir de différentes données issues de la littérature (Kim et al. 2009, Mädler et al.

2006, Elmoe 2011), il a observé l'évolution de la porosité totale  $\varepsilon_g$  (eq. 80) en fonction du nombre de particules primaires en prenant comme porosité inter-agrégat l'équation (eq. 67) de Yu *et al.* (2003). Les particules étudiées ont des caractéristiques proches des suies réalistes, à savoir une dimension fractale de 1,8 et un diamètre d'agrégat proche de 100 nm. De cette Figure 36, on distingue une même tendance, à savoir une forte croissance pour un faible nombre de particules primaires ( $N_{pp} < 100$ ) puis une stagnation à partir de 100 particules primaires.

Deux paramètres morphologiques ( $d_{pp}$  et  $N_{pp}$ ) varient en même temps, il serait intéressant d'observer expérimentalement l'influence de ces paramètres l'un après l'autre afin de définitivement valider ou non la simulation de Mädler.

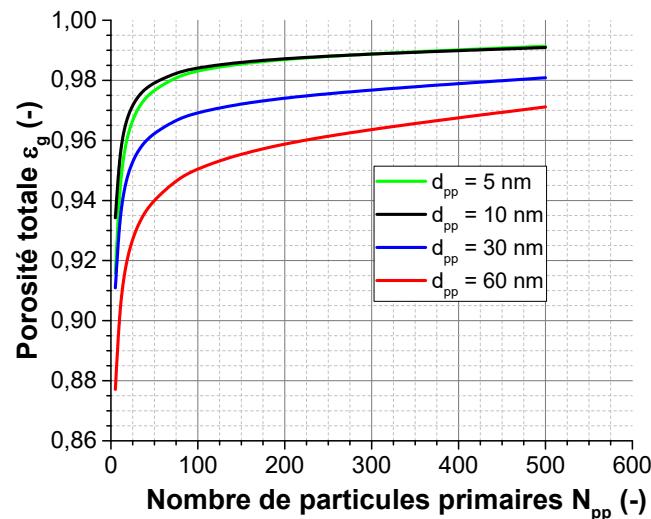


Figure 36 : Évolution de la porosité d'un dépôt selon le nombre de particules primaires

Au vu des différentes données de la littérature, l'expression proposée pour la porosité intra-agglomérat peut être obtenue de deux manières différentes, soit à partir du diamètre de giration  $d_g$ , soit à partir de la longueur  $L$  caractéristique de l'agglomérat. Ces deux expressions s'obtiennent à partir des paramètres morphologiques d'un agrégat que sont : la dimension fractale, le préfacteur fractal et le nombre de particules primaires qui sont mesurés par analyse d'image MET.

La Figure 37 présente l'évolution de la porosité intra et inter-agglomérat par la méthode du diamètre de giration et par la méthode de la longueur caractéristique (équations ci-dessus).

En considérant la porosité inter-agrégat comme défini par l'équation de Yu (eq. 67) précédemment décrite, Ouf a comparé l'évolution de ces deux expressions à la porosité intra-agrégats. Concernant la porosité inter, que ce soit selon le diamètre de giration ou bien la longueur caractéristique de l'agglomérat, on observe une décroissance linéaire. Les deux expressions de la porosité intra-agrégats présentent une tendance semblable à savoir une forte croissance pour un faible nombre de particules primaires ( $< 100$ ). À partir d'une porosité de 60 % et de 75 % pour respectivement le diamètre de giration et la longueur caractéristique, on observe une atténuation de cette croissance pour atteindre un plateau proche de 95 % à 500 nm.

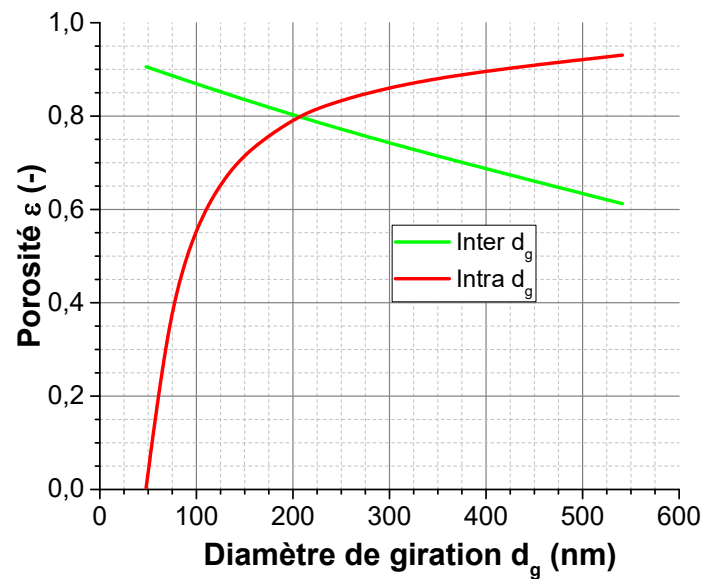


Figure 37 : Comparaison de l'évolution de la porosité intra et inter-agglomérat selon le diamètre de giration

Cette approche de la double porosité reste à approfondir car aucune étude spécifique sur la porosité intra-agrégat n'a été réalisée. A l'heure actuelle, l'obtention de la porosité intra-agrégat se fait par analyse de cliché MET. L'orientation de l'agrégat va jouer un rôle car, selon l'angle avec lequel se dépose la particule, la porosité inter-agrégat ne sera pas la même. La valeur de la porosité totale va être influencée par la vitesse de filtration, le transport des particules, la taille, la nature et la morphologie des particules.

## 5. CONCLUSION

Les filtres peuvent être soumis à un apport important de particules ou à des particules très colmatantes, occasionnant une élévation rapide de leur perte de charge. Les récents travaux ont abouti au développement d'un modèle phénoménologique (Alilou 2018) permettant de prédire la perte de charge d'un filtre en fonction de ses propriétés et de celles de l'aérosol. Dans ce modèle, l'un des paramètres d'entrée, est la porosité du dépôt de particules.

De nombreux auteurs, via des simulations, ont proposé des valeurs de porosité pour des dépôts de nanoparticules formés par filtration et ont montré, pour un aérosol donné, une dépendance de la porosité en fonction du nombre de Péclet (rapport des mécanismes de transport par convection et diffusion), illustrée par une courbe en S inversé et qui peut être divisée en 3 zones (Figure 38).

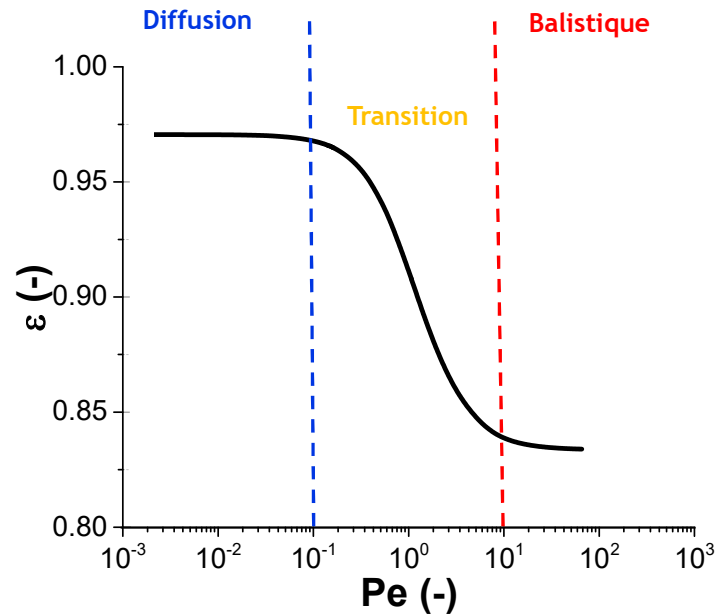


Figure 38 : Zones d'étude de l'évolution de la porosité selon le nombre de Péclet

- La zone de diffusion ( $Pe < 10^{-1}$ ) où la diffusion domine
- La zone de transition ( $10^{-1} < Pe < 10$ ) où diffusion et interception « se chevauchent »
- La zone balistique ( $Pe > 10$ ) où l'inertie des particules domine

De cet état de l'art, il ressort que la structure du dépôt est fonction de plusieurs paramètres. Ceux liés à l'aérosol : taille et morphologie et ceux liés aux conditions opératoires : vitesse de filtration, libre parcours moyen, pression... De nombreuses questions demeurent car la plupart des études portaient sur des simulations numériques ou des expérimentations menées dans des conditions limitées. A ce jour, il n'existe pas d'étude expérimentale systématique permettant notamment de confirmer les résultats des différentes simulations et de nombreuses questions restent en suspens. Quelle est l'influence de la structure des agrégats, de la vitesse de filtration, de la polydispersion de l'aérosol sur la porosité... ?

Dans le but d'analyser le comportement physique des aérosols, des particules pseudo-sphériques seront générées afin d'exclure le caractère morphologique de l'aérosol. Chacune des caractéristiques de l'aérosol et des conditions opératoires suivantes seront analysées individuellement en balayant une gamme de Péclet couvrant les trois zones (diffusionnelle, de transition et balistique) :

- Le diamètre de particule
- La masse volumique de l'aérosol
- La pression
- Le libre parcours moyen
- La viscosité dynamique

La modification de la vitesse de filtration entre chaque expérience permet l'obtention d'un nouveau nombre de Péclet en fonction de l'aérosol étudié. Pour les différentes configurations fixées, les éléments suivants seront mesurés :

- le diamètre des particules
- la pression au sein de l'installation
- la masse déposée

- la perte de charge
- le taux de croissance du dépôt

Dans un second temps, l'étude se focalisera sur l'influence de la structure des agglomérats sur la porosité des dépôts. Seront en particuliers étudiés :

- le diamètre de particules primaires
  - le nombre de particules primaires
  - la masse volumique effective
  - la dimension fractale
  - le coefficient de recouvrement
-

## **CHAPITRE II : MATERIELS ET METHODES**

### **1. INTRODUCTION**

L'étude bibliographique a permis de mettre en évidence le principal manque actuel dans l'étude du colmatage d'un filtre plan par un aérosol donné : aucune étude expérimentale systématique sur la porosité du dépôt n'a été réalisée. La démarche expérimentale s'est construite autour de deux grands points :

- La caractérisation des aérosols, en se consacrant aux divers appareils employés pour la génération des différents aérosols et aux techniques utilisées pour les caractériser.
- La caractérisation du dépôt, les paramètres d'étude pertinents sont ici la porosité et l'épaisseur du dépôt, ainsi que la masse accumulée.

Pour ce travail, nous avons, en premier lieu, séparé l'étude en fonction de la morphologie de l'aérosol étudié : une première étude sur les particules pseudo-sphériques et une seconde sur les particules nanostructurées. Des bancs expérimentaux permettant de colmater des filtres plans dans des conditions maîtrisées seront présentés. La conclusion du précédent chapitre a listé l'ensemble des paramètres à fixer et à observer. En parallèle, nous avons développé et amélioré un nouveau moyen métrologique apte à la détermination d'une épaisseur de dépôt. Une étude complémentaire sur filtre plissé a également été réalisée.

### **2. CARACTERISATION DES AEROSOLS**

#### **2.1. Granulométrie des aérosols générés**

Les différents aérosols générés pour cette étude ont été caractérisés en termes de distributions granulométriques par un Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) (voir Annexe I). Cet appareil classe les particules en fonction de leur diamètre de mobilité électrique.

- Cas des particules pseudo-sphériques :

Ces particules sont produites par un nébuliseur (3076, TSI) conçu pour générer des particules inférieures à 1  $\mu\text{m}$  à partir d'une solution saline. Ce dispositif, visible en Figure 39 a été choisi car le générateur est stable et reproductible. Il est composé de deux éléments :

- le compresseur pneumatique qui produit l'air comprimé
  - le nébuliseur dans lequel la solution se transforme en fines particules générant ainsi l'aérosol
-

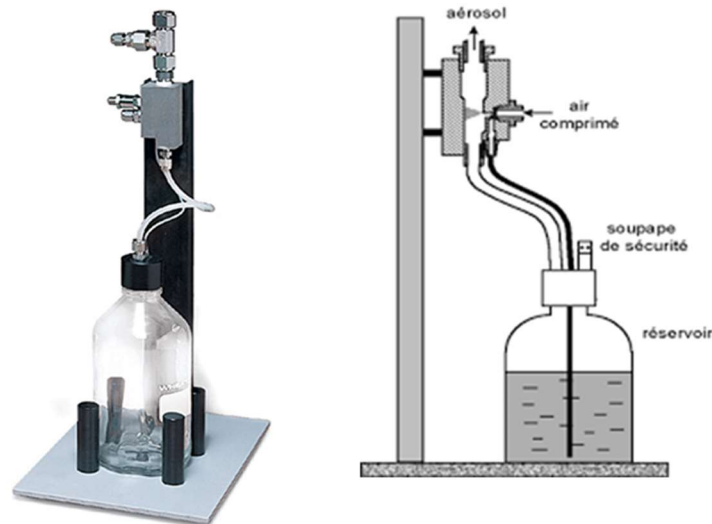


Figure 39 : Principe de fonctionnement d'un atomiseur

Trois types de particules ont été utilisés dans cette étude, des particules pseudo-sphériques de chlorure de potassium (KCl), de chlorure de césium (CsCl) et des billes de latex (PSL). La distribution granulométrique des aérosols d'essai suit une distribution granulométrique log-normale (Figure 40) caractérisée par un diamètre géométrique de mobilité électrique ( $d_m$ ) et un écart-type géométrique ( $\sigma_g$ ). L'ensemble des caractéristiques des aérosols et les conditions opératoires est listé Tableau 9.

| Aérosol | Gaz porteur | $d_m$ (nm) | $\sigma_g$ (-) | $\rho_p$ (kg/m <sup>3</sup> ) | $\lambda$ (nm)       | $\mu$ (Pa.s)         | $U_f$ (cm/s) | Température (°C) | Humidité relative (%) | Pression (Pa)                    |
|---------|-------------|------------|----------------|-------------------------------|----------------------|----------------------|--------------|------------------|-----------------------|----------------------------------|
| KCl     | Air         | 62         | 1,84           | 1980                          | 66,4                 | $1,81 \cdot 10^{-5}$ | 0,08 à 66    | 25               | 33                    | Pression atmosphérique           |
|         | Hélium      | 85         | 1,72           |                               | 191,5                | $1,99 \cdot 10^{-5}$ |              |                  |                       |                                  |
|         | Argon       | 97         | 1,75           |                               | 66,9                 | $2,22 \cdot 10^{-5}$ |              |                  |                       |                                  |
|         | Air         | 87         | 1,84           | 66,4                          | $1,81 \cdot 10^{-5}$ | 0,16 à 59            | 24           | 32               |                       |                                  |
| 108     |             | 1,89       | 0,08 à 55      |                               |                      | 24                   | 30           |                  |                       |                                  |
| Latex   | Air         | 64         | 1,1            | 1050                          | 66,4                 | $1,81 \cdot 10^{-5}$ | 0,7 à 37     | 24               | 31                    |                                  |
| CsCl    |             | 62         | 1,75           | 3990                          |                      |                      | 0,04 à 59    | 30               | 33                    | 50 000 et pression atmosphérique |

Tableau 9 : Conditions expérimentales et caractéristiques des aérosols générés

Le choix des aérosols et les conditions opératoires doivent permettre d'isoler les contributions susceptibles de conditionner la porosité du dépôt : la masse, le diamètre des particules, la vitesse de filtration et le coefficient de diffusion à travers une modification de la pression.

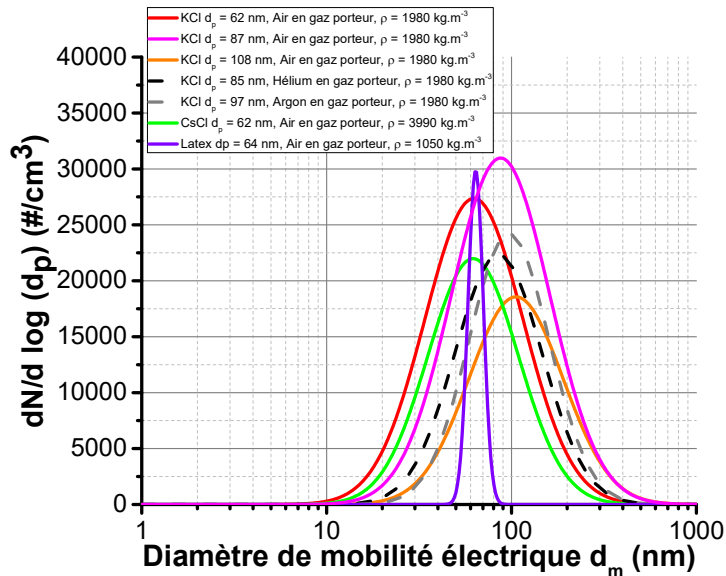


Figure 40 : Distributions granulométriques des différents aérosols générés avec le nébuliseur

- Cas des agrégats :

La distinction entre les termes agrégats et agglomérats est liée à la fusion ou non des particules primaires. Dans ce travail, cette distinction n'est pas essentielle et nous n'utiliserons que le terme d'agrégats. Plusieurs générateurs seront utilisés pour produire les différents aérosols d'essais.

Le **générateur PALAS GFG-1000** produit un aérosol de particules nanostructurées par décharge électrique entre deux électrodes dans une chambre balayée par un courant d'argon qui évite l'oxydation des électrodes, comme le montre la Figure 41. L'énergie électrique est dissipée au sein de l'électrode sous forme d'énergie thermique. Dans ce générateur, le matériau de l'électrode est évaporé à proximité de l'étincelle formant de très petites particules primaires par condensation qui vont ensuite coaguler en fonction de la concentration du nombre de particules et des conditions de fonctionnement pour former des agrégats. La concentration et la distribution granulométrique de l'aérosol dépendent des débits d'argon et d'air de dilution et de la fréquence des étincelles.

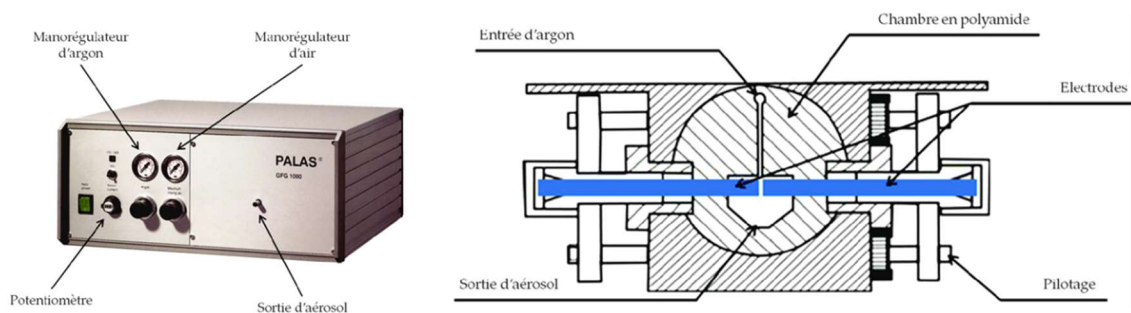


Figure 41 : Photographie du générateur PALAS GFG-1000 et schéma de la chambre de génération

La nature des électrodes (carbone, cuivre, titane ou aluminium) conditionnera la nature chimique de l'aérosol. Ce choix vient d'une part de la large gamme d'étude d'un point de vue du diamètre des particules, et d'autre part de la masse volumique pouvant influencer le transport même des particules.



Le **miniCAST** est un générateur commercial de suie à partir d'une flamme de diffusion (propane-azote), comme illustré en Figure 42. Il est aujourd'hui la référence pour produire et générer avec une grande stabilité des particules de suies issues d'une combustion (propane, diesel, Kérosène). L'aérosol de suie ainsi généré a une morphologie similaire aux particules issues de combustion de moteurs, sa concentration est stable et sa granulométrie est ajustable en temps réel à tout moment. Pour cette étude, le propane a été sélectionné comme carburant de choix car plus couramment utilisé dans la littérature. Le choix des débits (propane, air, azote, air de dilution) conditionne, entre autres, la richesse globale de la flamme, ce qui permet la génération de suies de morphologie et de propriétés optiques et chimiques variées.

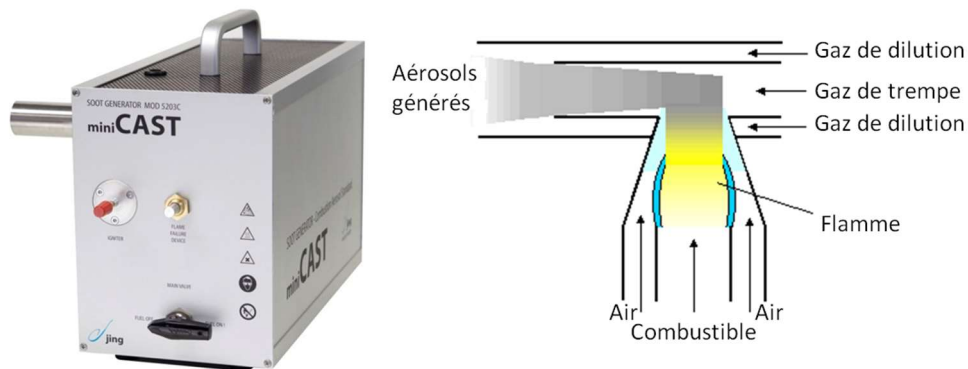


Figure 42 : Photographie du générateur CAST et schéma de principe de génération

L'**Argonaut (Model MISG-1)** (Figure 43) possède un brûleur miniature à flamme inversée. Le brûleur est composé de deux tubes annulaires pour le carburant et l'air. Dans cette étude, le propane a été sélectionné comme carburant de choix dans le but de comparer les données obtenues à celles du générateur MiniCAST qui utilise le même carburant. La flamme générée est une flamme inversée de diffusion enfermée dans le tube de quartz.

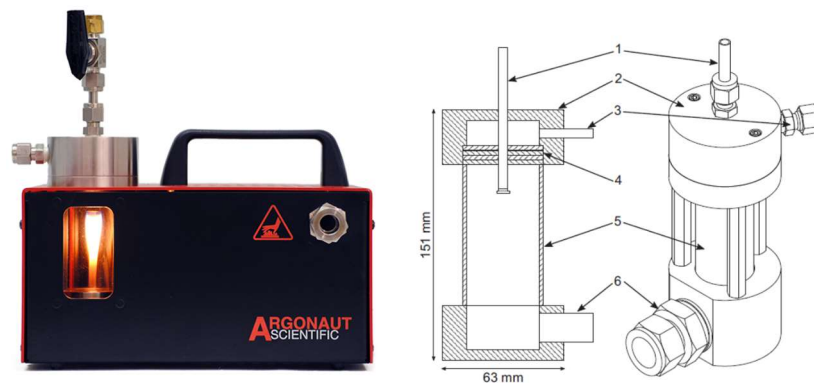


Figure 43 : Schéma et vue isométrique de l'Argonaut montrant ses dimensions et ses composants. 1 : Tube de carburant, 2 : capuchon supérieur, 3 : entrée d'air concourante, 4 : disques poreux, 5 : tube à air concourant (tube de quartz), et 6 : sortie d'échappement par Kazemianesh et al. (2019)

Le **disperseur de poudre** développé par la société TEKNA repose sur l'utilisation d'un dispositif d'alimentation en suie et d'une sonde de dispersion aéraulique. Le dispositif d'alimentation est constitué d'un réceptacle en inox d'un volume de quelques litres au sein duquel la poudre à disperser est placée. Un agitateur constitué d'un servomoteur piloté par une unité de contrôle et d'un arbre sur lequel sont montés des peignes métalliques permettant de disperser la poudre dans le volume en inox. Un générateur à ultrasons permet d'éviter tout mécanisme

d'agglomération des suies, et de l'air de transport est injecté dans le volume d'alimentation. Les suies ainsi mises en suspension sont ensuite injectées en partie basse de l'alimentation afin d'être transportées vers la sonde de dispersion constituée d'un tube central, au sein duquel les suies sont aérosolisées. A l'extrémité de ce tube est placée une buse de dispersion constituée d'orifices de petites dimensions (diamètre inférieur à 1 mm) et placés tangentielllement à l'écoulement afin de cisailier l'écoulement central transportant les suies. Cette sonde présente un circuit supplémentaire permettant de la refroidir ou de la chauffer. La Figure 44 illustre schématiquement le principe de ce dispositif. Il est à noter que, dans les deux cas, la dénomination T dans la référence de cette sonde précise que l'injection de l'air de dispersion est réalisée à travers des orifices tangentiels à l'écoulement porteur de la nanopoudre. La qualification de ce générateur est donnée en Annexe II.

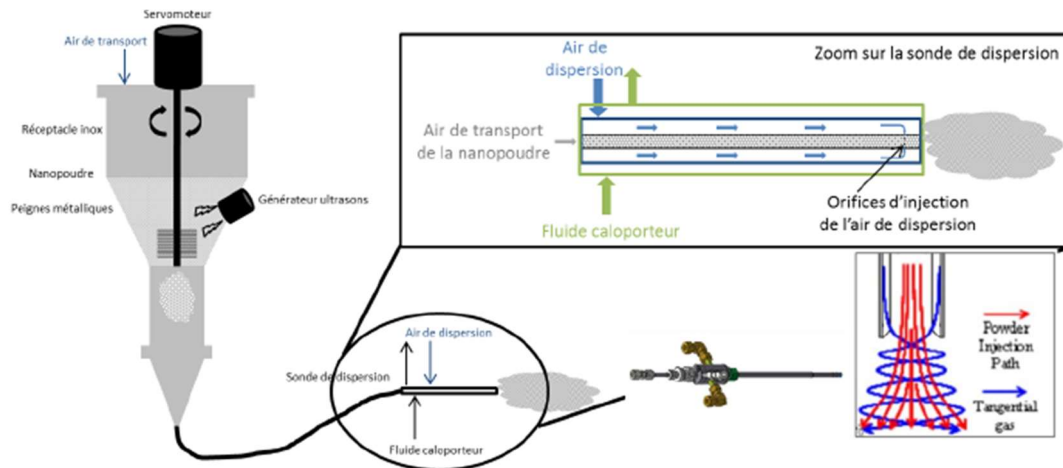


Figure 44 : Schéma du principe de fonctionnement du disperseur de suie Tekna

D'un point de vue de la morphologie des particules dispersées, celle-ci apparaît similaire à celle observée lors des essais incendie.

Concernant les propriétés chimiques, les suies dispersées ayant été produites lors d'incendie réel, ce moyen reste à notre connaissance le seul à pouvoir générer un aérosol de combustion le plus représentatif d'un incendie sans effectuer une véritable combustion. On notera néanmoins que la réactivité des particules dispersées dans de telles conditions est représentative de suies en phase finale d'évolution dans le foyer et sans la présence d'espèces gazeuses ou de condensats pouvant interagir avec les suies.

Au même titre que pour les sphères, la distribution granulométrique de chaque agrégat généré a été mesurée. Les caractéristiques des différents aérosols générés par le GFG-1000 sont listées dans le Tableau 10 et les distributions granulométriques sont présentées à la Figure 45. Il apparaît que les particules nanostructurées issues des électrodes se trouvent sous forme oxydée. Par exemple, pour des électrodes en cuivre, l'aérosol généré est composé de  $\text{Cu}_2\text{O}$ , d'où le choix de la masse volumique de la forme oxydée et non celle du matériau composant l'électrode.

| Aérosol   | f (u.a.) | d <sub>m</sub> (nm) | σ <sub>g</sub> (-) | ρ (kg/m <sup>3</sup> ) | U <sub>f</sub> (cm/s) | Température (°C) | Humidité relative (%) | Pression (Pa)          |
|-----------|----------|---------------------|--------------------|------------------------|-----------------------|------------------|-----------------------|------------------------|
| Carbone   | 10       | 101                 | 1,48               | 1980                   | 1,6 à 14              | 27               | 25                    | Pression atmosphérique |
|           | 50       | 132                 | 1,5                |                        | 0,16 à 12             |                  |                       |                        |
|           | 100      | 165                 | 1,6                |                        | 0,16 à 7              |                  |                       |                        |
| Aluminium | 10       | 48                  | 1,48               | 3950                   | 163 à 5874            |                  |                       |                        |
|           | 100      | 84                  | 1,51               |                        | 37 à 514              |                  |                       |                        |
|           | 300      | 117                 | 1,51               |                        | 16 à 734              |                  |                       |                        |
| Cuivre    | 10       | 31                  | 1,63               | 6310                   | 1,6 à 60              |                  |                       |                        |
|           | 500      | 77                  | 1,48               |                        | 0,5 à 37              |                  |                       |                        |
|           | 1000     | 108                 | 1,52               |                        | 0,5 à 30              |                  |                       |                        |
| Titane    | 10       | 68                  | 1,56               | 4230                   | 0,3 à 59              |                  |                       |                        |
|           | 100      | 112                 | 1,54               |                        | 0,16 à 47             |                  |                       |                        |
|           | 200      | 131                 | 1,55               |                        | 0,16 à 22             |                  |                       |                        |

Tableau 10 : Condition et caractéristiques des agrégats générés par le GFG-1000

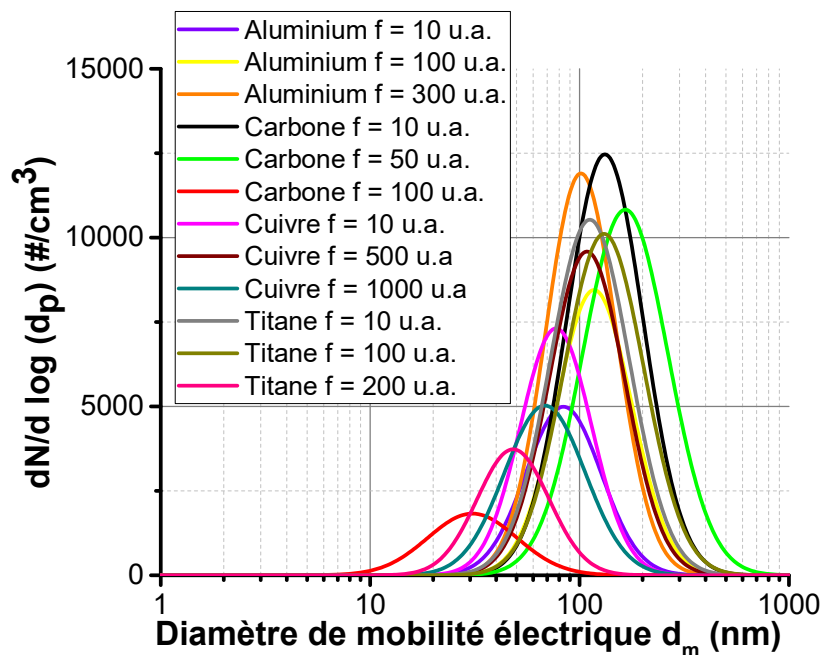


Figure 45 : Distributions granulométriques des aérosols générés par le GFG-1000

La Figure 46 présente les distributions granulométriques des aérosols issues des trois générateurs (CAST, Argonaut et disperseur de suie) pour les différentes conditions opératoires fixées et présentées respectivement dans les Tableaux 11, 12 et 13. Ces distributions ont été mesurées pour chacune des expériences afin de s'assurer de la reproductibilité de la génération.

| Débit propane (mL/min) | Débit d'azote (mL/min) | Débit d'air d'oxydation (L/min) | Débit d'air de dilution (L/min) | $d_m$ (nm) | $\sigma_g$ (-) | $\rho_p$ (kg/m <sup>3</sup> ) |
|------------------------|------------------------|---------------------------------|---------------------------------|------------|----------------|-------------------------------|
| 60                     | 0                      | 1,5                             | 20                              | 190        | 1,3            | 1650                          |

Tableau 11 : Condition et caractéristiques des agrégats générés par le CAST

| Débit propane (L/min) | Débit d'oxydation d'air (L/min) | $d_m$ (nm) | $\sigma_g$ (-) | $\rho_p$ (kg/m <sup>3</sup> ) |
|-----------------------|---------------------------------|------------|----------------|-------------------------------|
| 0,059                 | 7,5                             | 114        | 1,7            | 477                           |

Tableau 12 : Condition et caractéristiques des agrégats générés par l'Argonaut

| Aérosol  | Débit carrier gas (L/min) | Débit air (L/min) | Vitesse de rotation (rpm) | $d_m$ (nm) | $\sigma_g$ (-) | $\rho_p$ (kg/m <sup>3</sup> ) |
|----------|---------------------------|-------------------|---------------------------|------------|----------------|-------------------------------|
| Suie BAG | 5                         | 10                | 1                         | 230        | 1,8            | 1650                          |

Tableau 13 : Condition et caractéristiques des agrégats générés par le disperseur de suie

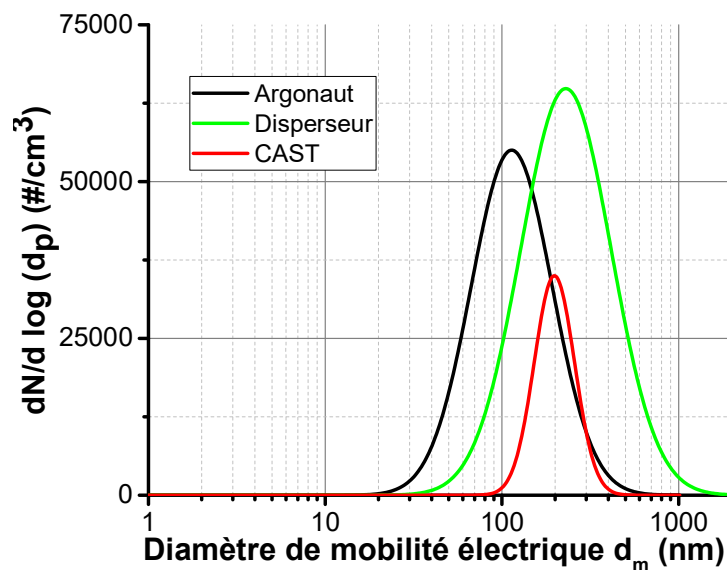


Figure 46 : Distributions granulométriques des aérosols de suie générés par le CAST (rouge), l'ARGONAUT (noire) et le disperseur de suie (verte)

## 2.2. Morphologie des agrégats

L'étude bibliographique a montré que la porosité des dépôts d'agrégat est fonction des paramètres morphologiques ( $D_f$ ,  $k_f$ ,  $N_{pp}$ ,  $d_{pp}$ ) des particules nanostructurées. Raison pour laquelle il a été choisi de générer des agrégats présentant des paramètres morphologiques bien différents pour en déterminer l'incidence sur la porosité. Deux méthodes permettent de remonter à ces paramètres morphologiques :

- Le couplage d'un SMPS et d'un CPMA (Centrifugal Particle Mass Analyzer). Par diverses relations (Charvet *et al.* 2014), il est possible de remonter à la dimension fractale, au nombre de particules primaires ainsi qu'à la masse volumique effective.
- La microscopie TEM permettra de remonter à la dimension fractale de l'agrégat et au diamètre des particules primaires.

Concernant la première méthode, le CPMA est un appareil qui permet la classification des particules par leur masse (Johnson *et al.* 2013). Il reprend le principe du DMA mais cette fois-ci, la sélection des particules résulte de la compétition entre la force électrostatique et la force centrifuge causée par la mise en rotation de l'aérosol. Le CPMA, dont le principe est illustré en Figure 47, est constitué de deux électrodes cylindriques en rotation coaxiale à différentes vitesses angulaires.

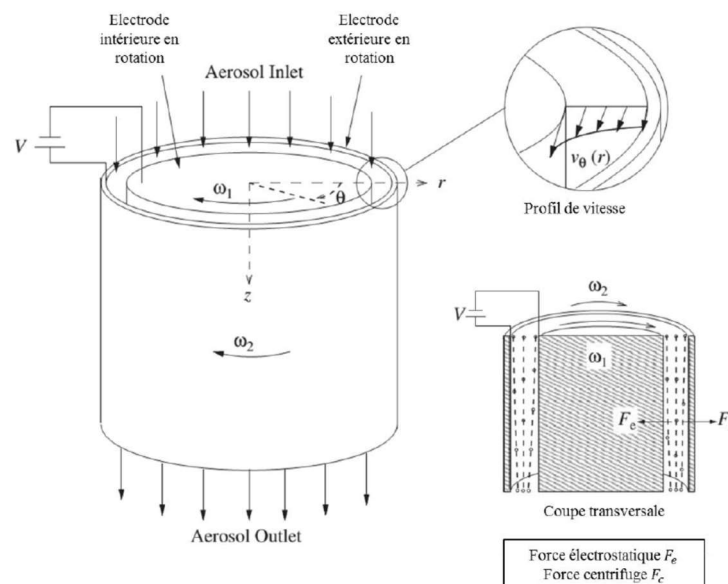


Figure 47 : Schéma du principe de fonctionnement du CPMA

Seules les particules possédant un certain rapport masse-charge passeront de façon rectiligne au travers du CPMA. Ce ratio est contrôlé par la vitesse angulaire de rotation de l'appareil et par la tension appliquée entre les deux électrodes. Si la charge des particules est connue, la masse des particules sélectionnées est connue.

Il est alors possible de déterminer la masse volumique effective (eq. 87) pour les agrégats générés par le PALAS GFG-1000 et pour les particules de suies.

$$\rho_e = \frac{6m_{agg}}{\pi d_m^3} \quad (\text{eq. 87})$$

Avec  $m_{agg}$  la masse de l'agrégat et  $d_m$  le diamètre de mobilité électrique.

La Figure 48 présente un exemple d'évolution de la masse d'un agrégat en fonction de son diamètre de mobilité électrique. Il est ainsi possible de remonter à la dimension fractale des agrégats générés.

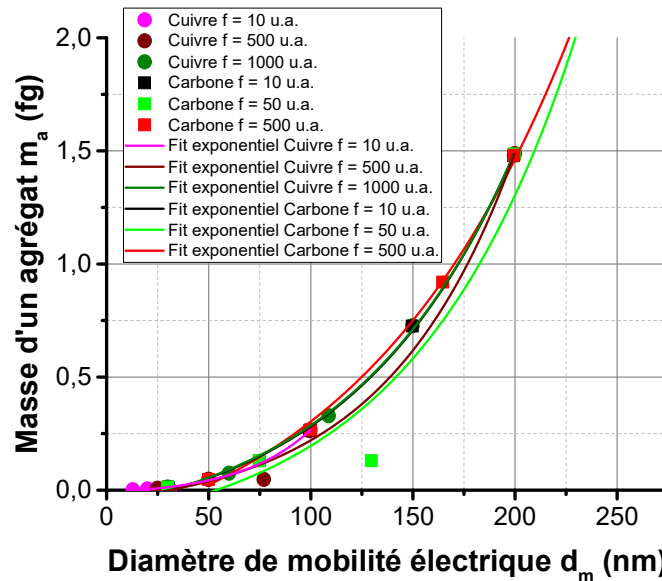


Figure 48 : Évolution de la masse d'un agrégat de cuivre et carbone en fonction de son diamètre de mobilité électrique

La valeur de la masse volumique effective est supposée tendre vers la masse volumique du matériau aux petits diamètres (lorsque  $N_{pp} \rightarrow 1$ ). Cependant, pour le cas du carbone par exemple, les valeurs observées Figure 49, semblent faibles par rapport aux masses volumiques de la matière obtenues par d'autres techniques (de l'ordre de 1740 pour la suie (Choi *et al.* 1995) et 2000 pour le PALAS GFG 1000 (Schnaiter *et al.* 2003)). L'ensemble des aérosols étudiés montre une tendance exponentielle.

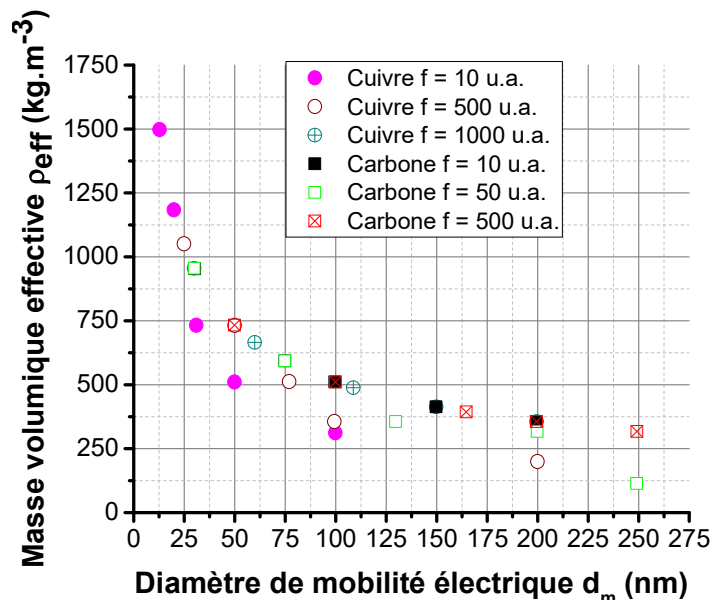


Figure 49 : Évolution de la masse volumique effective d'un agrégat de cuivre et de carbone en fonction de son diamètre de mobilité électrique

Les résultats obtenus montrent que la masse volumique effective pour chaque type d'agrégat est bien inférieure à la masse volumique du matériau. Pour les aérosols produits à partir de quatre électrodes différentes au GFG-1000, tous les exposants des équations des courbes exponentielles de mobilité de masse sont assez similaires, proches de 2,5. Ces valeurs sont en cohérence avec les résultats présentés par Sorensen (2011) dans sa revue où il s'intéresse à des agrégats en grappes dans le régime d'écoulement où  $K_n$  est compris entre 0,1 et 10. Le seul cas particulier concerne les électrodes en argent, où le coefficient est proche de 3 (synonyme de particules sphériques). Certains auteurs ont mis en évidence sa facilité à s'agglomérer rapidement et le considère donc comme un agglomérat.

Les données issues du CPMA permettent également de déterminer le diamètre des particules primaires composant les agrégats. Plus précisément, le diamètre des particules primaires correspond à l'intersection de la courbe où la densité effective est égale à la masse volumique du matériau. Cependant, lorsque des particules sont générées par décharge d'étincelle sous argon et air, les agrégats produits sont partiellement ou totalement oxydés. Par conséquent, la masse volumique change fortement, d'où la notion de masse volumique du matériau oxyde comme le montre le Tableau 14. Dans la détermination du nombre de particules primaires, le choix de la densité se porte donc sur la masse volumique de l'oxyde et non du matériau pur.

| Générateur | Aérosol   | $d_m$ (nm) | $m_{agg}$ (fg) | $\rho$ (kg.m <sup>-3</sup> ) | $\rho_{oxyde}$ (kg.m <sup>-3</sup> ) | $\rho_{eff}$ (kg.m <sup>-3</sup> ) |
|------------|-----------|------------|----------------|------------------------------|--------------------------------------|------------------------------------|
| GFG        | Carbone   | 101        | 0,273          | 2250                         | 2000                                 | 507                                |
|            |           | 132        | 0,399          |                              |                                      | 430                                |
|            |           | 165        | 0,928          |                              |                                      | 395                                |
|            | Aluminium | 48         | 0,086          | 2700                         | 3950                                 | 1486                               |
|            |           | 84         | 0,174          |                              |                                      | 561                                |
|            |           | 117        | 0,359          |                              |                                      | 428                                |
|            | Cuivre    | 31         | 0,012          | 8960                         | 6310                                 | 754                                |
|            |           | 77         | 0,113          |                              |                                      | 470                                |
|            |           | 108        | 0,326          |                              |                                      | 489                                |
|            | Titane    | 68         | 0,095          | 4510                         | 4230                                 | 577                                |
|            |           | 112        | 0,329          |                              |                                      | 447                                |
|            |           | 131        | 0,399          |                              |                                      | 339                                |
|            | Argent    | 10         | nd             | 10490                        | 7140                                 | nd                                 |
|            |           | 50         | nd             |                              |                                      | nd                                 |
|            | CAST      | Suie       | 190            | 0,741                        | 1650                                 | nd                                 |
| Argonaut   | Suie      | 114        | 0,370          | 1650                         | 477                                  |                                    |
| Disperseur | BAG       | 230        | nd             | 1650                         | nd                                   |                                    |

Tableau 14 : Valeurs expérimentales de la densité effective obtenues par le CPMA (nd : non disponible)

A partir de la Figure 48 il est également possible de remonter au nombre de particules primaires composant notre agrégat. En effet, la loi puissance déduite des valeurs expérimentales du CPMA permet de déterminer la masse de l'agrégat. En connaissant le diamètre des particules primaires issues de la littérature ou bien mesuré par microscopie, le nombre de particules primaires se déduit de l'équation suivante :

$$N_{pp} = \frac{6 m_{agg}}{\pi \rho_{oxyde} d_{pp}^3} \quad (eq. 88)$$

On obtient ainsi les valeurs dans le Tableau 15.

| Générateur | Aérosol   | d <sub>m</sub> (nm) | m <sub>agg</sub> (fg) | ρ <sub>oxyde</sub> (kg/m <sup>3</sup> ) | ρ <sub>eff</sub> (kg/m <sup>3</sup> ) | d <sub>pp</sub> (nm) | N <sub>pp</sub> (-) |
|------------|-----------|---------------------|-----------------------|---|---------------------------------------|----------------------|---------------------|
| GFG        | Carbone   | 101                 | 0,273                 | 2000                                    | 507                                   | 7                    | 760                 |
|            |           | 132                 | 0,399                 |   | 430                                   |                      | 1111                |
|            |           | 165                 | 0,928                 |   | 395                                   |                      | 2584                |
|            | Aluminium | 48                  | 0,086                 | 3950                                    | 1486                                  | 16                   | 10                  |
|            |           | 84                  | 0,174                 |   | 561                                   |                      | 20                  |
|            |           | 117                 | 0,359                 |   | 428                                   |                      | 42                  |
|            | Cuivre    | 31                  | 0,012                 | 6310                                    | 754                                   | 2                    | 454                 |
|            |           | 77                  | 0,113                 |   | 470                                   |                      | 4275                |
|            |           | 108                 | 0,326                 |   | 489                                   |                      | 12333               |
|            | Titane    | 68                  | 0,095                 | 4230                                    | 577                                   | 3                    | 1588                |
|            |           | 112                 | 0,329                 |   | 447                                   |                      | 5501                |
|            |           | 131                 | 0,399                 |   | 339                                   |                      | 6672                |
|            | Argent    | 10                  | nd                    | 7140                                    | nd                                    | X                    | nd                  |
|            |           | 50                  | nd                    |   | nd                                    |                      | nd                  |
|            | CAST      | Suie                | 190                   | 0,741                                   | 1543                                  | 207                  | 25                  |
| Argonaut   | Suie      | 114                 | 0,370                 | 1650                                    | 477                                   | 50                   | 291                 |
| Disperseur | BAG       | 230                 | X                     | 1650                                    | X                                     | 50                   | nd                  |

Tableau 15 : Caractéristiques morphologique des agrégats étudiés issues des données CPMA (nd : non disponible)

En inversant le processus du modèle semi-empirique de Yon *et al.* (2015), il est possible de remonter à des valeurs de dimension fractale. En effet, cette inversion se base sur les données expérimentales de densité effective. En combinant les deux équations qui suivent, une valeur de D<sub>f</sub> peut être calculée pour chacune de nos configurations :



$$\rho_{eff} = \rho_{pp} \left( \frac{Cu(d_{pp})}{Cu(d_m)} \right)^{\frac{D_f}{\Gamma}} \left( \frac{d_m}{d_{pp}} \right)^{\frac{D_f}{\Gamma}-3} \tag{eq. 89}$$

$$\Gamma = 1,378 \left[ \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \operatorname{erf} \left( \frac{K_n(d_{pp}) + 4,454}{10,628} \right) \right] \tag{eq. 90}$$

Le Tableau 16 reprend l'ensemble des valeurs du diamètre et du nombre de particules primaires et de la dimension fractale de chacun des agrégats générés.

| Générateur | Aérosol   | d <sub>m</sub><br>(nm) | Cu(d <sub>m</sub> )<br>(-) | m <sub>agg</sub><br>(fg) | d <sub>pp</sub><br>(nm) | Cu(d <sub>pp</sub> )<br>(-) | N <sub>pp</sub> (-) | ρ <sub>bulk_oxyde</sub><br>(kg/m <sup>3</sup> ) | ρ <sub>eff</sub><br>(kg/m <sup>3</sup> ) | K <sub>n</sub> (d <sub>pp</sub> )<br>(-) | Γ (-) | D <sub>f</sub> (-) |
|------------|-----------|------------------------|----------------------------|--------------------------|-------------------------|-----------------------------|---------------------|---|--|--|-------|--------------------|
| GFG        | Carbone   | 101                    | 2,83                       | 0,273                    | 7                       | 31,80                       | 760                 | 2000  | 507                                      | 18,97                                    | 1,377 | 1,80               |
|            |           | 132                    | 2,35                       | 0,399                    |                         |                             | 1111                |   | 430                                      |  |       | 1,81               |
|            |           | 165                    | 2,05                       | 0,928                    |                         |                             | 2584                |   | 395                                      |  |       | 1,83               |
|            | Aluminium | 48                     | 5,16                       | 0,086                    | 16                      | 14,23                       | 10                  | 3950  | 1486                                     | 8,3                                      | 1,316 | 1,44               |
|            |           | 84                     | 3,25                       | 0,174                    |                         |                             | 20                  |   | 561                                      |  |       | 1,27               |
|            |           | 117                    | 2,55                       | 0,359                    |                         |                             | 42                  |   | 428                                      |  |       | 1,33               |
|            | Cuivre    | 31                     | 7,63                       | 0,012                    | 2                       | 109,10                      | 454                 | 6310  | 769                                      | 66,4                                     | 1,378 | 1,67               |
|            |           | 77                     | 3,48                       | 0,131                    |                         |                             | 4275                |   | 544                                      |  |       | 1,71               |
|            |           | 108                    | 2,70                       | 0,326                    |                         |                             | 12333               |   | 494                                      |  |       | 1,68               |
|            | Titane    | 68                     | 3,84                       | 0,095                    | 3                       | 73,48                       | 1588                | 4230  | 577                                      | 44,27                                    | 1,378 | 1,56               |
|            |           | 112                    | 2,63                       | 0,329                    |                         |                             | 5501                |   | 447                                      |  |       | 1,65               |
|            |           | 131                    | 2,37                       | 0,399                    |                         |                             | 6672                |   | 339                                      |  |       | 1,68               |
|            | Argent    | 10                     | 22,42                      | 0,0027                   | 3                       | 73,48                       | 4                   | 7140  | 5156                                     | 44,27                                    | 1,378 | 1,89               |
|            |           | 50                     | 4,98                       | 0,092                    |                         |                             | 66                  |   | 1405                                     |  |       | 1,71               |
|            | CAST      | Suie                   | 190                        | 1,90                     | 1,99                    | 25                          | 9,31                | 325   | 1543                                     | 555                                      | 5,312 | 1,25               |
| Argonaut   | Suie      | 114                    | 0,757                      | 0,770                    | 50                      | 4,98                        | 291                 | 1650  | 975                                      | 2,656                                    | 1,14  | 1,5                |

Tableau 16 : Valeurs expérimentales de la dimension fractale des aérosols étudiés par inversion du modèle de Yon et al. (2015)

Pour les suies issues du disperseur, aucune donnée n'a pu être obtenue à cause de l'indisponibilité du matériel. L'utilisation de la microscopie est donc nécessaire pour obtenir les caractéristiques manquantes à cet agrégat.

Pour pouvoir observer les particules de suie au microscope électronique en transmission (MET), il convient de les acheminer et de les déposer sur des grilles de microscopie (200 mesh copper grid avec Formvar/carbon film, Agar Scientific).

L'observation des grilles a été réalisée par un microscope à haute résolution de type JEOL, JEM-3010. L'analyse des clichés MET pour la détermination des paramètres morphologiques des nanoparticules de suie qui présentent un caractère fractal est basée sur l'étude de Köylü *et al.* (1995a). La relation établie par Köylü *et al.* (1995a) est définie par :

$$N_{pp} = k_a \left( \frac{A_a}{A_{pp}} \right)^{\alpha_m} \quad (\text{eq. 91})$$

Avec ( $A_a$ ) la surface projetée des agrégats et ( $A_{pp}$ ) la surface projetée d'une particule primaire.

Le calibrage de cette loi a permis de déterminer les paramètres  $k_a$  et  $\alpha_m$ . Par ailleurs, Köylü *et al.* (1995a) ont montré que la longueur maximale projetée  $L$  est liée au diamètre de giration  $d_g$  par l'équation :

$$\frac{L}{d_g} = 1,50 \pm 0,05 \quad (\text{eq. 92})$$

A partir de l'expression du nombre de particules primaires (eq. 33), il est possible d'accéder, sur un cliché MET, à un couple de paramètres  $N_{pp}$ ,  $d_g$ . En fixant le facteur pré-fractal à 1,8, on obtient une valeur de la dimension fractale. Cette valeur sera approximative car très dépendante du nombre de cliché et de la qualité des clichés.

Le Tableau 17 regroupe l'ensemble des données obtenues par la microscopie TEM sur l'ensemble des agrégats étudiés :

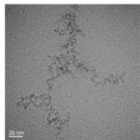
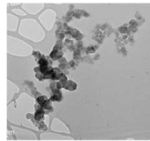
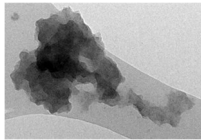
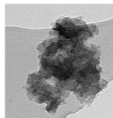
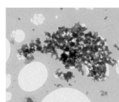
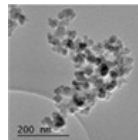
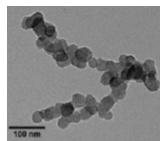
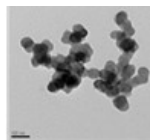
| Générateur | Aérosol   | $d_{pp}$ (nm) | $N_{pp}$ (-) | $D_f$ (-) | Image TEM   |
|------------|-----------|---------------|--------------|-----------|---|
| GFG        | Carbone   | 9             | 1000         | 1,67      |    |
|            | Aluminium | 13            | 100          | 1,59      |    |
|            | Cuivre    | 10            | 100          | 1,85      |    |
|            | Titane    | 3             | 3000         | 2         |    |
|            | Argent    | 12            | 5000         | 2         |    |
| CAST       | Suie      | 25            | 100          | 1.8       |   |
| Argonaut   | Suie      | 50            | 50           | 1.8       |  |
| Disperseur | BAG       | 50            | 35           | 1.8       |  |

Tableau 17 : Caractéristiques morphologiques des agrégats étudiés issues des données MET

De cette analyse microscopique il ressort des variations entre les données obtenues et entre celles issues du CPMA et ces dernières. A noter qu'un travail de statistique est nécessaire afin de moyenner les écarts observables entre plusieurs prises de vue.

### 3. CARACTERISATION DU DEPOT

#### 3.1. Caractérisation du dépôt filtre plan

L'objectif principal de chaque expérience est de déterminer la porosité d'un dépôt de nanoparticules formé par filtration. Il vise à mesurer simultanément la différence de pression entre l'amont et l'aval du filtre ainsi que le taux de croissance (rapport de la variation de l'épaisseur sur la variation de la masse du dépôt) du dépôt de particules.

### 3.1.1. Présentation des différents bancs expérimentaux

Ces dépôts sont produits par filtration de différents aérosols constitués de particules nanométriques non agglomérées, polydispersées et générées par dispersion pneumatique (atomiseur TSI 3076, 1 bar), de suspension colloïdale (PSL) ou de solution de sels (KCl ou CsCl).

- *Vitesse constante* :

Le banc expérimental SOFA utilisé est illustré en Figure 50. L'aérosol produit est séché (Diffusion Dryer 3060-NC TSI) puis sa distribution granulométrique est caractérisée à l'aide d'un SMPS (Grimm 5.403). La concentration en masse a été contrôlée à l'aide d'une microbalance TEOM 50 et comparée avec les pesées successives du filtre vierge et du filtre à l'issue de la filtration à l'aide d'une balance de précision (Sartorius MSA125P-000-DA). Afin d'étudier la porosité du dépôt formé à la surface du média (l'efficacité de filtration est supposée constante), des membranes en PTFE (Merck FSLW, taille de pore 3  $\mu\text{m}$ , diamètre géométrique 25 et 47 mm) ont été utilisées comme média de filtration car la pénétration des particules à l'intérieur de ce média est limitée ce qui facilite l'étude du dépôt en surface. Ces filtres présentent les caractéristiques suivantes : un diamètre de filtration de 17 mm et 36 mm donnant une surface de filtration de 10,18  $\text{cm}^2$  et 22,70  $\text{cm}^2$ . L'ensemble des expériences sont réalisés à pression et température ambiantes.

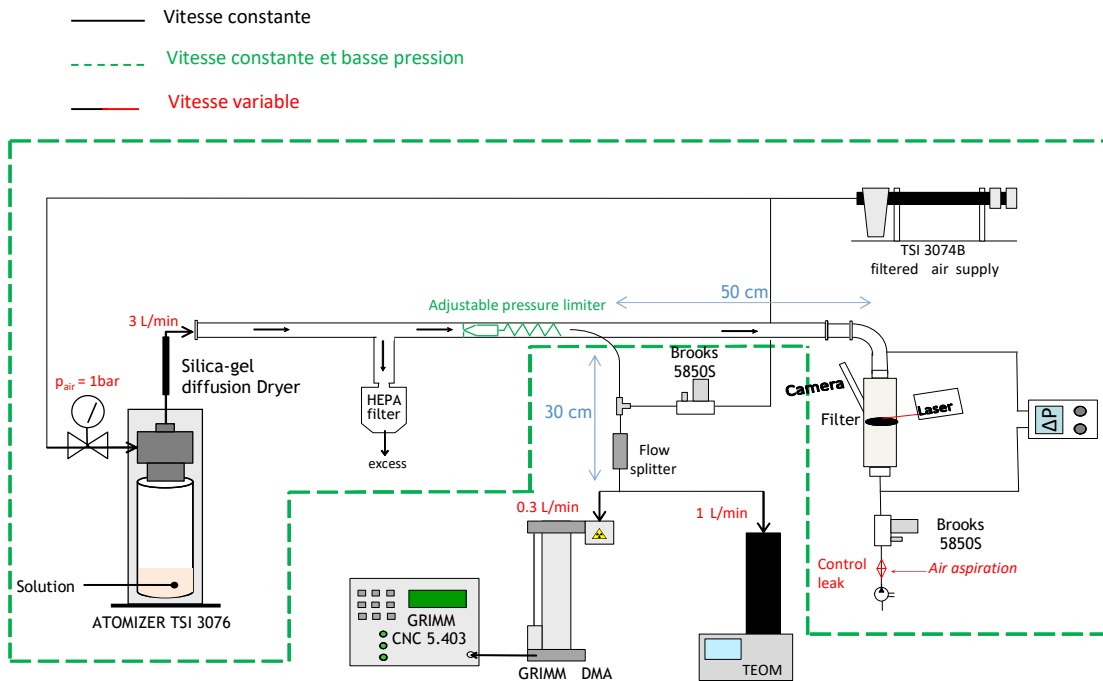


Figure 50 : Schéma du banc expérimental

Le banc expérimental a été modifié en fonction des conditions expérimentales recherchées pour chaque expérience.

- *Vitesse variable* :

La filtration dynamique des particules permet d'étudier l'évolution de la porosité en fonction de la vitesse de filtration. En effet, lors du colmatage, le débit à travers le filtre diminue. Deux types d'expériences ont été menés. Le premier en imposant une fuite calibrée (perte de charge constante du dépôt) et dont le débit de fuite est mesuré tout au long de l'expérience, comme le montre la Figure 51. La seconde en modifiant manuellement le débit pendant l'expérience en démarrant à une vitesse de filtration élevée (11,1  $\text{cm/s}$  équivalent à un nombre de Péclet proche de 10). Après

stabilisation de la courbe du taux de croissance du dépôt de particules, le débit est de nouveau réduit.

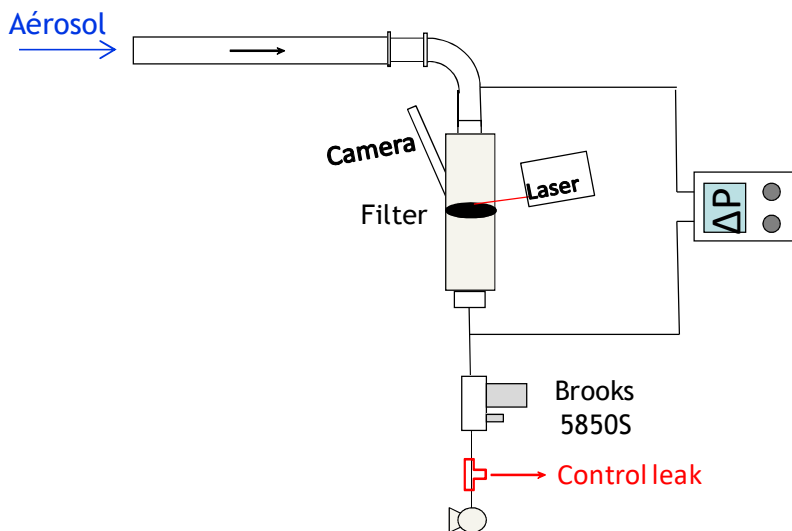


Figure 51 : Modification du banc initial pour passer en configuration vitesse variable

- Vitesse constante et basse pression

Pour souligner l'influence du libre parcours moyen, le banc expérimental a été reconfiguré en condition dite basse pression. Les instruments de caractérisation n'étant pas adaptés à ces conditions expérimentales (SMPS et TEOM), ils ont donc été isolés du reste du montage expérimental. Dans la configuration dite "vitesse constante et basse pression", les points expérimentaux ont été déterminés dans les mêmes conditions que dans la configuration "vitesse constante" afin de préserver des caractéristiques de particules et de conditions opératoires identiques.

L'ensemble des modifications apporté au banc original est illustré Figure 52. Un ressort à clapet permet de diminuer la pression à l'amont du filtre à une valeur de 50 000 Pa. Son principe repose sur l'équilibrage des forces. A la résistance d'une membrane s'oppose la force d'un ressort de réglage. A la suite d'un soutirage, l'équilibre est rompu, la pression de sortie chute, et donc la force qui s'exerce sous la membrane chute également. La force du ressort devient alors prépondérante et la vanne tend à s'ouvrir. La pression de sortie tend ainsi à nouveau à augmenter jusqu'à atteindre un nouvel équilibre. Les fluctuations de la pression amont sont sans influence sur la pression aval. Cette pression, contrôlée tout au long de l'essai, influe sur le libre parcours moyen de l'air qui est passée de 66 nm, pour une pression ambiante, à 135 nm.

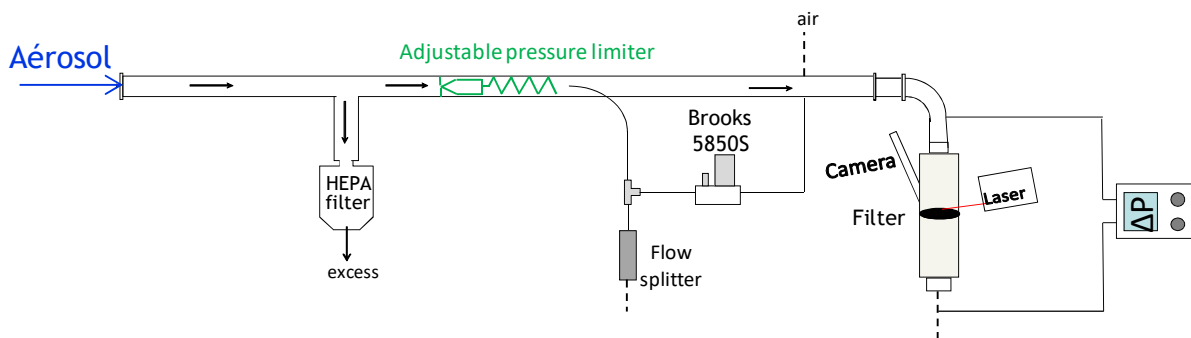


Figure 52 : Modification du banc expérimental initial pour passer en configuration basse pression

### 3.1.2. Protocole de détermination de la porosité du dépôt

Pour mesurer le taux de croissance du dépôt de particules et en déduire la porosité, un dispositif, basé sur une méthode trigonométrique laser développée par Bourrous *et al.* (2016) a été amélioré afin de minimiser les incertitudes de mesure. La membrane filtrante repose sur un support poreux parfaitement plan. Lors de la filtration, les particules collectées à la surface de la membrane forment un dépôt dont l'épaisseur augmente au cours du temps. Le suivi de la dérive d'un spot laser projeté avec un angle connu à la surface du dépôt permet de déterminer son épaisseur à chaque instant et d'en déduire son taux de croissance  $T_x$ . Cette technique de mesure, visible en Figure 53, présente l'avantage de déterminer l'évolution de l'épaisseur du dépôt au cours du temps, avec une résolution de  $3 \mu\text{m}/\text{pixel}$  et une incertitude expérimentale de  $5 \mu\text{m}$ .

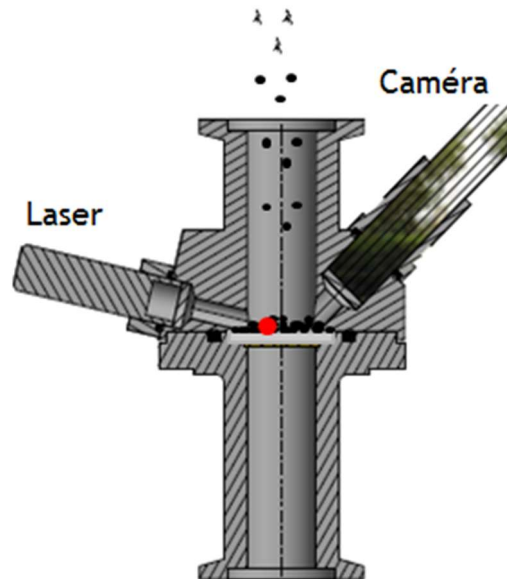


Figure 53 : Schéma de principe du dispositif MEGAPAN

En supposant un dépôt de particules incompressible, hypothèse validée au vu des forces de cohésion des particules nanométriques et de l'évolution linéaire de la perte de charge au cours du temps, l'équation 93 permet de déterminer la porosité du dépôt.

$$\varepsilon = 1 - \left( \frac{m}{\rho_e S_f} \right) = 1 - \left( \frac{1}{\rho T_x S_f} \right) \quad (\text{eq. 93})$$

Où  $\varepsilon$  est la porosité,  $m$  la masse du dépôt mesurée par pesée du filtre avant puis après le dépôt et en parallèle monitorée durant l'expérience par une microbalance TEOM,  $S_f$  la surface de filtration,  $\rho$  la masse volumique des particules générées,  $e$  l'épaisseur du dépôt et  $T_x$  le taux de croissance du dépôt (correspondant à  $\frac{\partial e}{\partial m}$  pour minimiser l'erreur sur la porosité).

Pour déduire le taux de croissance et donc la porosité du dépôt, la connaissance de la masse déposée sur le filtre est primordiale. Pour ce faire, deux méthodes existent. La première consiste à effectuer une pesée du filtre avant et après expérience, que l'on nomme respectivement filtre vierge et filtre chargé. L'inconvénient majeur de cette méthode réside dans la prise d'humidité du filtre une fois à l'air libre. Afin de prendre en compte la variabilité possible de la masse, deux pesées de suite sont réalisées. La seconde méthode, une méthode cette fois-ci in-situ, consiste en l'utilisation d'un TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) permettant une analyse pondérale en temps réel. Son principe est similaire aux microbalances à quartz. En effet, le filtre

interchangeable disposé dans l'instrument oscille à une fréquence précise. Le débit de prélèvement est quant à lui maintenu fixe par l'intermédiaire d'un régulateur de débit massique. Un schéma de principe et une photographie de l'instrument est présenté en Figure 54.

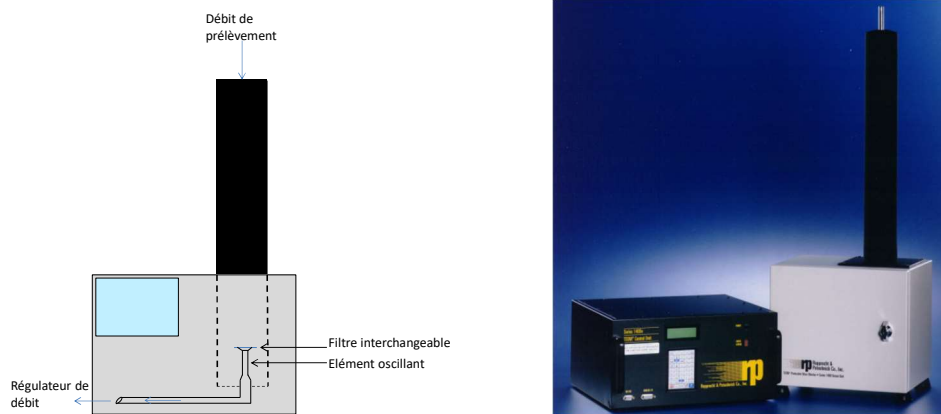


Figure 54 : Schéma de principe et photographie de la microbalance TEOM

Lorsque le filtre accumule des particules, la masse augmente et par conséquent la fréquence diminue. Le circuit électronique entretient l'oscillation à la fréquence propre et convertit cette oscillation en une valeur de masse déposée. Pour l'ensemble des expériences réalisées, une étude comparative a permis de confirmer une très bonne concordance des données issues du TEOM et des pesées sur filtre. De par sa meilleure précision et de son caractère in-situ, les données issues du TEOM seront privilégiées dans le calcul de la porosité.

Deux dispositifs distincts ont été conçus, le principe restant le même. Le premier, visible en Figure 53, est le dispositif simplifié car il a la perspective d'être implanté sur n'importe quel banc d'essai et même dans des expériences à l'échelle réelle.

Le dispositif ULTRAPAN employé pour former et mesurer l'épaisseur des dépôts, est présenté Figure 55. Il est doté de 4 lasers et de 4 caméras, des schémas complémentaires sont disponible en Annexe III. Des vis micrométriques, permettent de modifier l'angle et la cible du pointeur laser sur la membrane. Les lasers sont positionnés en regard de deux diamètres différents de la surface de filtration, comme montré sur la droite de la Figure 56, et permettent de s'assurer de l'homogénéité du dépôt en comparant le taux de croissance des quatre cibles. Un algorithme permet de traiter chaque image afin de minimiser l'erreur de mesure. En effet, durant le colmatage une vidéo de la dérive du spot laser projeté à la surface du dépôt est enregistrée. Cette vidéo est décomposée en images et ces dernières sont converties en niveau de gris et l'intensité des pixels est sommée selon les axes x/y à la direction dans laquelle dérive le faisceau. De plus, une fonction gaussienne est ajustée sur la projection du spot à la surface du médium de manière à compenser la variation d'absorbance du dépôt formé.

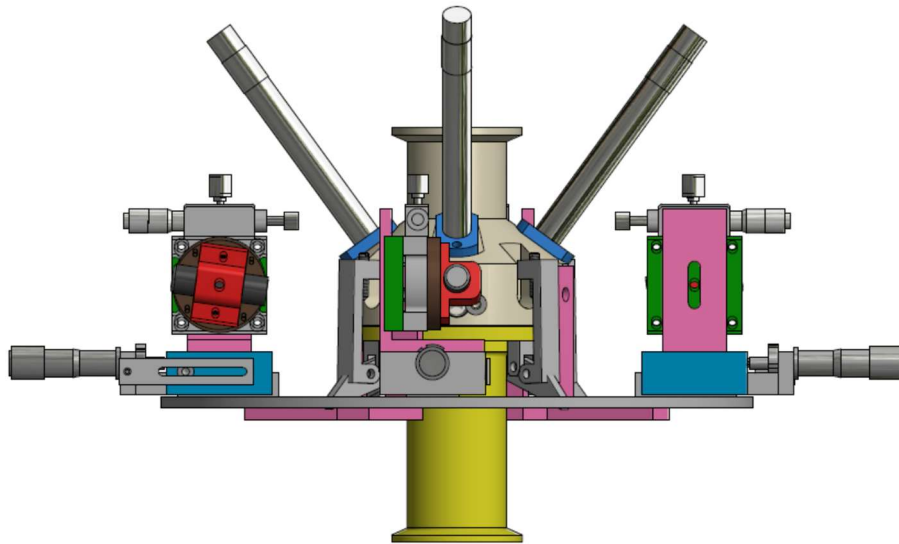


Figure 55 : Modélisation du prototype ULTRAPAN

Afin de s'affranchir du scintillement du laser dû à l'absorption de ce faisceau par les particules, la mesure est intégrée sur plusieurs images. Cela est sans conséquence pour la qualité de la mesure, étant donné le grand nombre d'images disponibles (30 par seconde). La mesure est donc obtenue en sommant l'acquisition sur un pas de temps plus important (supérieur à 1000 images). La Figure 56 représente l'épaisseur déduite de chaque couple laser/caméra du dispositif ULTRAPAN. Quelle que soit la position d'interaction du faisceau laser avec le dépôt, l'épaisseur mesurée s'avère identique, soulignant par la même occasion son homogénéité comme le prouve la valeur proche de 1 du coefficient de détermination.

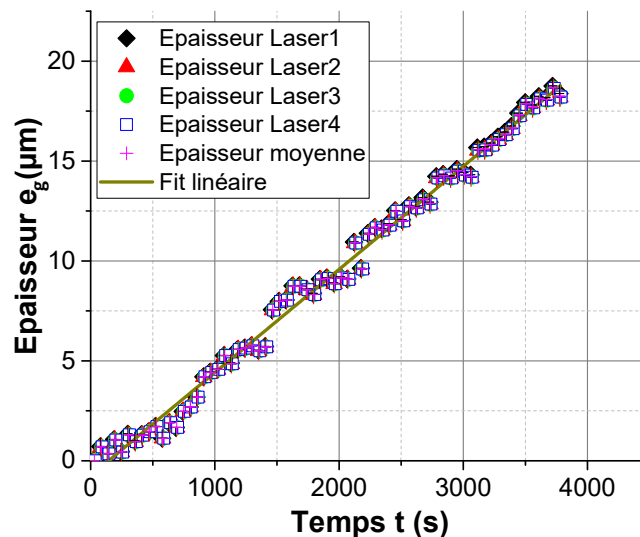


Figure 56 : Mesure de l'épaisseur par les 4 lasers du dispositif ULTRAPAN

Des exemples typiques de courbes expérimentales d'évolution de la perte de charge et de l'épaisseur du dépôt en fonction de la masse surfacique déposée sont représentés sur la Figure 57. La linéarité des courbes obtenues permet de confirmer une nouvelle fois que le dépôt est homogène. La confirmation de cette hypothèse, associée aux conclusions issues de l'analyse de la Figure 56, permet de déterminer une porosité moyenne à partir des mesures locales enregistrées aux quatre points de mesure du dépôt.



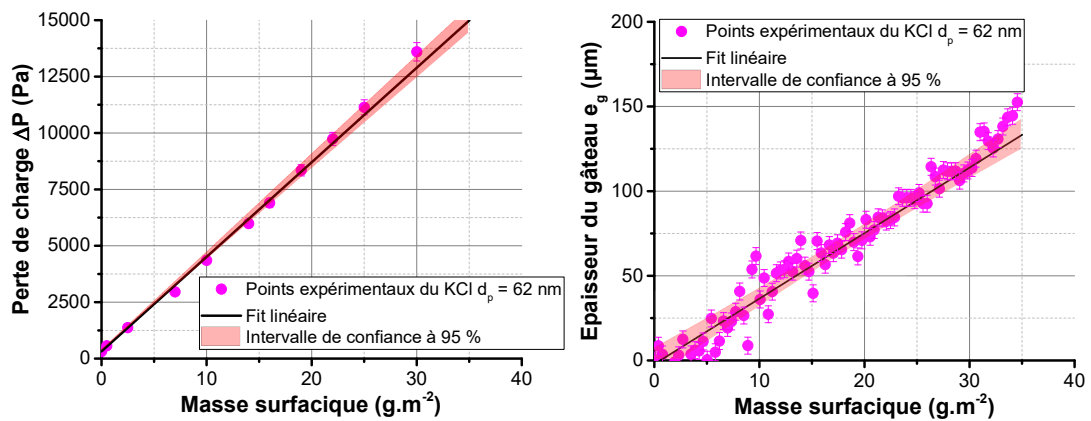


Figure 57: Évolutions respectives, en fonction de la masse surfacique déposée, de la perte de charge (gauche) et de l'épaisseur du dépôt (droite) d'un dépôt de particules sphériques de KCl ayant un diamètre de 62 nm mesurée par MEGAPAN

- Etalonnage

Afin de mesurer correctement le taux de croissance du dépôt, un banc d'étalonnage a été conçu. Le banc présenté en Figure 58 a pour principe de simuler la croissance d'un dépôt à l'aide de vis micrométriques. Le but étant ainsi de comparer la réponse de notre signal optique avec l'épaisseur définie. La Figure 59 résume les valeurs d'épaisseurs imposées et la réponse du dispositif. En moyennant les valeurs d'épaisseurs mesurées par le dispositif MEGAPAN et en les comparant avec les valeurs d'épaisseurs imposées par le comparateur, on obtient une incertitude sur la mesure de l'épaisseur de 6 μm

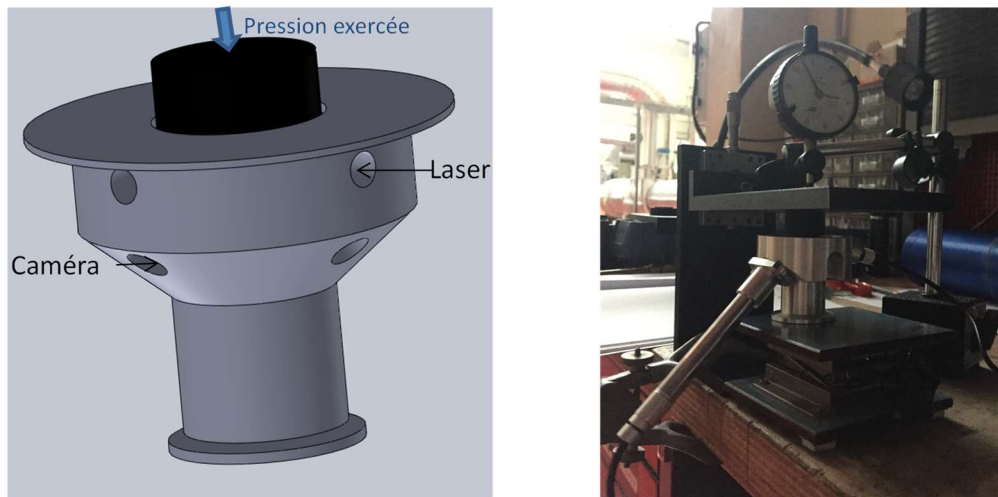


Figure 58 : Schéma et photographie de principe de calibration des dispositifs de mesure de taux de croissance MEGAPAN / ULTRAPAN

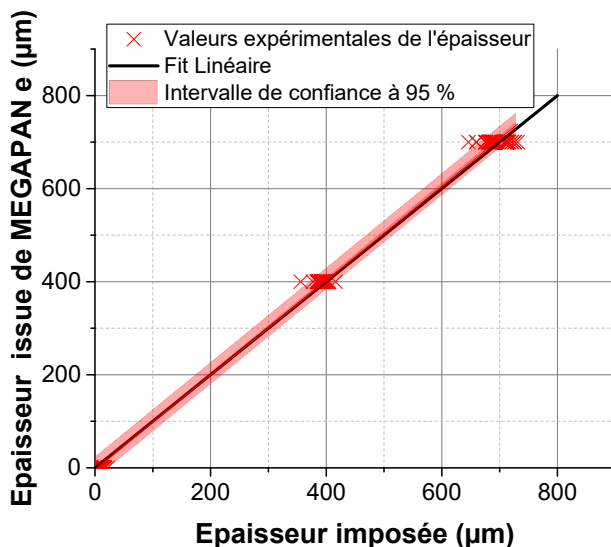


Figure 59 : Graphe de parité entre l'épaisseur mesurée par le dispositif MEGAPAN et l'épaisseur imposée par le comparateur

A partir des valeurs d'épaisseurs imposées et de la réponse du signal, on en déduit le grossissement induit d'une valeur de 6,8. Sur le dispositif ULTRAPAN, la calibration du dispositif sera plus poussée car les angles des lasers sont modifiables. Ainsi chaque angle aura son propre grossissement. En se positionnant sur les axes cardinaux il a été décidé de travailler à 1/3 et 2/3 du rayon comme le montre la Figure 60.

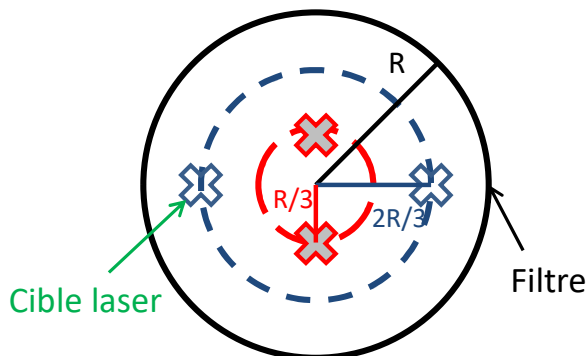


Figure 60 : Schéma des cibles des lasers du dispositif ULTRAPAN

- Validation :

L'objectif de l'installation présentée en Figure 61 est de pouvoir figer le gâteau présent sur le filtre afin de l'étudier sans le modifier, notamment avec la prise d'humidité du dépôt. Cette opération est réalisée, à faible vitesse pour éviter la compression du dépôt, en faisant passer de l'air sec chargé en vapeur de cyanoacrylate au travers du dépôt. L'échantillon ainsi consolidé est ensuite plongé dans une résine pour figer l'ensemble du dépôt ce qui permettra une observation microscopique MEB ou optique de la coupe du dépôt et une mesure de son épaisseur. Valeur qui pourra être comparée aux mesures réalisées avec MEGAPAN/ULTRAPAN.

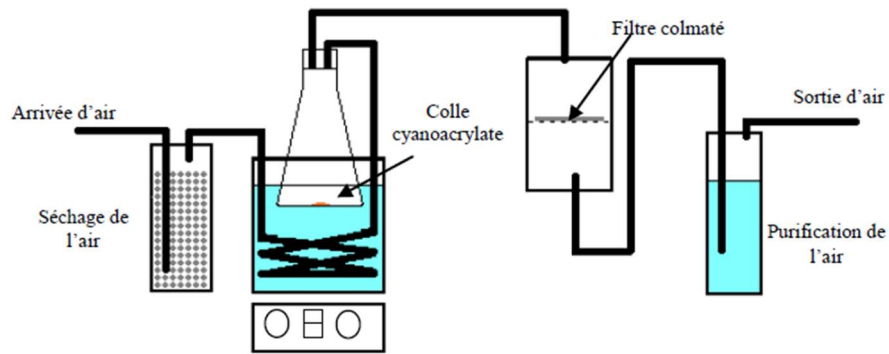


Figure 61 : Schéma du banc expérimental pour figer un dépôt de particules sur filtre plan

La Figure 62 renvoie à une image microscopique en vue de coupe d'un échantillon sous résine. Deux démarcations sont présentes, celle du filtre et enfin celle du dépôt. A noter que l'épaisseur moyenne du filtre est, d'après le constructeur, de 100  $\mu\text{m}$ . Valeur qui est vérifiable avec les figures suivantes.

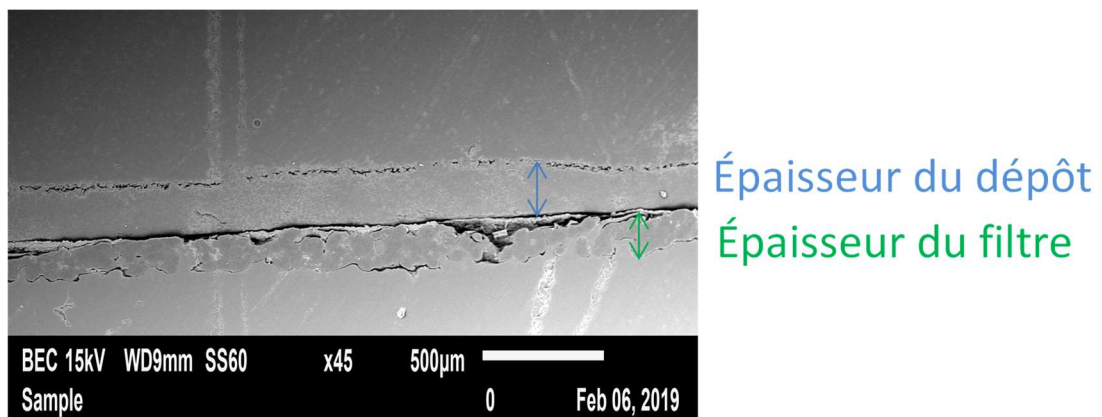


Figure 62 : Image MEB d'une vue large d'un dépôt de nanoparticules de KCl mis sous résine

Les principales sources d'erreur de cette méthode proviennent de la préparation de l'échantillon qui peut altérer directement l'épaisseur du dépôt et le caractère très local de la mesure. En effet, sur un filtre de diamètre 47mm, l'échantillon préparé ne représente qu'un cinquième de la surface du filtre. La valeur de porosité déterminée repose donc sur une hypothèse forte, l'homogénéité du dépôt. Et dans un cinquième, une moyenne de l'épaisseur observée au MEB est effectuée afin de déterminer une valeur de porosité. Un exemple est visible en Figure 63 où un écart de 7  $\mu\text{m}$  est perceptible.

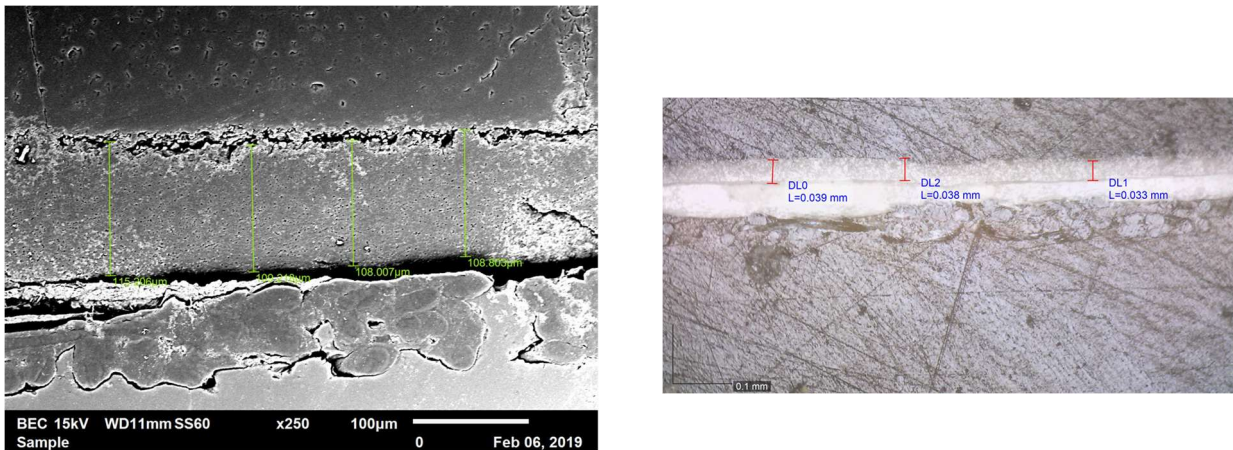


Figure 63 : Image MEB (gauche) et par microscopie optique (droite) pour la mesure d'épaisseur d'un dépôt de nanoparticules de KCl

Le graphe de parité présenté en Figure 64 permet de valider le dispositif MEGAPAN conçu. Une légère surestimation de l'épaisseur mesurée par MEGAPAN est observable mais cela s'explique par les sources d'erreurs précédemment citées en utilisant une méthode ex-situ. En effet, la prise d'humidité est un facteur impactant lourdement la mesure par microscopie.

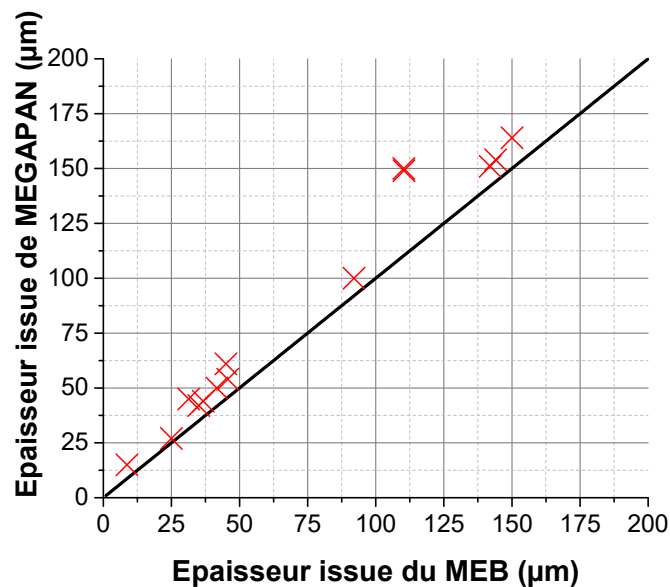


Figure 64 : Graphe de parité entre l'épaisseur MEGAPAN et l'épaisseur MEB

Concernant le dispositif ULTRAPAN, la même démarche a été réalisée. Cette étape de validation du dispositif a également permis de valider une hypothèse forte de notre étude : l'homogénéité du dépôt. En effet, ULTRAPAN, par ses vis micrométriques, permet un ciblage du taux de croissance sur deux axes perpendiculaires. Comme cité précédemment, sur chaque axe, un ciblage à 1/3 et 2/3 du rayon a été réalisé. A partir du même aérosol (carbone issue du GFG-1000) et dans les mêmes conditions opératoires ( $U_f = 1 \text{ cm.s}^{-1}$ ), des expériences ont permis de comparer la valeur d'épaisseur obtenues sur ces 8 points bien distincts. La Figure 65 schématise les cibles des épaisseurs obtenues lors de la répétition d'une expérience et le Tableau 18 regroupe les valeurs des épaisseurs et de porosités déduites.

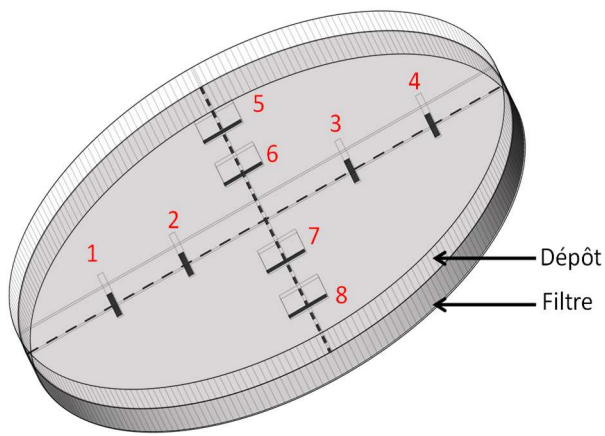


Figure 65 : Schéma de l'homogénéité d'un dépôt de nanoparticules de carbone

| Numéro | Épaisseur ( $\mu\text{m}$ ) | $\epsilon$ (-) |
|--------|-----------------------------|----------------|
| 1      | 47                          | 0,946          |
| 2      | 52                          | 0,951          |
| 3      | 50                          | 0,949          |
| 4      | 48                          | 0,947          |
| 5      | 51                          | 0,950          |
| 6      | 50                          | 0,949          |
| 7      | 50                          | 0,949          |
| 8      | 48                          | 0,947          |

Tableau 18 : Valeurs de l'épaisseur du dépôt et de la porosité déduite

Les calculs d'incertitudes sur la mesure de la porosité sont disponibles en Annexe IV.

### 3.1.3. Protocole pour faire varier les conditions opératoires

En plus du banc expérimental « vitesse constante et basse pression » schématisé en Figure 52, une autre méthode a été mise en place afin d'étudier l'influence du libre parcours moyen. En effet, pour rendre compte de l'influence du transport des particules, deux autres gaz porteurs ont été utilisés à la place de l'air : l'hélium et l'argon. Le choix de ces différents gaz permettra d'observer l'influence du libre parcours moyen mais également de la viscosité dynamique comme le montrent les valeurs du Tableau 19.

| Gaz porteur | $d_m$ (nm) | Libre parcours moyen $\lambda$ (nm) | Viscosité dynamique $\eta$ (Pa.s) |
|-------------|------------|-------------------------------------|-----------------------------------|
| Air         | 62         | 66,5                                | $1,83 \cdot 10^{-5}$              |
| Hélium      | 85         | 192                                 | $1,99 \cdot 10^{-5}$              |
| Argon       | 97         | 69,4                                | $2,22 \cdot 10^{-5}$              |

Tableau 19 : Caractéristiques des gaz porteurs utilisés

Ces expériences ont été réalisées pour un même type d'aérosol, à savoir le KCl de 62 nm. Le changement de fluide porteur entraîne également une variation dans le diamètre de mobilité mesuré. Le banc expérimental en condition standard est utilisé et seule la vitesse varie.

## 3.2. Colmatage d'un filtre plissé par un aérosol de suie

### 3.2.1. Présentation des deux bancs expérimentaux

Afin de prendre en compte la géométrie des filtres plissés, deux bancs d'essais ont été utilisés dans le but de colmater en parallèle un filtre plan et un filtre plissé avec des particules de suies issues d'un incendie. Un schéma simplifié est visible Figure 66 et permet de mettre en évidence l'analyse en parallèle d'un filtre plan et d'un filtre plissé. Les bancs CATFISH et RAFALES seront décrits en détails ultérieurement.

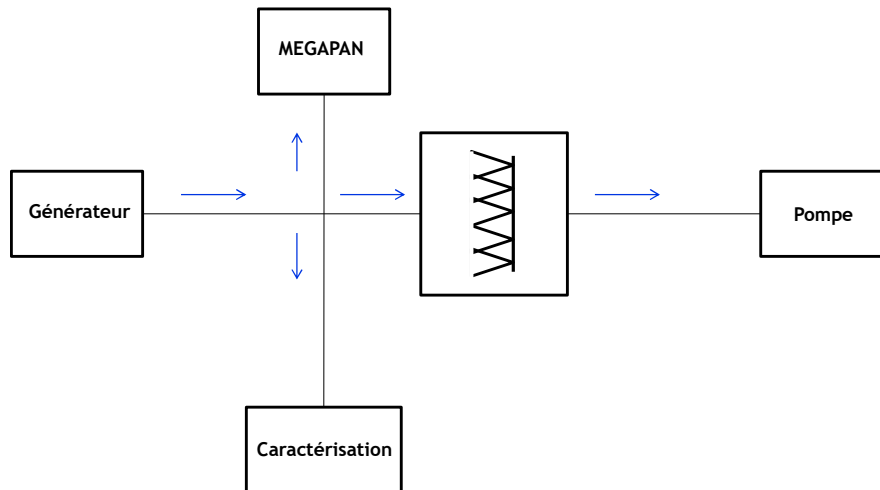


Figure 66 : Schéma simplifié du banc expérimental en condition plissé

### 3.2.2. Installation CATFISH

Le banc d'essais CATFISH (Caractérisation AnalyTique de la Filtration Sous Humidité, Artous 2005) présenté sur la Figure 67, offre la possibilité de contrôler le débit sur une plage s'étendant de 15 à 200 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup>.

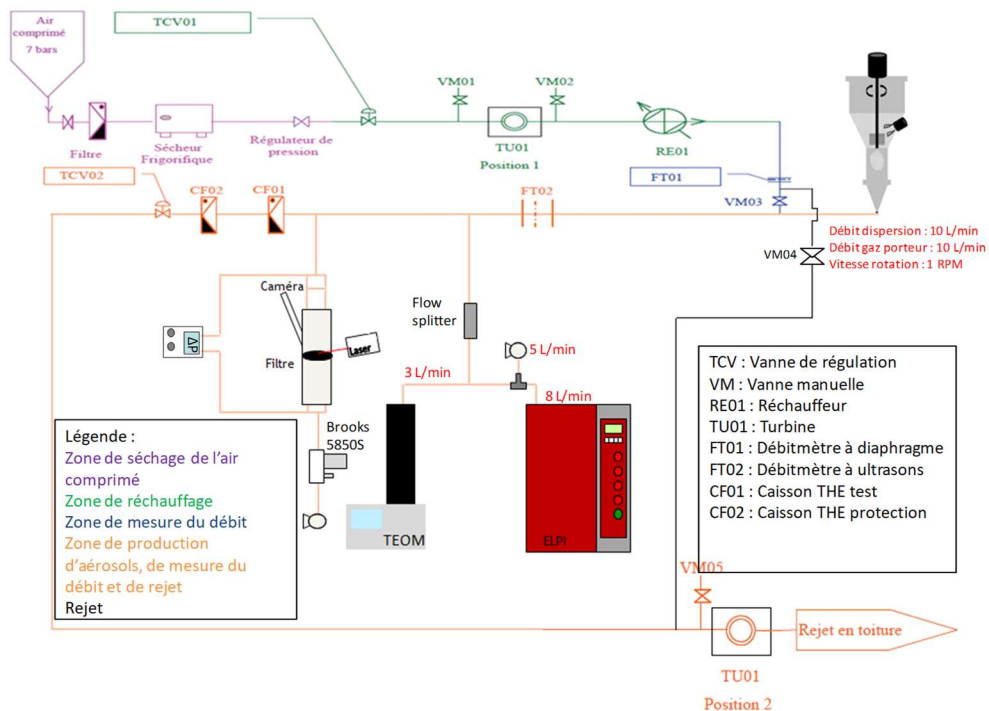


Figure 67 : Schéma expérimental du banc expérimental CATFISH

Tout d'abord, l'air comprimé filtré est séché puis traverse une vanne de régulation TCV01 qui a pour rôle de maintenir une pression relative nulle à l'entrée du réseau de ventilation. Une première longueur droite stabilise l'écoulement et permet une mesure du débit par l'intermédiaire d'un diaphragme FT01. L'air circule alors, soit par le bipasse vers un rejet en toiture, soit vers l'équipement à tester. La seconde longueur droite permet la production d'aérosol dans des conditions de concentrations homogène dans la section d'essai en amont du filtre, ainsi qu'une mesure du débit de l'effluent par ultrasons FT02. L'air atteint ensuite le caisson de filtration et passe au travers le filtre de test, puis à travers un filtre de protection et une seconde vanne de régulation TCV02. Celle-ci compense, en s'ouvrant progressivement, l'augmentation de la perte de charge due au colmatage du filtre. Cette vanne de régulation garantit un débit de filtration constant sur le filtre testé. Deux caissons de filtration amovibles de différentes dimensions sont disponibles selon le filtre testé : 300x300 mm<sup>2</sup> ou 150x150 mm<sup>2</sup>, l'ensemble de la tuyauterie en amont du caisson de filtration est de diamètre 80 mm.

### 3.2.3. Installation RAFALES

Le banc d'essai RAFALES (Réseau Aéraulique appliqué à la Filtration des Aérosols En Série) est une installation expérimentale principalement dédiée à l'étude de l'efficacité de filtres montés en série dans les réseaux de ventilation (Figure 68). Il présente une veine aéraulique en dépression permettant de véhiculer à température ambiante des débits d'air de 10 à 50 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup> ou de 50 à 500 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup>. L'avantage de ce banc réside dans l'intégration de caissons de filtration dans lesquels peuvent être implantés des filtres industriels plissés de 0,4 à 7 m<sup>2</sup> de surface.

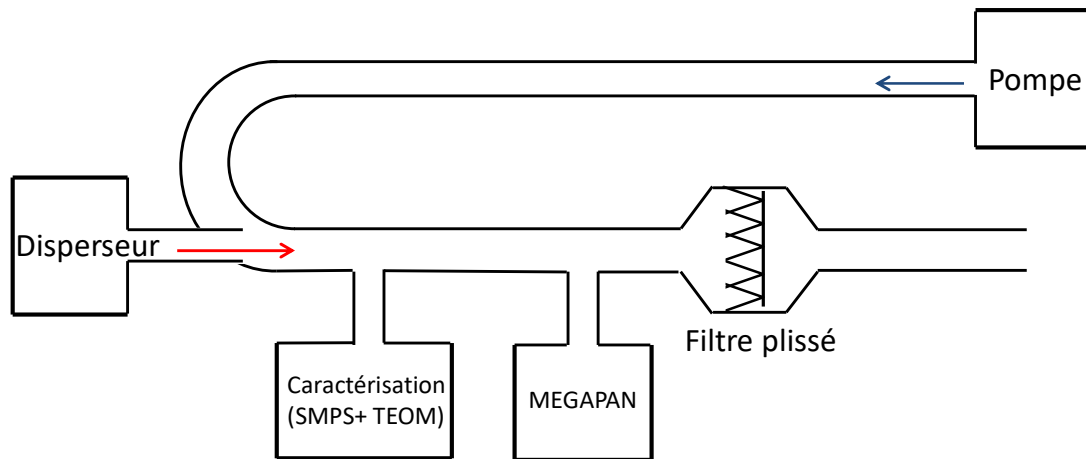


Figure 68 : Schéma simplifié du banc expérimental RAFALES

### 3.2.4. Filtres testés

Les filtres testés sont de dimensions différentes et ne présentent pas la même hauteur de pli. Le Tableau 20 présente les dimensions et les surfaces de filtration des différents filtres étudiés, ainsi que le débit nominal de ces filtres. Cette dernière caractéristique est utilisée par les constructeurs de filtres plissés ; il correspond au débit pour lequel la perte de charge du filtre est voisine de 250 Pa et également d'une vitesse de filtration comprise entre 2,5 et 3  $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ .

| Filtre                    | Dimensions (m×m) | Surface de filtration (m <sup>2</sup> ) | Débit nominal (m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup> ) |
|---------------------------|------------------|---|--|
| h = 27,5 mm<br>p = 2,7 mm | 0,3×0,3          | 2,39                                    | 127  |
|                           |                  |   | 27   |
| h = 27,5 mm<br>p = 2,1 mm | 0,15×0,15        | 0,59                                    | 43   |

Tableau 20 : Grandeurs caractéristiques des filtres plissés testés

## 4. RESUME

L'aérodynamique des filtres plissés est un facteur important qui conditionne l'évolution des performances des filtres au cours du colmatage. La morphologie de l'aérosol rencontré est également un facteur déterminant dans la construction du dépôt, notamment pour des particules nanostructurées. Aucune étude expérimentale systématique n'a été réalisée dans ce sens. Pour y remédier, une démarche structurée par étape est proposée. Le Tableau 21 résume les conditions opératoires utilisées dans notre étude.



| Banc expérimental | Filtre | Type d'aérosols | $U_f$ (cm.s <sup>-1</sup> ) | T (°C)  | Rh (%)  | Pression (Pa)                    | Pe (-)        |
|-------------------|--------|-----------------|-----------------------------|---------|---------|----------------------------------|---------------|
| SOFA              | Plan   | Sphérique       | 0,04 à 66                   | 24 à 30 | 30 à 33 | 50 000 et pression atmosphérique | 0,01 à 23     |
|                   |        | Agrégats        | 0,16 à 5875                 |         |         | Pression atmosphérique           | 0.0027 à 1666 |
| CATFISH           | Plissé |                 | 0,16 à 66                   |         |         | Pression atmosphérique           | 1 à 531       |
| RAFALES           |        |                 |                             |         |         |                                  |               |

Tableau 21 : Récapitulatif des conditions opératoires pour chaque banc utilisé

De ce fait, deux dispositifs expérimentaux ont été conçus pour mesurer un taux de croissance et en déduire une valeur de porosité d'un dépôt de nanoparticules. La démarche scientifique choisie permet une étude par étape. En effet, dans un premier temps l'étude sur filtre plan se consacrera aux influences du transport des particules sur la porosité lors du colmatage de filtres THE. Pour ce faire, des aérosols pseudo-sphériques ont été choisis et l'étude se fait sur filtre plan. Dans un second temps, l'étude se consacre à l'influence des paramètres morphologiques de l'aérosol avec notamment l'effet du diamètre des particules primaires, de leur nombre et de la dimension fractale d'un agrégat. La dernière étape se rapprochera du cas visé (suie), avec l'étude sur filtre plissé pour mettre en évidence l'influence de la géométrie d'un filtre THE et la création d'un cône de vide lors de la construction du dépôt. Un récapitulatif des caractéristiques des aérosols utilisés au cours de l'étude est résumé dans le Tableau 22 pour les sphères et dans le Tableau 23 pour les particules nanostructurées.

| Aérosol | Gaz porteur | $d_m$ (nm) | $\sigma_g$ (-) | $\rho$ (kg/m <sup>3</sup> ) | $\lambda$ (nm) | $\mu$ (Pa.s)         |
|---------|-------------|------------|----------------|-----------------------------|----------------|----------------------|
| KCl     | Air         | 62         | 1,84           | 1980                        | 66,4           | $1,81 \cdot 10^{-5}$ |
|         |             | 87         | 1,84           |                             |                |                      |
|         |             | 108        | 1,89           |                             |                |                      |
|         | Hélium      | 85         | 1,72           |                             | 191,5          | $1,99 \cdot 10^{-5}$ |
|         | Argon       | 97         | 1,77           |                             | 66,9           | $2,22 \cdot 10^{-5}$ |
| CsCl    | Air         | 62         | 1,75           | 3990                        | 66,4           | $1,81 \cdot 10^{-5}$ |
| Latex   |             | 64         | 1,1            | 1050                        |                |                      |

Tableau 22 : Récapitulatif des caractéristiques des aérosols pseudo-sphériques générés

| Générateur | Aérosol   | $d_m$ (nm) | $\sigma_g$ (-) | $\rho$ (kg/m <sup>3</sup> ) | $d_{pp}$ (nm) | $N_{pp}$ (-) | $D_f$ (-) | $k_f$ (-) |
|------------|-----------|------------|----------------|-----------------------------|---------------|--------------|-----------|-----------|
| GFG-1000   | Carbone   | 101        | 1,48           | 2000                        | 7             | 760          | 1,81      | 1,8       |
|            |           | 132        | 1,5            |                             |               | 1111         |           |           |
|            |           | 165        | 1,6            |                             |               | 2584         |           |           |
|            | Aluminium | 48         | 1,48           | 3950                        | 16            | 10           | 1,35      |           |
|            |           | 84         | 1,51           |                             |               | 20           |           |           |
|            |           | 117        | 1,51           |                             |               | 42           |           |           |
|            | Cuivre    | 31         | 1,63           | 6310                        | 2             | 454          | 1,63      |           |
|            |           | 77         | 1,48           |                             |               | 4275         |           |           |
|            |           | 108        | 1,52           |                             |               | 12333        |           |           |
|            | Titane    | 68         | 1,56           | 4230                        | 3             | 1588         | 1,69      |           |
|            |           | 112        | 1,54           |                             |               | 5501         |           |           |
|            |           | 131        | 1,55           |                             |               | 6672         |           |           |
|            | Argent    | 10         | 1,3            | 7140                        | 2             | 4            | 1,8       |           |
|            |           | 50         | 1,33           |                             |               | 66           |           |           |
|            | CAST      | Suie       | 190            | 1,3                         | 1543          | 25           | 520       |           |
| Argonaut   | 114       |            | 1,7            | 1650                        | 50            | 261          | 1,8       |           |
| Disperseur | 230       |            | 1,8            | 1650                        | 50            | 35           | 1,8       |           |

Tableau 23 : Récapitulatif des caractéristiques des aérosols nanostructurés générés

Les résultats expérimentaux devront permettre d'établir un modèle semi-empirique de la porosité d'un dépôt de nanoparticules. A l'heure actuelle, ce paramètre est défini arbitrairement dans tous les modèles de colmatages. Le but étant, in fine, d'aboutir à un modèle phénoménologique de la porosité d'un dépôt de nanoparticules.

## **CHAPITRE III : DEPOTS DE NANOPARTICULES FORMES PAR FILTRATION**

### **1. INTRODUCTION**

Dans la majorité des applications mettant en jeu des nanoparticules, la question de la maîtrise des propriétés des films formés (notamment en termes de porosité) reste ouverte. Ces applications couvrent des domaines très larges allant de la fabrication de nano films à la prédiction de la perte de charge des films de nanoparticules formés à la surface des filtres destinés à l'épuration de l'air. Au-delà du dimensionnement d'équipements de filtration en utilisation normale, l'évaluation du maintien du confinement aéraulique dans des installations sensibles en cas d'incendie (conduisant au rejet de nanoparticules de suie) nécessite le développement de modèles prédictifs de la porosité de ces dépôts. Il ressort d'une étude bibliographique que la porosité de dépôts de particules nanométriques a été essentiellement étudiée par simulation numérique. Les rares études expérimentales se sont focalisées sur des particules microniques ou sur des agrégats de nanoparticules dans des conditions opératoires limitées.

La présente étude a donc pour objectif de confirmer les résultats de porosité de dépôts de particules nanométriques obtenus par simulation et de corrélérer la porosité à un ou plusieurs nombres adimensionnels pertinents. De ce fait, nos expériences vont couvrir une large gamme de nombres de Péclet et de Stokes variant respectivement de  $10^{-2}$  à  $10^2$  et de  $10^{-3}$  à 10. Cette large gamme d'étude du nombre de Péclet permet d'isoler la contribution de la diffusion et de l'inertie des particules. Les essais ont porté sur des natures de particules nanométriques et des conditions opératoires différentes, afin de balayer les paramètres les plus pertinents :

- masse volumique comprise entre 1000 et 4000 kg.m<sup>-3</sup>
- diamètre moyen des particules compris entre 60 et 110 nm
- vitesse de filtration comprise entre 0,04 et 66 cm.s<sup>-1</sup>
- libres parcours moyen du gaz vecteur entre 66 et 192 nm

Le présent travail vise à étudier expérimentalement et de manière systématique la porosité d'un dépôt de particules sphériques, par le biais d'expériences analytiques avec une production de particules contrôlée. Les particules de morphologie plus complexe seront uniquement prises en considération dans la seconde partie de cette étude.

### **2. BANC AERAILIQUE**

L'objectif principal de chaque expérience est de déterminer la porosité d'un dépôt de nanoparticules sphériques formé par filtration. Le montage expérimental utilisé est le banc SOFA décrit dans le chapitre précédent. Il vise à mesurer simultanément la différence de pression entre l'amont et l'aval du filtre ainsi que le taux de croissance (rapport de la variation de l'épaisseur sur la variation de la masse du dépôt) du dépôt de particules. Ces dépôts sont issus de la filtration de différents aérosols de particules nanométriques non agglomérées, polydispersées et générées par dispersion pneumatique (atomiseur TSI 3076, 1 bar) d'une suspension colloïdale (PSL) ou de solutions de sels (KCl ou CsCl). L'aérosol produit est séché (Diffusion Dryer 3060-NC TSI) et caractérisé en termes de distribution granulométrique à l'aide d'un SMPS (Grimm 5.403). La concentration massique de l'aérosol a été déterminée à l'aide d'une microbalance TEOM 50 et par

des pesées successives du filtre vierge et du filtre à l'issue du dépôt à l'aide d'une balance de précision (Sartorius MSA125P-000-DA). Le dépôt est formé à la surface de membranes poreuses en PTFE (Merck FSLW, taille moyenne des pores 3  $\mu\text{m}$ , diamètre des membranes 25 ou 47 mm) pour lesquelles la pénétration des particules en profondeur reste limitée. Ces filtres présentent des diamètres utiles de filtration de 17 mm ou 36 mm soit des surfaces utiles de filtration de 10,18  $\text{cm}^2$  ou 22,70  $\text{cm}^2$ .

Différentes conditions expérimentales, représentatives de configurations réalistes de filtration et de dépôt de nanoparticules, ont été considérées. En conséquence, le banc expérimental a dû être modifié en fonction du but visé :

- *Vitesse constante* (température ambiante et pression ambiante) pour observer l'influence de la vitesse de filtration, du diamètre de particules et de la masse volumique.

- *Vitesse constante et basse pression* pour souligner l'influence du libre parcours moyen. Les instruments de caractérisation n'étant pas adaptés à ces conditions expérimentales (SMPS et TEOM), ils ont donc été isolés du reste du montage expérimental. Dans la configuration dite "basse pression", les essais ont été réalisés dans les mêmes conditions que dans la configuration "standard" afin de préserver les caractéristiques mesurées et pouvoir ensuite les comparer.

Un ressort à clapet permet de diminuer la pression en l'amont du filtre à une valeur de 50 000 Pa. Cette pression, contrôlée tout au long de l'essai, influe sur le libre parcours moyen de l'air. Ce dispositif a permis de l'augmenter de 66 nm, à pression ambiante, à 135 nm.

- *Filtration dynamique des particules* pour étudier l'évolution de la porosité en fonction de la vitesse de filtration. En effet, lors d'un apport important de particules, le débit à travers le filtre diminue en raison de l'augmentation de la résistance à l'écoulement. Deux types d'expériences ont été menés. Le premier en imposant une fuite calibrée (perte de charge constante du dépôt) mesurée tout au long de l'expérience. La seconde en diminuant manuellement le débit au cours de l'expérience après stabilisation de la courbe du taux de croissance du dépôt de particules ; la valeur du débit initial correspondant à la vitesse de filtration la plus élevée (11,1  $\text{cm/s}$  équivalent à un nombre de Peclet proche de 10).

Pendant les expériences, la température ainsi que la pression de la pièce ont été mesurées sans être imposées.

### 3. POROSITE D'UN DEPOT DE NANOPARTICULES SUR FILTRE PLAN

#### 3.1. Particules pseudo-sphériques

En accord avec les précédents travaux de la littérature, nous représenterons la porosité expérimentale d'un dépôt de particules sphériques en fonction du nombre de Péclet. En faisant varier les caractéristiques de l'aérosol généré et les conditions d'écoulement, une large gamme de nombres de Peclet a pu être balayée (de  $10^{-2}$  à  $10^2$ ). La précision sur la détermination de la porosité et sur le nombre de Péclet est disponible en Annexe IV.

L'ensemble des essais réalisés est résumé dans le Tableau 24.

| Aérosol | $d_m$ (nm) | $\sigma_g$ (-) | $\rho$ (kg/m <sup>3</sup> ) | $U_f$ (cm/s) | $m_s$ (g/m <sup>2</sup> ) | $t_f$ (s)    | $\Delta P$ (Pa) | $Pe$ (-)   | $\varepsilon$ (%) |
|---------|------------|----------------|-----------------------------|--------------|---------------------------|--------------|-----------------|------------|-------------------|
| KCl     | 62         | 1,84           | 1980                        | 0,08 à 66    | 3,16 à 45,43              | 6209 à 53964 | 25 à 16000      | 0,19 à 17  | 92 à 98,9         |
|         | 87         | 1,84           |                             | 0,16 à 59    | 11,26 à 91,25             | 3472 à 54719 | 46 à 17384      | 0,3 à 75   | 84 à 96,9         |
|         | 108        | 1,89           |                             | 0,08 à 55    | 13 à 270,15               | 70 à 52871   | 21 à 19993      | 0,29 à 100 | 91 à 97,9         |
| Latex   | 64         | 1,1            | 1050                        | 0,7 à 37     | 0,9 à 9                   | 1600 à 20000 | 60 à 14000      | 0,3 à 15,7 | 85 à 99           |
| CsCl    | 62         | 1,75           | 3970                        | 0,04 à 59    | 4,5 à 45,13               | 300 à 3871   | 313 à 19876     | 0,01 à 23  | 84 à 97           |

Tableau 24 : Résultats expérimentaux dans les cas « extrêmes »

La Figure 69 regroupe l'ensemble des porosités mesurées pour les différents dépôts étudiés. Pour chacun des essais, l'évolution de la porosité en fonction du nombre de Peclet suit une sigmoïde inversée. Cette évolution peut être divisée en 3 zones :

- La zone de diffusion ( $0,01 < Pe < 0,1$ ), où le phénomène de diffusion prédomine, est caractérisée par une porosité constante. On notera que dans ce domaine, au vu des limites expérimentales (impossible d'imposer une vitesse de filtration  $< 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ ), aucune mesure de porosité n'a pu être faite en dessous d'un nombre de Peclet significativement inférieur à 0,01 et nous limiterons donc nos conclusions à cette gamme de nombres de Peclet pour laquelle la porosité est comprise entre 96 % et 98 %.

- La zone de transition ( $0,1 < Pe < 10$ ), où le phénomène de diffusion n'est plus dominant et qui est caractérisée par une forte décroissance de la porosité avec le nombre de Peclet. Dans cette zone, la porosité varie fortement entre 84 % et 97,5 %. On peut de plus noter une dispersion significative des valeurs de porosité dans cette zone, soulignant ainsi que la porosité n'est pas une simple fonction du nombre de Peclet.

- La zone balistique ( $Pe > 10$ ), où l'inertie des particules domine, est caractérisée par une porosité constante. Dans ce domaine l'ensemble des points se concentre autour d'une valeur de porosité de 84 %, en accord avec les simulations de Mädler *et al.* (2006) et de Lindquist *et al.* (2014).

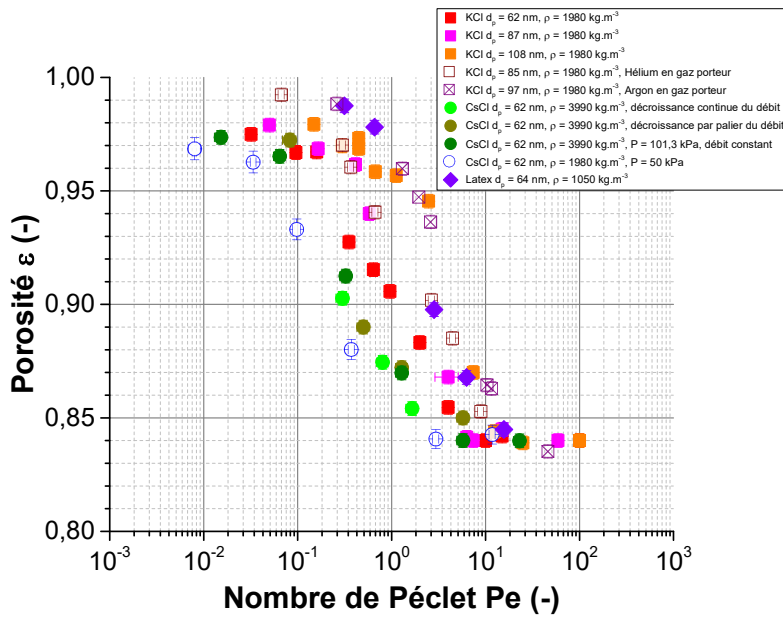


Figure 69 : Évolution, en fonction du nombre de Péclet, de la porosité de dépôts de particules sphériques formés sous différentes conditions

3.1.1. Influence du diamètre de particule

La Figure 70 présente l'évolution, en fonction du nombre de Péclet, de la porosité d'un dépôt de nanoparticules de KCl pour des diamètres géométriques de mobilité électrique de l'aérosol de 62, 87 et 108 nm. On notera que pour chacun des diamètres géométriques considérés, le nombre de Péclet ne dépend ici que de la vitesse de filtration.

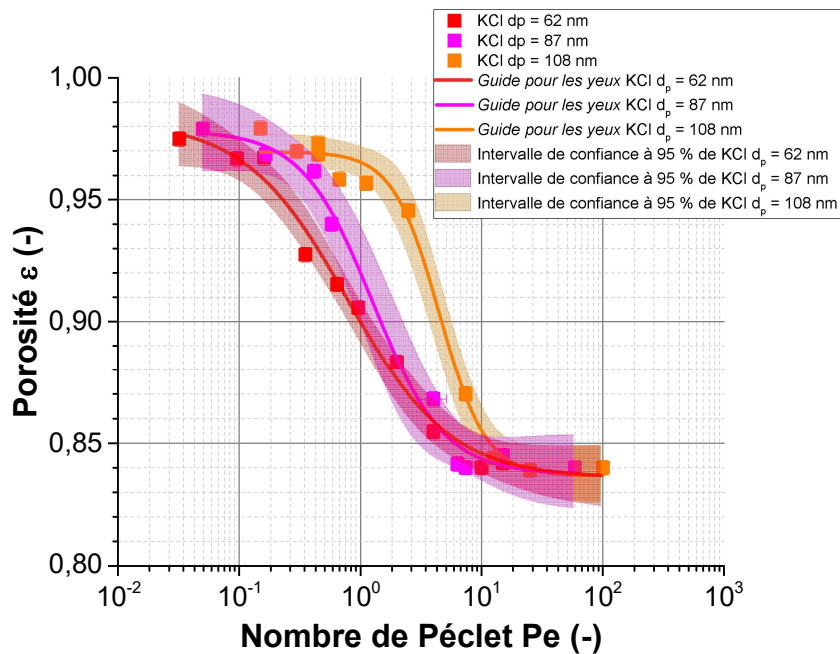


Figure 70 : Influence du diamètre de particule sur la porosité de dépôt de nanoparticules de KCl

| $d_p$ (KCl) (nm) | $\varepsilon_{lim_{dif}}$ | $\varepsilon_{lim_{bal}}$ |
|------------------|---------------------------|---------------------------|
| 62               | 0,977                     | 0,838                     |
| 87               | 0,978                     | 0,837                     |
| 108              | 0,982                     | 0,842                     |

Tableau 25 : Valeurs limites des porosités dans les zones diffusionnelle et balistique

En reprenant une courbe sigmoïde inversé ajusté aux points expérimentaux et en extrayant les valeurs de porosité limite au niveau des paliers diffusionnel ( $\varepsilon_{lim_{dif}}$ ) et balistique ( $\varepsilon_{lim_{bal}}$ ) pour chaque diamètre étudié (Tableau 25), il est possible de quantifier l'influence du diamètre sur la porosité. La Figure 71 reprend les valeurs de porosité d'un même aérosol (KCl) dans chacun des domaines. Ce graphe permet de mettre en évidence l'impact important de la taille des particules sur les valeurs de porosité dans les régimes extrêmes.

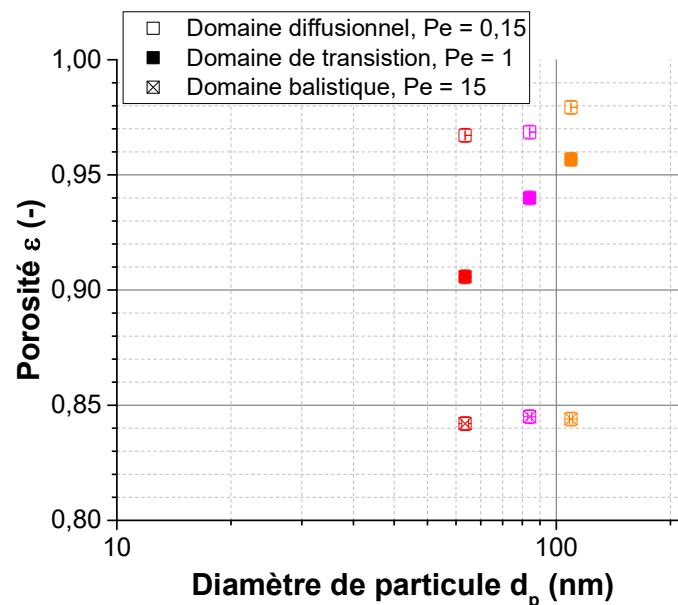


Figure 71 : Évolution de la porosité selon le domaine d'étude

Ainsi, dans la zone diffusionnelle, une élévation du diamètre de particule entraîne une augmentation peu significative de la porosité. Néanmoins, cette augmentation de porosité, bien qu'en accord avec les simulations de Mädler *et al.* (2006), nous laisse supposer une valeur limite de porosité à 98 %.

Dans la zone balistique, la porosité mesurée est constante, proche de 84 % quel que soit le diamètre géométrique des particules. Le diamètre des particules n'a aucune influence sur la porosité d'un dépôt de particules sphériques pour un nombre de Péclet supérieur à 10. Ces résultats expérimentaux valident les conclusions issues des simulations de Mädler *et al.* (2006) et Lindquist *et al.* (2014) et sont en bon accord avec les valeurs de porosités de Ou (2013), déduites de la corrélation empirique de la porosité proposée par Yu *et al.* (2003).

Dans la zone de transition, en accord avec les résultats de Mädler *et al.* (2006), pour un même nombre de Péclet, la porosité augmente avec le diamètre des particules. Pour un nombre de Péclet de 1, la porosité mesurée est de 0,896, 0,919 et 0,954 pour respectivement un diamètre de particule de 62, 87 et 108 nm.

### 3.1.2. Influence de la masse volumique

La Figure 72 présente l'évolution des valeurs de porosité en fonction du nombre de Péclet d'un dépôt de particules de CsCl et KCl de même diamètre géométrique mais présentant des masses volumiques significativement différentes (ici un ratio de masse volumique proche de 2).

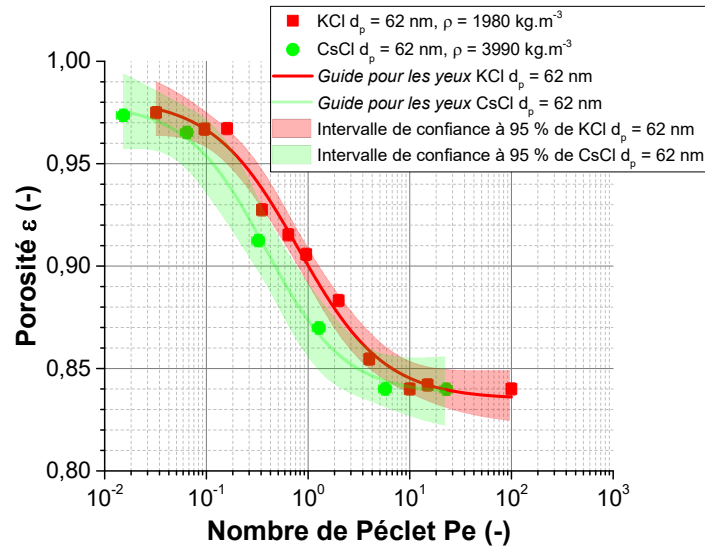


Figure 72 : Influence de la masse volumique sur la porosité de dépôt de nanoparticules de même diamètre géométrique

Les valeurs de porosité d'un dépôt de CsCl et KCl sont identiques dans les domaines balistique et diffusionnel. En revanche, dans la zone de transition, une masse volumique plus élevée entraîne une diminution de porosité. Cette différence peut également être liée à la forme des particules. En effet, comme le montre les images issues de microscopie MET en Figure 73, les particules de CsCl sont parfaitement sphériques alors que celle de KCl sont cubiques.

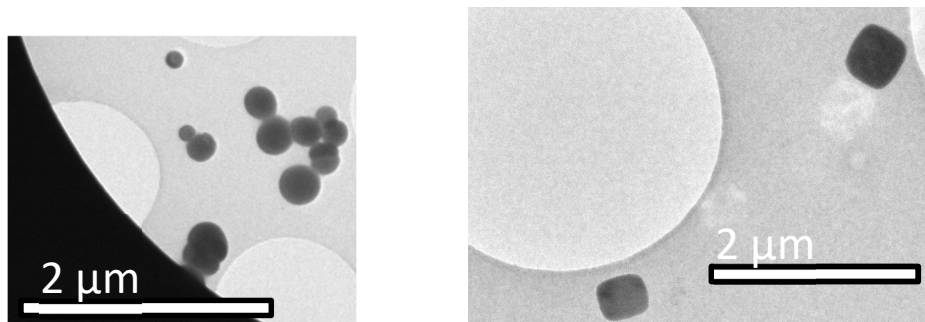


Figure 73 : Image TEM de particules de CsCl (gauche) et de KCl (droite)



### 3.1.3. Influence de la polydispersion des particules

Le chapitre I a mis en évidence les lacunes existantes concernant la porosité des dépôts de nanoparticules avec notamment la forte existence de simulation numérique et le peu de résultats expérimentaux systématiques. Ces simulations numériques font toutes l'hypothèse d'un dépôt formé de particules monodispersées, qui n'est pas représentatif de la réalité et de nos expériences. De ce fait, des expériences avec des aérosols calibrés de type PSL (bille de latex) va permettre de jauger l'influence de la polydispersion des particules. Ainsi la Figure 74 compare l'évolution de la porosité en fonction du nombre de Péclet pour des aérosols de même diamètre géométrique mais plus ou moins polydispersés. Les différences portent sur la polydispersion des particules et sur la masse volumique de l'aérosol. Le précédent paragraphe (4.1.2.) met en évidence l'influence de ce dernier paramètre.

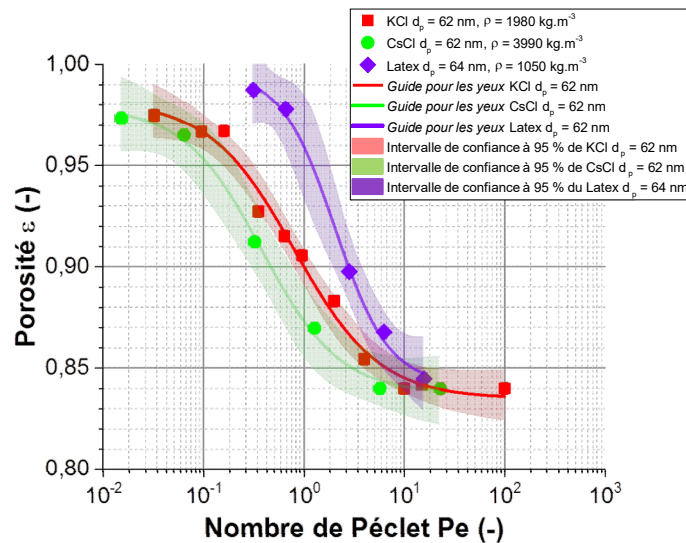


Figure 74 : Influence de la polydispersion des particules sur la porosité du dépôt

Dans le domaine balistique une porosité de 84 % semble se confirmer quels que soient les différents aérosols testés. Il est expérimentalement compliqué d'obtenir des résultats dans le domaine diffusionnel, mais la porosité du dépôt de particules monodispersées semble tendre vers une porosité avoisinant les 99 %.

Dans la zone de transition, l'aérosol monodispersé (billes de latex) génère une porosité bien plus importante que pour des particules de KCl ou CsCl avec des valeurs proches de 97 % pour un nombre de Péclet proche de 1 contre 91 % pour du KCl et 88 % pour du CsCl. Le Tableau 26 indique les valeurs de la pente obtenue.

| Aérosol | $\sigma_g$ (-) | Pente transition |
|---------|----------------|------------------|
| KCl     | 1,84           | -0,312           |
| CsCl    | 1,75           | -0,430           |
| Latex   | 1,1            | -0,953           |

Tableau 26 : Valeurs des pentes mesurées de la porosité du dépôt dans la zone de transition

L'évolution de la pente (Figure 75) en fonction de l'écart-type géométrique semble linéaire. Ces résultats demandent confirmation car une comparaison avec seulement 3 écarts-types géométriques et une masse volumique différente pour chacun en restreint la portée.

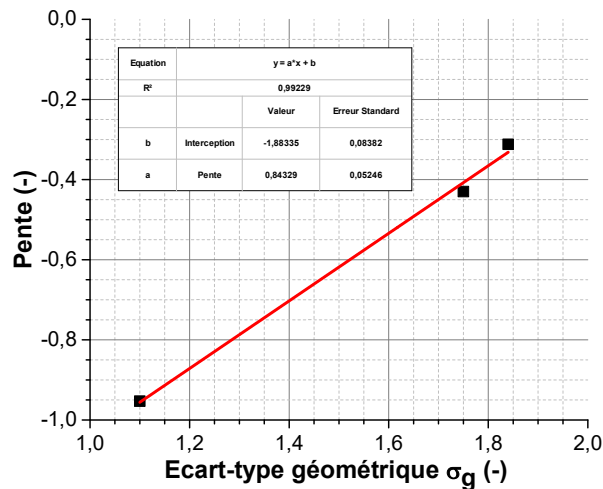


Figure 75 : Évolution de la pente de la porosité du dépôt dans la zone de transition

De manière générale, la monodispersion des particules entraîne une porosité du dépôt plus élevée que pour des particules polydispersées pour un nombre de Péclet inférieur à 10.

### 3.1.4. Influence d'une vitesse variable

L'objectif est d'évaluer l'influence d'une variation de la vitesse de filtration sur la structure du dépôt au cours du temps. Cette situation est rencontrée sur la plupart des installations de filtration pour lesquelles le débit de filtration diminue avec l'augmentation de la perte de charge du média filtrant. Dans de telles conditions il s'avère nécessaire de s'interroger de la pertinence des valeurs et modèles prédictifs de porosité de dépôt obtenues en condition statique de vitesse de dépôt. Pour se rapprocher de ce mode de fonctionnement, une entrée d'air a été ajoutée en amont de la pompe de prélèvement sur le banc expérimental afin de simuler une fuite.

Deux protocoles opératoires ont été mis en œuvre sur les particules de CsCl (Figure 76) :

- *Décroissance par palier du débit* : Une variation de la vitesse de filtration par palier de 11,1 à 0,15 cm/s en modifiant la consigne sur le régulateur de débit sur un laps de temps donné. La porosité est déterminée à chaque palier.
- *Décroissance continue du débit* : Une variation de la vitesse de filtration à l'aide de l'entrée d'air en amont de la pompe de prélèvement. Dans cette situation, le débit est mesuré mais pas régulé. La porosité est alors déterminée périodiquement sur des courts instants pour lesquels la variation de la vitesse de filtration peut être supposée comme constante.

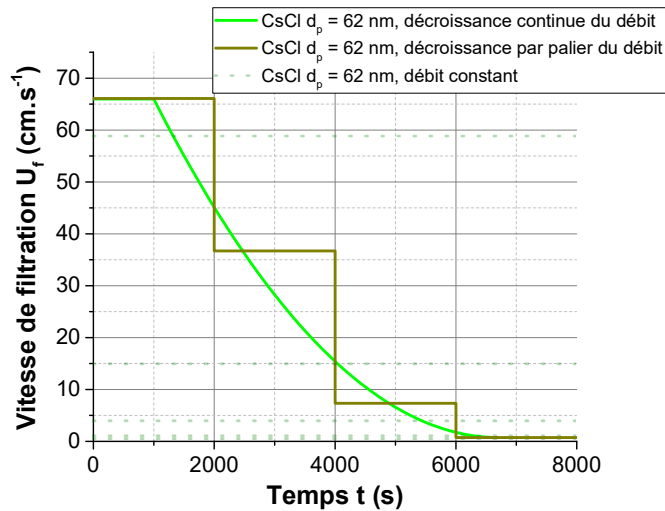


Figure 76 : Évolution de la vitesse de filtration selon les trois approches

Les porosités mesurées dans ces deux approches (Figure 77) ont été comparées aux expériences menées à débit constant pendant la totalité de l’essai. La Figure 77 ne montre pas de différences significatives entre ces trois approches.

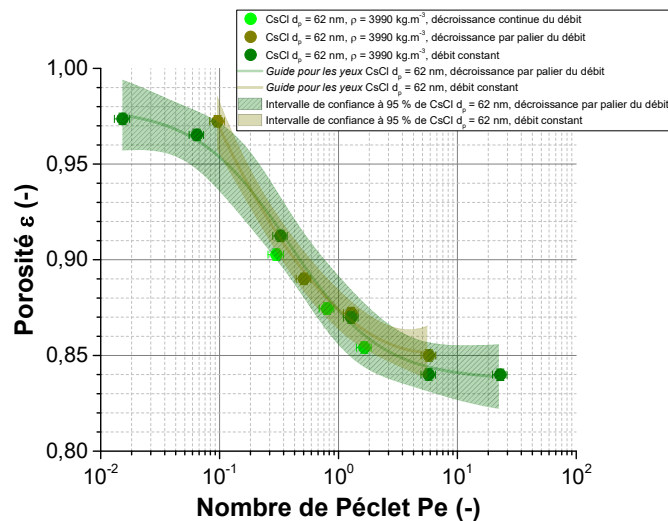


Figure 77 : Influence d'une vitesse variable sur la porosité du dépôt

L’explication avancée repose sur le fait que la diminution du débit est suffisamment lente pour permettre une formation d’un dépôt homogène couche par couche. La diminution de la vitesse de filtration peut donc être considérée comme une succession d’états stables.

### 3.1.5. Influence de la pression

Pour observer l’influence de la diffusion des particules sur la construction du dépôt, des expériences à basse pression ont été menées. En effet, lorsque la pression de l’air diminue, le libre parcours moyen augmente et par conséquent le coefficient de diffusion également. Ainsi, pour un même aérosol et pour un même nombre de Peclet, il est possible d’observer l’influence de la

pression. La Figure 78 résume les valeurs expérimentales obtenues avec l'aérosol de CsCl pour deux valeurs de pression 101,3 et 50 kPa.

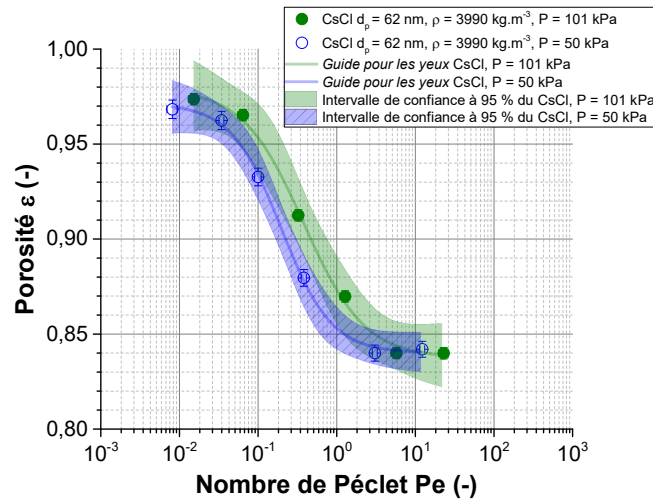


Figure 78 : Influence de la pression

À une pression de 50 kPa, le libre parcours moyen est de 135 nm contre 66 nm à la pression atmosphérique. Une chute de pression entraîne une diminution de la porosité. Dans la zone de diffusion, une diminution du seuil est observable et une forte décroissance de la porosité est visible dans la zone de transition. Ces résultats sont en accord avec la simulation de Tassopoulos (1989).

**3.1.6. Influence du libre parcours moyen**

Pour consolider ces résultats, des expériences utilisant de l'hélium ou de l'argon comme gaz porteur ont été réalisées. Les valeurs du libre parcours moyen et de la viscosité selon le gaz utilisé sont listées dans le Tableau 9 (Chapitre II Section 2.1.). Un changement dans la granulométrie est également visible, puisque le diamètre de mobilité électrique passe de 87 nm à 85 nm pour l'hélium et à 97 nm pour l'argon. La Figure 79 compare les valeurs de porosité entre un même aérosol et deux gaz porteurs différents.

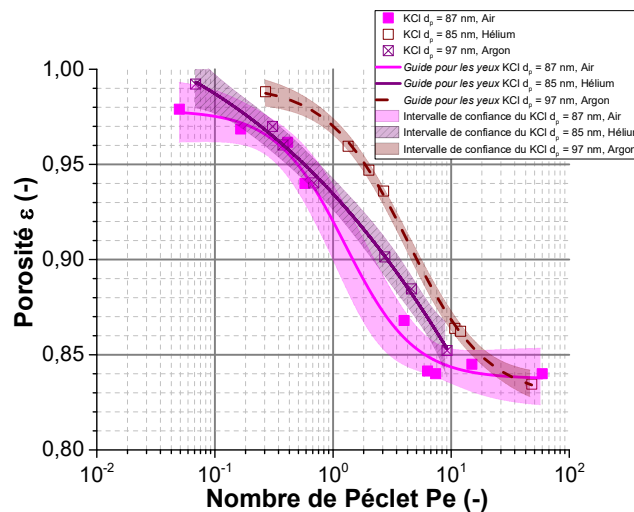


Figure 79 : Évolution de la porosité pour des aérosols « transportés » avec différents gaz porteurs

Pour les aérosols dont le diamètre est très proche, c'est-à-dire avec un gaz porteur d'air et d'hélium, une différence notable est observée. En utilisant l'argon comme gaz porteur, on augmente le diamètre moyen, qui passe de 87 à 97 nm et tout en gardant le libre parcours moyen proche de celui de l'air (69 contre 66nm). L'autre paramètre changeant est la viscosité dynamique qui augmente légèrement pour l'argon et l'hélium comparativement à l'air. On remarque que la tendance de l'argon est semblable à celle de l'air. Or il a été démontré (paragraphe 4.1.1. du Chapitre II) qu'un diamètre de particule plus important entraîne une élévation de la porosité. On peut donc en conclure qu'il y a une compensation de la porosité entre l'élévation du diamètre de particule et l'élévation de la viscosité dynamique.

### 3.1.7. Corrélation de la porosité d'un dépôt de nanoparticules sphériques

Lindquist *et al.* (2014) ont établi trois corrélations (Tableau 7) pour évaluer la porosité d'un dépôt de particules nanométriques intégrant les deux nombres adimensionnels  $Kn_D$  et  $\chi_F$ . La Figure 80 présente les porosités calculées à l'aide des corrélations de Lindquist en fonction des porosités expérimentales. Dans la présente étude, la comparaison a été menée sur 34 mesures pour lesquelles les valeurs de  $Kn_D$  et  $\chi_F$  se situaient dans la gamme de validité des différentes corrélations proposées par Lindquist *et al.* (2014).

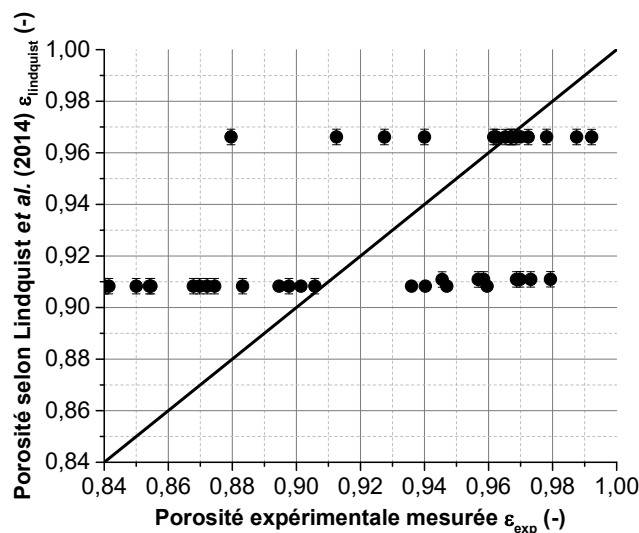


Figure 80 : Diagramme de parité : porosité selon Lindquist en fonction de la porosité expérimentale

L'accord entre les porosités expérimentales et les porosités issues des corrélations proposées par Lindquist *et al.* (2014) s'avère non satisfaisant, soulignant les limitations de ces corrélations mais aussi tout l'intérêt de disposer de données expérimentales pour des configurations parfaitement maîtrisées. Dans l'état actuel, les développements proposés par Lindquist *et al.* (2014) donnent lieu à une importante surestimation de la porosité des dépôts dans des conditions standards représentatives de cas réels. Une sous-estimation de la porosité est observée dans le cas où le gaz porteur est différent de l'air. Les points expérimentaux les plus proches de la droite de parité proviennent des porosités mesurées sur des billes de latex et donc pour un aérosol monodispersé et parfaitement sphérique.

Afin de palier à ces limitations, nous proposons une nouvelle corrélation fondée, elle aussi, sur les nombres adimensionnels de Lindquist *et al.* (2014) mais permettant de décrire l'évolution continue de la porosité observée expérimentalement en fonction des caractéristiques physico-chimiques, de la vitesse de filtration et de la taille des particules des dépôts étudiés (eq 88) :

$$\varepsilon = \varepsilon_{limit_{dif}} + \frac{(\varepsilon_{limit_{bal}} - \varepsilon_{limit_{dif}}) Kn_D^2 Pe}{J + Kn_D^2 Pe} \quad (eq. 94)$$

Avec J une constante et  $\varepsilon_{limit}$  définis par la modélisation.

En reprenant les équations définis par Lindquist *et al.* (2014) (eq. 69),(eq. 72)), on remarque que le terme que nous proposons est égal au nombre de Stokes :

$$(Pe Kn_D)^2 = \left(\frac{Stk}{Kn_D}\right)^2 \quad (eq. 95)$$

$$Kn_D^2 Pe = Stk$$

Tout ceci nous amène à remettre en question l'utilisation du nombre de Péclet pour évaluer l'évolution de la porosité. Au vu de l'impact des précédents paramètres, le nombre adimensionnel prenant en compte l'ensemble des paramètres pouvant agir sur la porosité est le nombre de Stokes défini comme suit (en prenant la longueur caractéristique de dépôt équivalent au rayon de la particule) :

$$Stk = \frac{\rho d_p C_u U_f}{9\mu} \quad (eq. 96)$$

Ainsi la corrélation que nous proposons s'écrit :

$$\varepsilon_{limit_{dif}} + \frac{(\varepsilon_{limit_{bal}} - \varepsilon_{limit_{dif}}) Stk}{J + Stk} = 0.9876 + \frac{(0.82979 - 0.9876) Stk}{0.06498 + Stk} \quad (eq. 97)$$

La Figure 81 compare l'ensemble des porosités expérimentales et calculées (eq. 94) en fonction du seul nombre de Stokes.

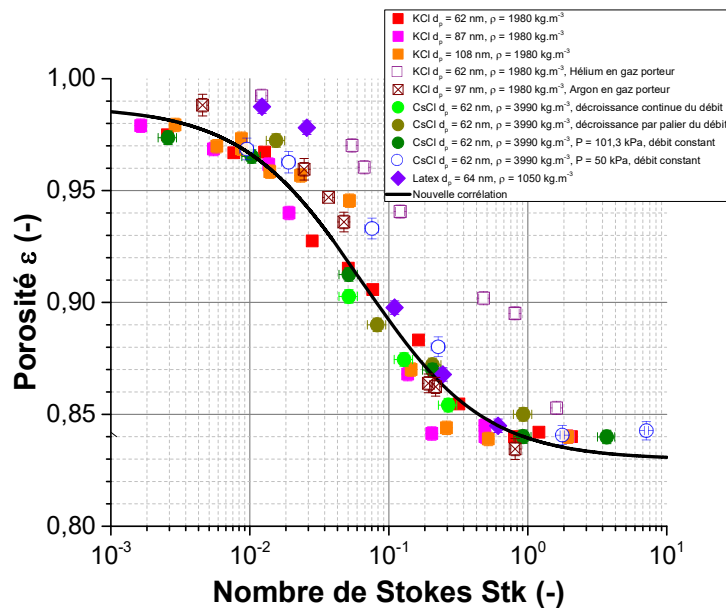


Figure 81 : Porosités expérimentales et calculées (eq. 94) en fonction du nombre de Stokes

La porosité rapportée au nombre de Stokes (Figure 81) permet de minimiser la dispersion des valeurs dans la zone de transition contrairement au mode de présentation lié au nombre de Péclet (Figure 69). Lorsque le nombre de Stokes tend vers l'infini, la porosité calculée tend vers 0,830 ; valeur proche de 0,846 relevée dans les simulations de Lindquist *et al.* (2014) et de la valeur expérimentale 0,84. Dans la zone diffusionnelle, la porosité tend vers 0,988.

Pour tenir compte de tous les aérosols d'essai produits dans le cadre de cette étude, les porosités déduites du modèle et celles mesurées ont été répertoriées et présentées sur un graphe de parité (Figure 82).

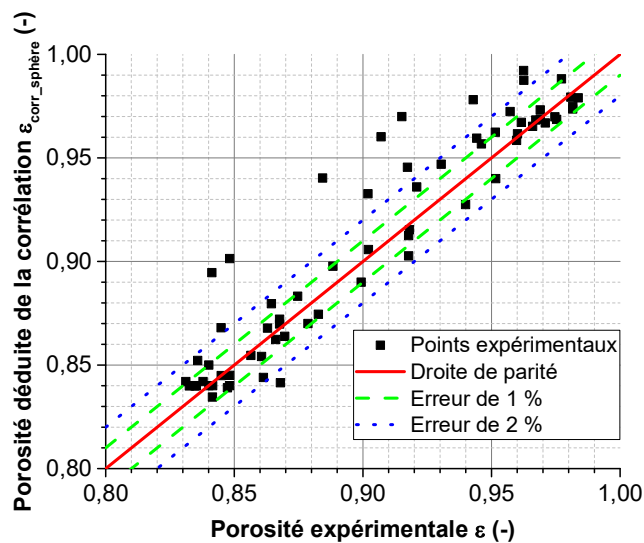


Figure 82 : Graphe de parité entre la porosité déduite de la corrélation proposée et la porosité expérimentale

Sur les 69 points expérimentaux mesurés, 22 sont en dehors de la limite des 1 % d'erreur et 12 en dehors des 2 % : 69 % des données sont représentées avec une erreur inférieure à 1 % et 83 % sont représentés avec une erreur inférieure à 2 %. Les aérosols les plus éloignés de la corrélation proposée sont :

- le latex dans la zone diffusionnelle, dû au caractère monodispersé de l'aérosol
- le KCl sous hélium dans les trois zones, dû, selon nous, à l'agglomération des particules favorisée par l'augmentation du libre parcours moyen du gaz.

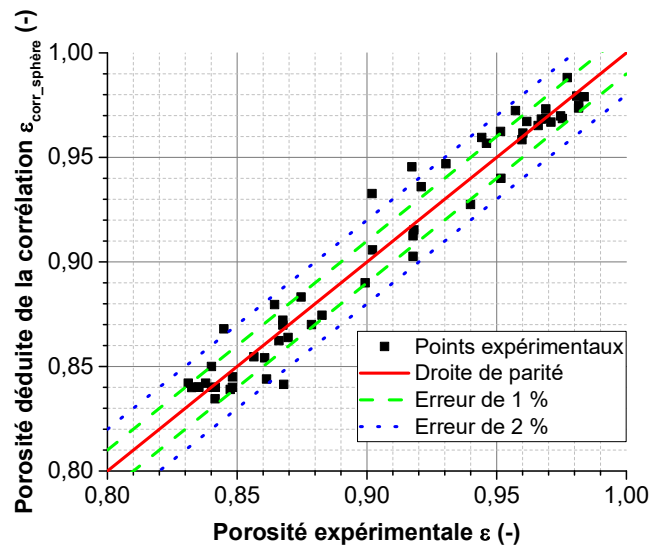


Figure 83 : Graphe de parité entre la porosité déduite de la corrélation proposée et la porosité expérimentale sans prendre en compte le latex et le KCl sous hélium

Sur les 56 points expérimentaux de la Figure 83, 15 sont en dehors de la limite des 1 % d'erreur et 6 en dehors des 3 % : 74 % des données sont représentées avec une erreur inférieure à 1 % et 90 % sont représentées avec une erreur inférieure à 2 %.

Compte tenu des différents aérosols utilisés au cours de cette étude et des différentes configurations mise en place, nous pouvons conclure à la fiabilité de ce modèle semi-empirique pour la détermination de la porosité d'un dépôt de nanoparticules sphériques.

### 3.1.8. Bilan sur la porosité d'un dépôt de nanoparticules sphériques formé sur filtre plan

Afin de mesurer la porosité d'un dépôt de particules nanométriques pseudo-sphériques obtenu par filtration et de valider les résultats de simulation de la littérature, un banc d'essai a été spécialement développé. La porosité d'un dépôt de filtration est déterminée à partir de la mesure de l'évolution de son épaisseur couplée à la masse déposée au cours du temps. Les contributions de la masse et du diamètre des particules, de la vitesse de filtration et du coefficient de diffusion à la porosité du dépôt ont été étudiées dans une large gamme de  $Pe$  ( $10^{-2} < Pe < 10^2$ ) permettant d'isoler la contribution de la diffusion et de l'inertie des particules. Plus spécifiquement, les différents paramètres étudiés associés à leurs plages de variation sont i) la masse volumique ( $1000 < \rho_p < 4000$  kg/m<sup>3</sup>), ii) le diamètre des particules ( $60 < d_p < 110$  nm), iii) la vitesse de filtration ( $0,04 < U_f < 70$  cm/s) et iv) le libre parcours moyen de l'aérosol (66 et 135 nm). Les différentes expériences ont permis de valider les tendances observées sur les simulations réalisées par Mädler *et al.* (2006) et Lindquist *et al.* (2014). Ainsi, l'évolution de la porosité en fonction des nombres de Péclet ou de Stokes présentant l'allure d'une sigmoïde inversée peut être divisée en 3 zones :

- La zone de diffusion ( $Stk < 10^{-2}$  ou  $Pe < 10^{-1}$ ) caractérisée par une porosité proche de 97,5 %. On peut observer une faible diminution de la porosité avec la diminution de la pression ou du diamètre des particules.

- La zone de transition ( $10^{-2} < Stk < 1$  ou  $10^{-1} < Pe < 10$ ) caractérisée par une forte décroissance de la porosité avec le nombre de Péclet. Dans cette zone, toute autre chose restant égale par ailleurs,



une augmentation du diamètre, de la masse volumique des particules ou de la pression induit une augmentation de la porosité du dépôt.

- La zone balistique ( $Stk > 1$  ou  $Pe > 10$ ) caractérisée par une porosité constante égale à 84%.

Des expériences systématiques ont permis de mettre en avant l'influence de nombreux paramètres sur la porosité du dépôt. Le Tableau 27 et le Tableau 28 résument l'impact de chacun de ces paramètres selon respectivement les nombres adimensionnels de Péclet ou de Stokes.

| Paramètres étudiés                                | Zone d'étude | Impact sur la porosité | Si oui lequel                                   |
|---|--------------|------------------------|---|
| Diamètre de particules                            | Diffusion    | Négligeable            | Palier à 98 %                                   |
|   | Transition   | Fort                   | $d_p \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$        |
|   | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %                                   |
| Masse volumique                                   | Diffusion    | Négligeable            | Palier à 98 %                                   |
|   | Transition   | Fort                   | $\rho \downarrow$ alors $\epsilon \uparrow$     |
|   | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %                                   |
| Polydispersion                                    | Diffusion    | Faible                 | $\sigma_g \downarrow$ alors $\epsilon \uparrow$ |
|   | Transition   | Fort                   | $\sigma_g \downarrow$ alors $\epsilon \uparrow$ |
|   | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %                                   |
| Vitesse de filtration constante                   | Diffusion    | Négligeable            | Palier à 98 %                                   |
|   | Transition   | Fort                   | $U_f \downarrow$ alors $\epsilon \uparrow$      |
|   | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %                                   |
| Vitesse de filtration variable                    | Diffusion    | Aucun                  | Palier à 98 %                                   |
|   | Transition   | Aucun                  | Dépendant des autres paramètres                 |
|   | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %                                   |
| Pression (et par conséquent libre parcours moyen) | Diffusion    | Faible                 | $P \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$          |
|   | Transition   | Fort                   | $P \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$          |
|   | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %                                   |
| Libre parcours moyen                              | Diffusion    | Fort                   | $\lambda \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$    |
|   | Transition   | Fort                   | $\lambda \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$    |
|   | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %                                   |

Tableau 27 : Impact des paramètres étudiés sur la porosité d'un dépôt de nanoparticules sphériques en fonction du nombre de Péclet

| Paramètres étudiés              | Zone d'étude | Impact sur la porosité | Si oui lequel                                      |
|---------------------------------|--------------|------------------------|--|
| Diamètre de particules          | Diffusion    | Aucun                  | Palier à 98 %                                      |
|                                 | Transition   | Aucun                  | Pente identique                                    |
|                                 | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %                                      |
| Masse volumique                 | Diffusion    | Aucun                  | Palier à 98 %                                      |
|                                 | Transition   | Faible                 | $\rho \downarrow$ alors $\varepsilon \uparrow$     |
|                                 | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %                                      |
| Polydispersion                  | Diffusion    | Fort                   | Palier à 98 %                                      |
|                                 | Transition   | Fort                   | $\sigma_g \downarrow$ alors $\varepsilon \uparrow$ |
|                                 | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %                                      |
| Vitesse de filtration constante | Diffusion    | Négligeable            | Palier à 98 %                                      |
|                                 | Transition   | Fort                   | $U_f \downarrow$ alors $\varepsilon \uparrow$      |
|                                 | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %                                      |
| Vitesse de filtration variable  | Diffusion    | Aucun                  | Palier à 98 %                                      |
|                                 | Transition   | Aucun                  | Dépendant des autres paramètres                    |
|                                 | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %                                      |
| Pression                        | Diffusion    | Aucun                  | Palier à 98 %                                      |
|                                 | Transition   | Aucun                  | Dépendant des autres paramètres                    |
|                                 | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %                                      |
| Libre parcours moyen            | Diffusion    | Faible                 | $\lambda \uparrow$ alors $\varepsilon \uparrow$    |
|                                 | Transition   | Fort                   |  |
|                                 | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %                                      |
| Viscosité dynamique             | Diffusion    | Fort                   | $\mu \uparrow$ alors $\varepsilon \uparrow$        |
|                                 | Transition   | Très Fort              |  |
|                                 | Balistique   | Fort                   |  |

Tableau 28 : Impact des paramètres étudiés sur la porosité d'un dépôt de nanoparticules sphériques en fonction du nombre de Stokes

Le mode de représentation (Porosité vs nombre de Péclet) montre une certaine dispersion des points essentiellement dans la zone de transition car les effets inertiels des particules ne sont pas pris en compte au travers du nombre de Péclet. La représentation en fonction du nombre de Stokes permet de réduire cette dispersion et semble être un meilleur indicateur pour estimer la porosité d'un dépôt de nanoparticules pseudo-sphériques. Une corrélation fondée sur le nombre de Stokes a

pu être établie à partir des résultats expérimentaux. 95% des valeurs de porosité se situent dans l'enveloppe prenant en compte une incertitude absolue de 3%.

### 3.2. Particules nanostructurées

La première partie de l'étude était consacrée aux nanoparticules pseudo-sphériques afin de s'affranchir de la morphologie des particules. L'objet de cette partie est focalisé sur les particules nanostructurées, *i.e.* agglomérat/agrégat de nanoparticules. La partie caractérisation des aérosols (cf. Chapitre II) a permis de déterminer les paramètres morphologiques de chaque agrégat étudié. Par paramètre morphologique on entend la dimension fractale  $D_f$ , le préfacteur fractal  $k_f$ , le nombre de particules primaires  $N_{pp}$  et le diamètre de particules primaires  $d_{pp}$ . L'étude bibliographique a permis de mettre en exergue l'utilisation du nombre de Péclet comme nombre adimensionnel clef dans l'expression de la porosité des dépôts. L'étude expérimentale sur les particules pseudo-sphériques a mis en évidence que le nombre de Stokes serait plus pertinent. C'est la raison pour laquelle, nous représenterons, dans la suite de l'étude, l'évolution de la porosité en fonction de ces deux critères adimensionnels. La dimension caractéristique dans ces deux nombres adimensionnels a été prise égale soit au diamètre de mobilité électrique de l'agglomérat/agrégat, soit à la taille de la particule primaire. Le Tableau 29 regroupe l'ensemble des résultats expérimentaux dans les cas extrêmes (plus petites et plus grandes vitesses de filtration testées).

| Générateur | Aérosol   | $d_m$ (nm) | $U_f$ (cm/s) | $Pe(d_m)$ (-) | $Pe(d_{pp}) \cdot 10^{-3}$ (-) | $Stk(d_m)$ (-) | $Stk(d_{pp})$ (-) | $\varepsilon$ (%) |
|------------|-----------|------------|--------------|---------------|--------------------------------|----------------|-------------------|-------------------|
| GFG-100    | Carbone   | 101        | 0.08 à 66    | 10 à 100      | 4,6 à 43                       | 0,2 à 2,3      | 0,19 à 1,8        | 96,3 à 98,24      |
|            |           | 132        | 0.16 à 59    | 2 à 160       | 0,4 à 34                       | 0,02 à 2       | 0,02 à 1,4        | 96 à 98,55        |
|            |           | 165        | 0.08 à 55    | 4 à 165       | 0,4 à 20                       | 0,03 à 1,3     | 0,02 à 0,9        | 96 à 98,5         |
|            | Aluminium | 48         | 163 à 5874   | 0,1 à 13      | 5,5 à 502                      | 0,04 à 4       | 0,04 à 3,7        | 96,5 à 98,8       |
|            |           | 84         | 32 à 513     | 0,6 à 138     | 5,5 à 502                      | 0,04 à 5       | 0,04 à 3,7        | 92,9 à 98,2       |
|            |           | 117        | 16 à 734     | 1,1 à 150     | 0,08 à 3                       | 0,05 à 4,9     | 0,04 à 3,6        | 91,5 à 98         |
|            | Cuivre    | 31         | 1,6 à 59     | 0,08 à 3      | 0,03 à 0,9                     | 0,14 à 5,4     | 0,13 à 5          | 96 à 99           |
|            |           | 77         | 0,4 à 66     | 0,3 à 48      | 0,01 à 1                       | 0,05 à 7       | 0,04 à 5,7        | 96 à 99           |
|            |           | 108        | 0,4 à 30     | 0,9 à 55      | 0,01 à 0,5                     | 0,05 à 3,4     | 0,04 à 2,5        | 97,2 à 99,5       |
|            | Titane    | 68         | 1,4 à 59     | 0,7 à 31      | 0,04 à 2,4                     | 0,01 à 4       | 0,08 à 3,4        | 96 à 98           |
|            |           | 112        | 0,7 à 47     | 1,4 à 94      | 0,03 à 0,9                     | 0,05 à 3,6     | 0,04 à 2,7        | 96,1 à 98         |
|            |           | 131        | 0,7 à 66     | 2 à 202       | 0,01 à 1                       | 0,05 à 5,4     | 0,04 à 3,8        | 96 à 98,1         |
|            | Argent    | 10         | 1,4 à 66     | 0,001 à 0,13  | 0,02 à 1                       | 0,1 à 6,5      | 0,14 à 6,4        | 94,4 à 99,9       |
|            |           | 50         | 1,4 à 22     | 0,3 à 4       | 0,02 à 0,35                    | 0,16 à 2,4     | 0,14 à 2,2        | 97,2 à 99,9       |
|            | CAST      | Suic       | 190          | 0,7 à 66      | 5 à 530                        | 20 à 1870      | 0,02 à 2,3        | 0,01 à 1,5        |
| Argonaut   | 114       |            | 3,6 à 66     | 7 à 140       | 0,05 à 4,2                     | 0,1 à 2        | 0,09 à 1,7        | 97,3 à 99,2       |
| Disperseur | 230       |            | 4 à 285      | 4 à 285       | 77 à 4667                      | 0,02 à 0,9     | 0,01 à 0,56       | 96,2 à 99,7       |

Tableau 29 : Résultats expérimentaux dans les cas « extrêmes »

Force est de constater (Figure 84) une différence significative entre les valeurs de porosité de dépôts de particules pseudo-sphériques ou nanostructurées. En effet la gamme de porosité pour les

particules pseudo-sphériques s'échelonne de 84 à 98 % alors que celles des particules nanostructurées s'étend de 94 à 99,5 %. Concernant la corrélation pour un dépôt de particules sphériques, le nombre de Stokes est uniquement calculé à partir du diamètre de mobilité électrique.

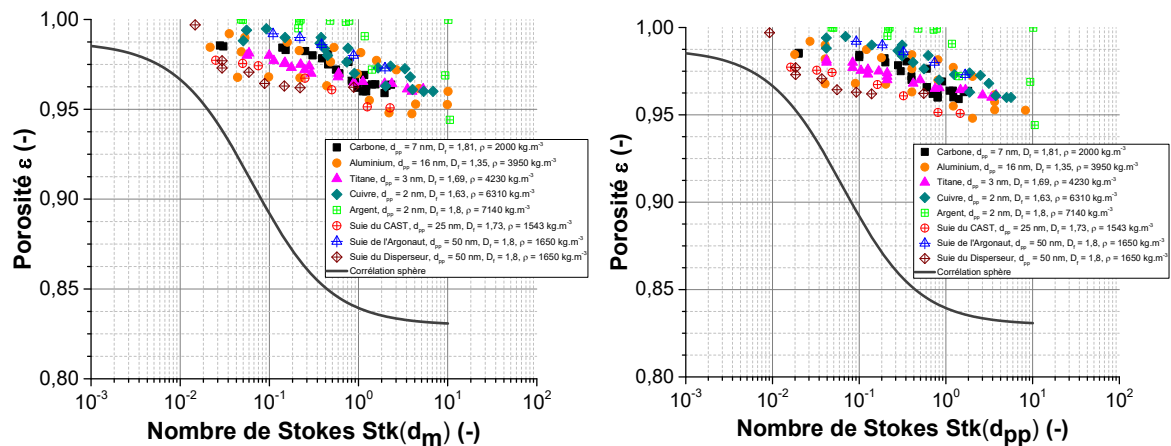


Figure 84 : Comparaison de l'évolution de la porosité d'un dépôt de nanoparticules formées par filtration entre des sphères et des agrégats

La Figure 85 regroupe uniquement les résultats obtenus pour l'ensemble des particules nanostructurées testées selon les deux nombres adimensionnels de Péclet et de Stokes déterminés soit à partir du diamètre de mobilité électrique, soit du diamètre de particules primaires.

Tout comme pour les sphères, une tendance en courbe en S inversé est observée mais les valeurs limites des nombres de Péclet et Stokes délimitant ces trois zones (ballistique, transition et diffusionnelle) sont différentes. A noter également une différence importante au niveau du palier de la zone balistique qui semble se dessiner pour des valeurs de porosité bien supérieures à 84 % relevée pour les particules pseudo-sphériques. Tout porte à croire que la morphologie des particules nanostructurées va grandement conditionner la valeur de porosité.

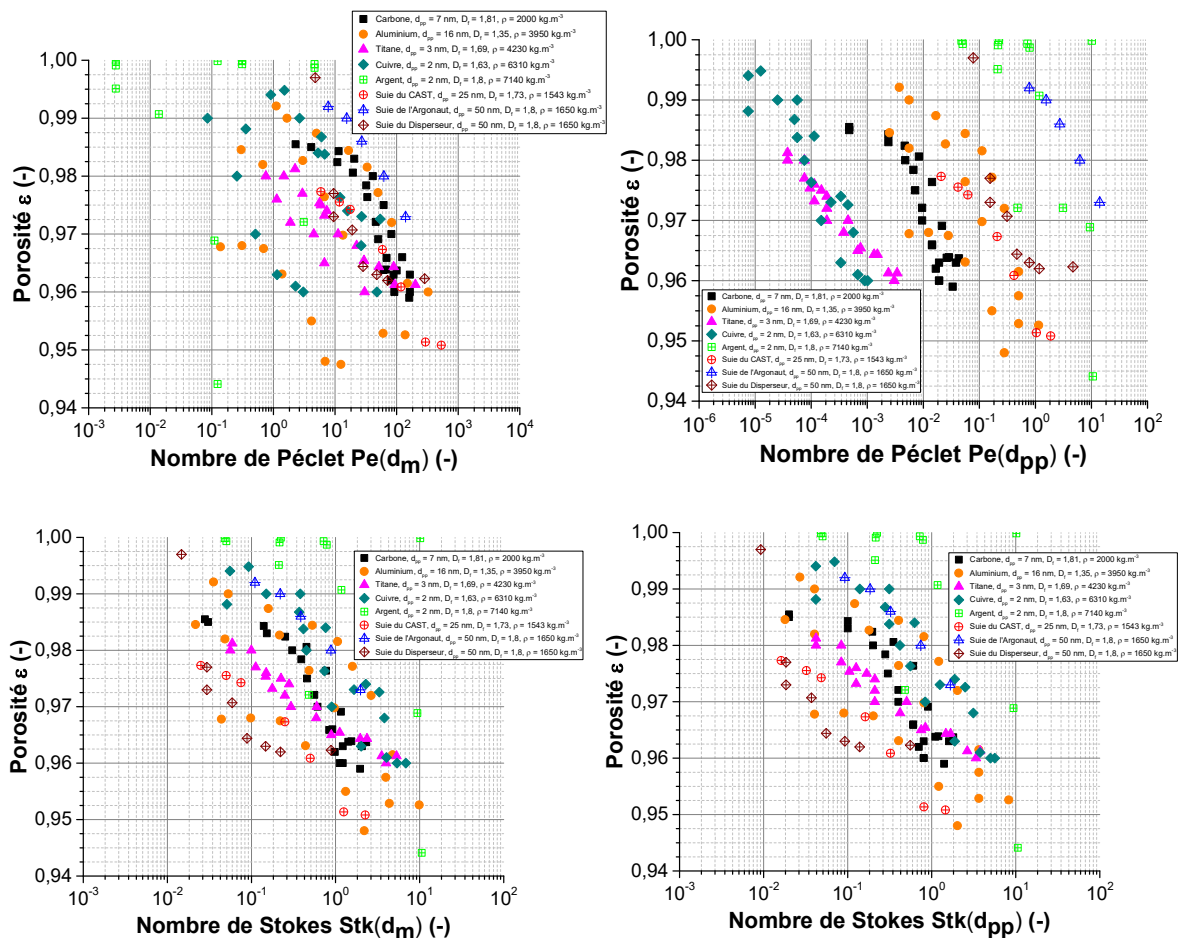


Figure 85 : Valeurs de porosités expérimentales obtenues pour un dépôt de nanoparticules d'agrégats en fonction du nombre de Péclet (haut) et du nombre de Stokes (bas)

Concernant le nombre de Péclet défini avec le diamètre de mobilité électrique, une majorité des points expérimentaux semblent converger vers une porosité de 96 % à partir d'un nombre de Péclet de 100. Néanmoins, les porosités de l'Aluminium et du Cuivre présentent une dispersion plus grande contrairement au mode de représentation liée au nombre de Péclet défini avec le diamètre de particules primaires. En effet, avec cette représentation, trois types d'évolution distincts semblent se dessiner. Concernant la représentation en fonction du nombre de Stokes, elle ne montre pas de différence significative selon que le nombre de Stokes soit défini avec le diamètre de mobilité électrique ou le diamètre de particules primaires.

A partir de cette première approche et des précédents travaux de simulations qui se basent systématiquement sur un diamètre de particules primaires pour présenter l'évolution de la porosité d'un dépôt de nanoparticules d'agrégats, nous faisons le choix de représenter par la suite les valeurs de porosité en fonction du nombre de Péclet et de Stokes calculés à partir du diamètre de particules primaires. Cela suggère également que l'agrégat étudié est composé de particules primaires de même taille.

### 3.2.1. Influence du nombre de particules primaires

Afin de mettre en exergue l'impact du nombre de particules primaires, il faut que seul ce paramètre change entre deux expériences. Au regard du Tableau 23 du Chapitre II, les agrégats produits par le générateur GFG-1000 sont regroupés par famille d'élément chimique : Carbone, Aluminium, Cuivre et Titane. Pour chaque élément, trois différents points de fonctionnement sont

choisis afin de faire varier le diamètre de mobilité électrique, la dimension fractale et le nombre de particules primaires. Notre consensus de départ est que la porosité des dépôts sera exprimée en fonction des nombres adimensionnels de Péclet et Stokes déterminées par une longueur caractéristique, le diamètre des particules primaires. Comme ce diamètre reste inchangé selon le diamètre de mobilité électrique de l'agrégat, nous nous retrouvons avec des expériences où seul le nombre de particules primaires varie.

- Carbone :  $N_{pp}$  variant de 750 à 2584

Sur la Figure 86, on remarque une tendance semblable pour les 3 configurations. En effet, dans le domaine diffusionnel un palier est visible pour une valeur de 98,5 % et un autre palier dans la zone balistique à une valeur de 96 %.

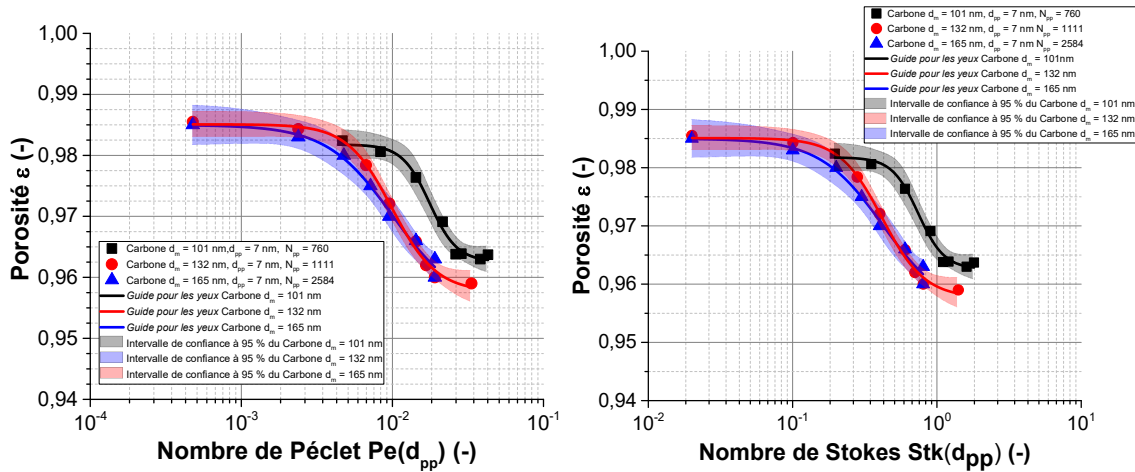


Figure 86 : Évolution de la porosité pour un dépôt d'agrégat de carbone composé d'un nombre différent de particules primaires en fonction du nombre de Péclet (gauche) et du nombre de Stokes (droite)

Le nombre de particules primaires ne semble pas influencer la porosité du dépôt dans les zones balistique et diffusionnelle mais légèrement dans la zone de transition.

- Aluminium :  $N_{pp}$  variant de 10 à 42

Sur la Figure 87, l'influence d'un très faible nombre de particules primaires est très perceptible. En effet, les valeurs maximales et minimales de porosités sont bien différentes selon le nombre de particules primaires.

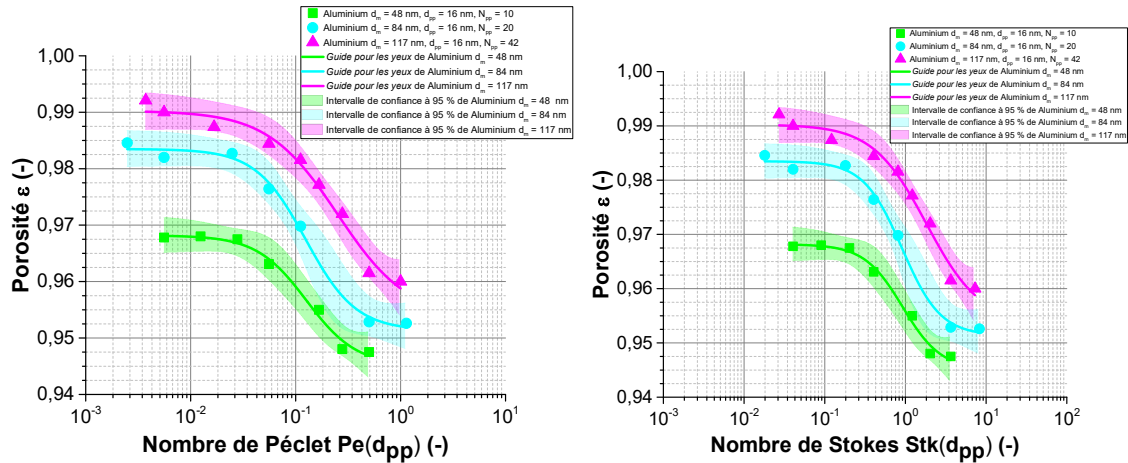


Figure 87 : Évolution de la porosité pour un dépôt d'agrégat d'aluminium composé d'un nombre différent de particules primaires en fonction du nombre de Péclet (gauche) et du nombre de Stokes (droite)

Plus le nombre de particules primaires augmente, plus la porosité est élevée dans les trois zones. Par ailleurs, les pentes de l'évolution de la porosité dans la zone de transition semblent quasi identiques quel que soit le nombre de particules primaires.

- Cuivre :  $N_{pp}$  variant de 454 à 12333

Sur la Figure 88, comme pour le carbone, une tendance semblable pour les courbes bleue et jaune est notable sauf dans la zone balistique. Cet écart peut s'expliquer par l'influence du diamètre de mobilité électrique. Tout comme l'écart dans la zone diffusionnelle entre ces deux configurations et la courbe kaki.

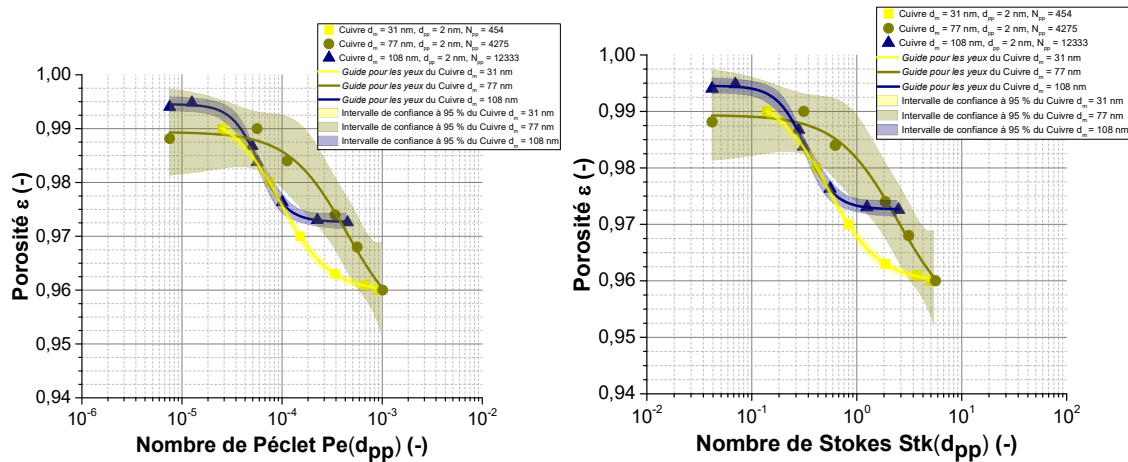


Figure 88 : Évolution de la porosité pour un dépôt d'agrégat de cuivre composé d'un nombre différent de particules primaires en fonction du nombre de Péclet (gauche) et du nombre de Stokes (droite)

Le nombre de particules primaires ne semble pas influencer la porosité du dépôt dans la zone balistique mais légèrement dans la zone de transition et diffusionnelle.

- Titane :  $N_{pp}$  variant de 1588 à 6672

Sur la Figure 89, une tendance similaire est visible pour les trois configurations qui ont pourtant des nombres de particules primaires bien distincts.

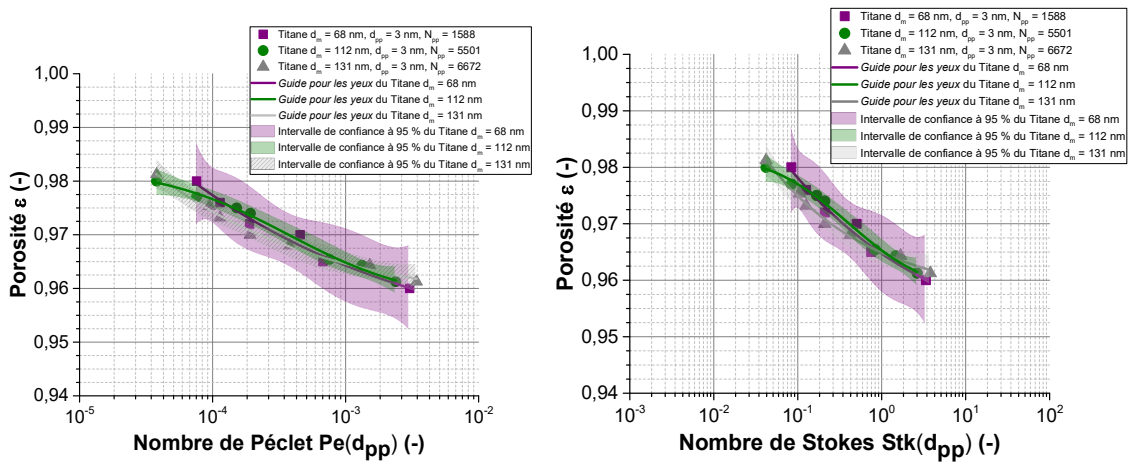


Figure 89 : Évolution de la porosité pour un dépôt d'agrégat de titane composé d'un nombre différent de particules primaires en fonction du nombre de Péclet (gauche) et du nombre de Stokes (droite)

Au vu de l'ensemble des résultats, il semble exister une limite du nombre de particules primaires au-delà duquel son influence n'est plus significative comme l'illustre la Figure 90 qui montre une stabilisation de la porosité au-delà d'environ 40 particules en faisant abstraction du dernier point.

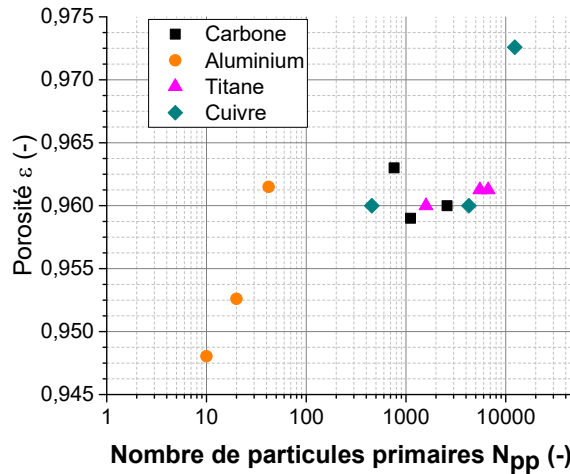


Figure 90 : Évolution de la porosité minimale par famille selon le nombre de particules primaires

On peut ainsi observer une augmentation linéaire de la porosité de 10 à 40 particules primaires avant une stabilisation jusqu'à 10 000 particules primaires.

Pour la limite de porosité maximale, une tendance similaire est observable, comme le montre la Figure 91. En effet entre 10 et 100 particules primaires la porosité maximale suit une tendance linéaire. Entre 100 et 10 000 particules, le plateau est moins flagrant : la porosité varie entre 98 et 99 % avec un regroupement des valeurs entre famille d'agrégats (Carbone, Cuivre, Titane).



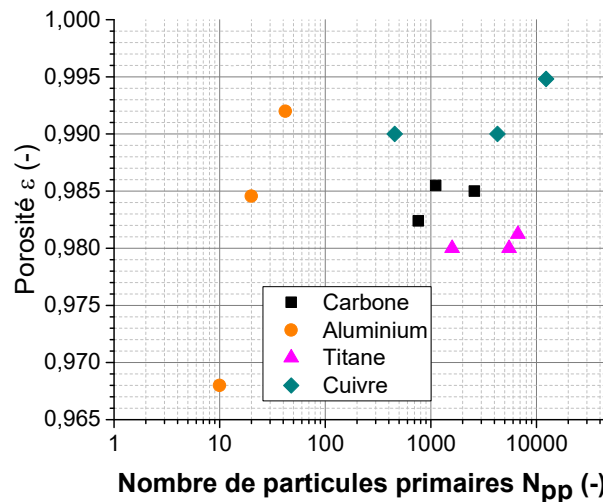


Figure 91 : Évolution de la porosité maximale par famille selon le nombre de particules primaires

Pour résumer, l'influence du nombre de particules primaires est avérée :

- Limite asymptotique minimale et maximale de la porosité à partir de 40 particules primaires
- Si  $N_{pp} > 40$ , dans la zone de diffusion la porosité varie entre 98 et 99 %.
- Si  $N_{pp} > 40$ , dans la zone de transition la porosité diminue en suivant une courbe en S-inversé.
- Si  $N_{pp} > 40$ , dans la zone balistique la porosité est de 96 %.

### 3.2.2. Influence du diamètre de particules primaires

Notre objectif de départ était de se concentrer sur une représentation en fonction des nombres adimensionnels de Péclet et Stokes calculés à partir du diamètre de particules primaires. Cependant, il ne nous semble pas judicieux d'observer son influence en fonction d'un nombre adimensionnel qui en tient compte. De fait, pour ce paragraphe uniquement, les graphes seront également présentés en fonction des nombres de Péclet et Stokes calculés à partir du diamètre de mobilité électrique de l'agrégat.

Ainsi, nous étudierons 4 aérosols différents : le carbone, le cuivre et des suies issues de 2 générateurs distincts. Étant donné, l'impossibilité d'avoir des caractéristiques d'agrégats identiques ( $N_{pp}$ ,  $D_f$  et  $d_m$ ), une variation des valeurs de porosité est à prévoir. Les paramètres variant « peu » sont la masse volumique, le nombre de particules primaires, le diamètre de mobilité électrique et la dimension fractale. La Figure 92 présente la porosité des dépôts pour des diamètres de particules primaires différents.

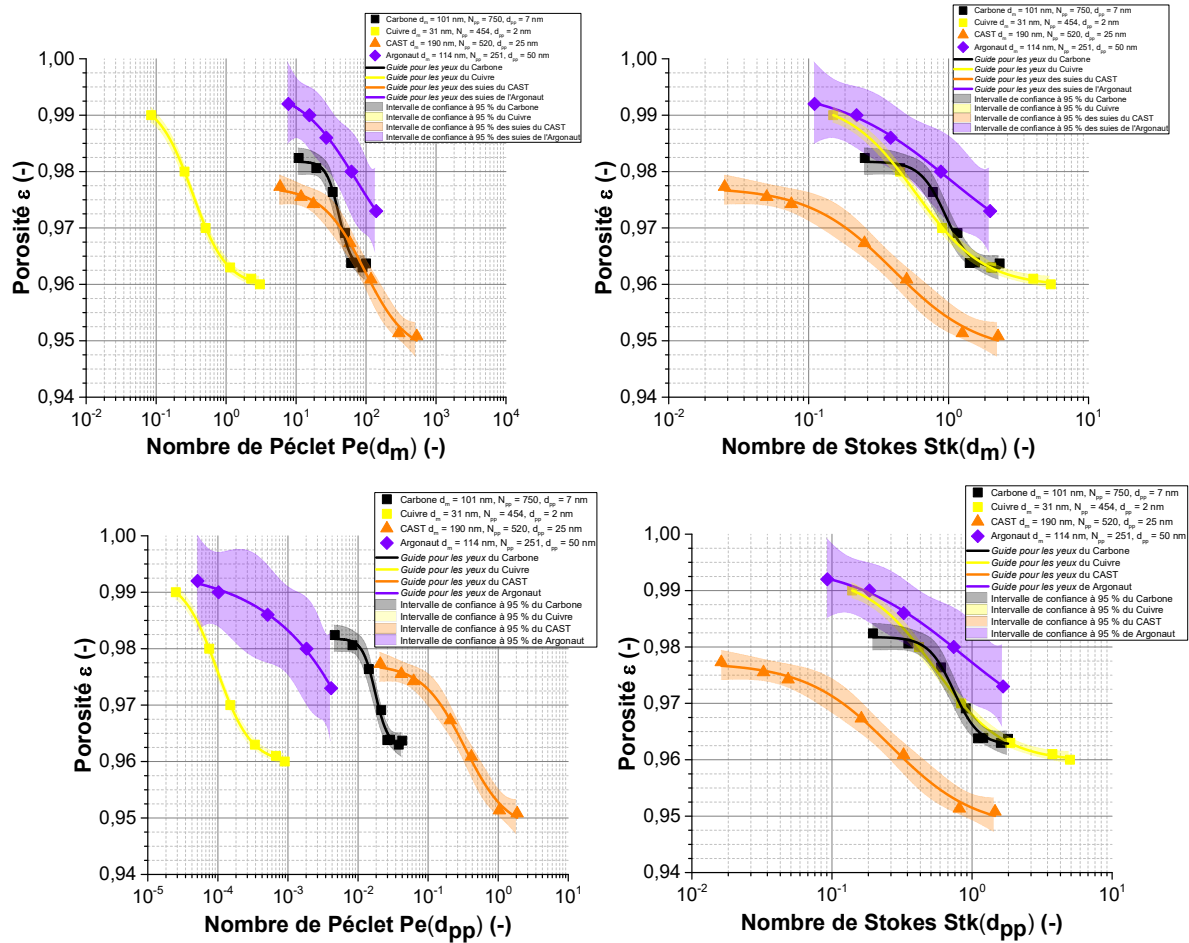


Figure 92 : Évolution de la porosité pour un dépôt d'agrégat composé de différents diamètres de particules primaires en fonction du nombre de Péclet (gauche) et du nombre de Stokes (droite)

Selon le nombre de Stokes calculé de deux manières, on observe un regroupement des courbes sauf pour les suies issues du CAST.

Les évolutions de la porosité tracées en fonction du nombre de Péclet fondé sur le diamètre de mobilité électrique présentent un certain regroupement sauf pour le cuivre contrairement au mode de représentation avec le Péclet calculé à partir du diamètre de la particule primaire.

La représentation par le nombre de Stokes est une nouvelle fois jugée préférable. Néanmoins, les valeurs de porosité de suies issue du CAST sont à remettre en question. En effet, ces suies ont une masse volumique très proche des suies issues de l'Argonaut et les autres caractéristiques morphologiques sont très proches. On s'attendait donc à une tendance similaire entre les suies issues du CAST et de l'Argonaut.

### 3.2.3. Influence de la dimension fractale

Il est très difficile expérimentalement de modifier la dimension fractale d'un agrégat sans en modifier d'autres paramètres (diamètre de particules primaires et nombre de particules primaires). Au vu de nos données, une simple comparaison sera faite (Figure 93).

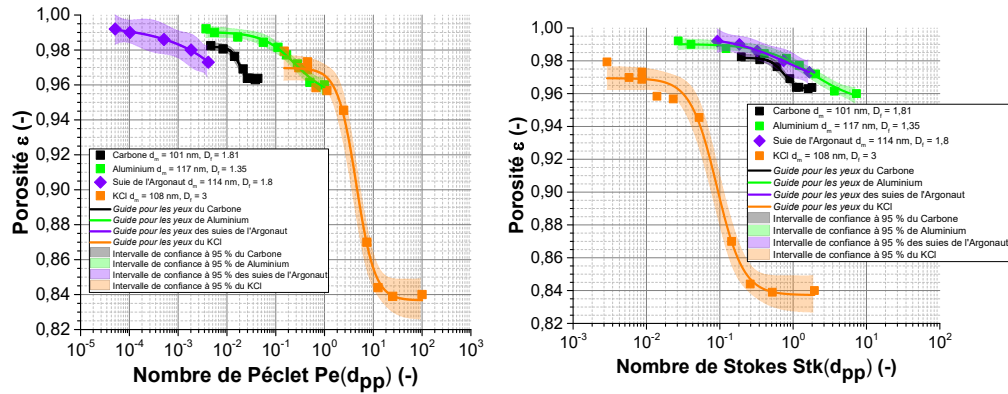


Figure 93 : Évolution de la porosité pour des dépôts de nanoparticules de dimension fractale différente en fonction du nombre de Peclet (gauche) et du nombre de Stokes (droite)

Il ne semble pas y avoir de différence en fonction de la dimension fractale. Le cas des particules pseudo-sphériques ( $D_f = 3$ ) prête à discussion.

En fonction du nombre de Stokes, les porosités des dépôts d'agrégats se regroupent pour revenir à une tendance en S inversé avec une valeur de 99 % dans le domaine diffusif et une valeur de 96 % dans le domaine balistique.

3.2.4. Corrélation de la porosité d'un dépôt de nanoparticules formées par des agrégats

Afin d'étendre les limitations dues à la morphologie des particules, nous proposons une nouvelle corrélation fondée, comme pour les sphères, sur le nombre adimensionnel de Stokes mais permettant de décrire l'évolution continue de la porosité observée expérimentalement en fonction des caractéristiques des aérosols étudiés (eq. 98) :

$$\varepsilon_{limit_{dif}} + \frac{(\varepsilon_{limit_{bal}} - \varepsilon_{limit_{dif}}) Stk}{M + Stk} = 0,9875 + \frac{(0,962 - 0,9875) Stk}{0,4 + Stk} \quad (eq. 98)$$

La Figure 94 regroupe la corrélation au regard des valeurs expérimentales.

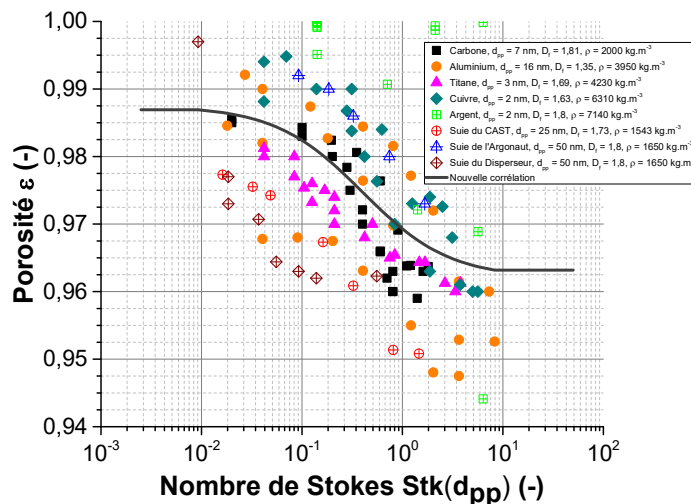


Figure 94 : Porosités expérimentales et calculées d'un dépôt de nanoparticules sous forme d'agrégats en fonction du nombre de Stokes

Cette corrélation permet d'estimer la porosité d'un dépôt de particules nanostructurées à  $\pm 2\%$  (Figure 95) mais la dispersion des données est bien plus grande que celle établie sur le dépôt de nanoparticules sphériques. La Figure 95 suivante présente le graphe de parité permettant de chiffrer l'incertitude de la corrélation proposée.

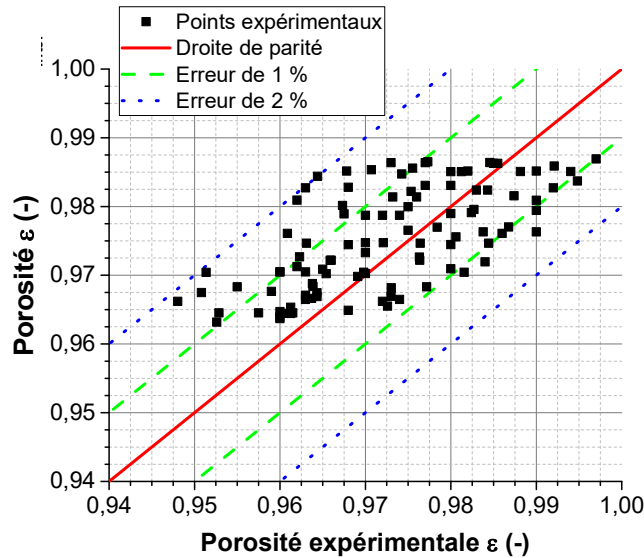


Figure 95 : Graphe de parité entre la porosité déduite de la corrélation proposée et la porosité expérimentale

Cette figure regroupe les 107 valeurs de porosité déterminées expérimentalement et calculées. La totalité de ces valeurs se trouve dans la zone d'erreur absolue de 2 %. Ainsi 100 % des résultats sont validés avec une marge d'erreur absolue de  $\pm 2\%$ . Dans la zone d'erreur absolue de  $\pm 1\%$ , 81 points expérimentaux y sont présents soit 76 % des données.

### 3.2.5. Approche de la double porosité

L'approche expérimentale sur les dépôts d'agrégats a permis de déboucher sur une corrélation (eq. 98) pour estimer les porosités. Cependant, en supposant que la porosité totale ( $\varepsilon_g$ ) de ce type de dépôt résulte de la porosité intra-agrégat (rapport entre le volume de vide au sein de l'agrégat sur le volume de l'agrégat) et de la porosité inter-agrégat liée à la formation du dépôt. La porosité totale peut être définie comme dans le Chapitre I (*paragraphe 4.3.*) par l'équation (eq. 80) :

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

On suppose que les agrégats déposés (caractérisés par le diamètre de mobilité électrique) forment un certain volume de particules, que l'on considère comme des particules sphériques avec à l'intérieur une certaine porosité (porosité intra-agrégat  $\varepsilon_{intra}$ ). Sur la base de cette approche,  $\varepsilon_{inter}$  peut être estimée à partir de la corrélation établie pour des nanoparticules pseudo-sphériques (eq. 97) et  $\varepsilon_{intra}$  sur des corrélations relevées dans la littérature.

Dans un premier temps, nous calculons la porosité intra-agrégat à partir de la porosité total (eq. 80) et de la porosité inter-agrégat :

$$\varepsilon_{intra,théorique} = \frac{\varepsilon_g - \varepsilon_{inter}}{1 - \varepsilon_{inter}} \quad (eq. 99)$$

La Figure 96 présente les différentes valeurs de porosités intra-agrégat théorique.

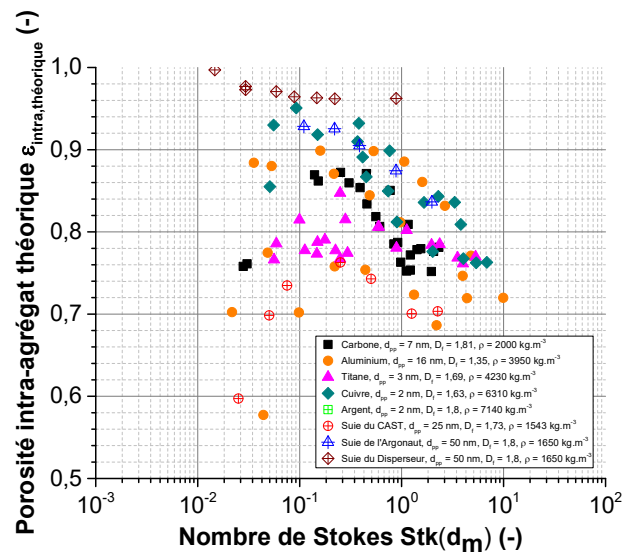


Figure 96 : Évolution de la porosité intra-agrégat théorique selon le nombre de Stokes déterminée par le diamètre de mobilité électrique

On remarque que la porosité intra-agrégat ainsi calculée change en fonction du nombre de Stokes et qu'elle n'est pas identique entre le domaine diffusionnel et balistique. D'un point de vue physique ce n'est pas cohérent car comme nous l'avons décrit plus haut, cette porosité intra-agrégat dépend uniquement de la structure de l'agrégat qui est indépendante de la vitesse de filtration.

Cette porosité intra-agrégat calculée va nous permettre de valider les corrélations de porosité relevées dans la littérature et présentées dans le Chapitre I (*paragraphe 4.3.2.*). Ces relations se basent chacune sur un diamètre caractéristique de l'agrégat, la longueur maximale projetée ou le diamètre de giration. L'agrégat est ainsi représenté par une « enveloppe sphérique ». Pour le premier il s'agit du cercle circonscrit formant l'agrégat et pour le second de la somme de chacun des barycentres des particules primaires composant l'agrégat. Nous proposons également une nouvelle expression de la porosité intra-agrégat. Dans notre conception, l'agrégat est représenté par une « enveloppe ellipsoïdale ». Sous cette forme, il n'y a pas de diamètre caractéristique prédéfini, au contraire il change selon l'orientation de l'agrégat. La Figure 97 présente les diamètres utilisés pour exprimer la porosité intra-agrégat. En résumé nous proposons trois relations basées chacune selon :

- La longueur maximale projetée, qui représente le diamètre maximale de l'agrégat (rouge).
- Le diamètre de giration, qui représente la limite basse de notre agrégat (orange).
- Un rapport du diamètre de giration sur le diamètre de mobilité électrique afin d'envelopper l'agrégat sous la forme d'une ellipsoïde (gris). Cela s'explique, au vu de notre approche, par une orientation de l'agrégat. Une orientation entre son volume maximum, issu de la longueur maximale projetée, et le volume minimum provenant du rayon de giration.

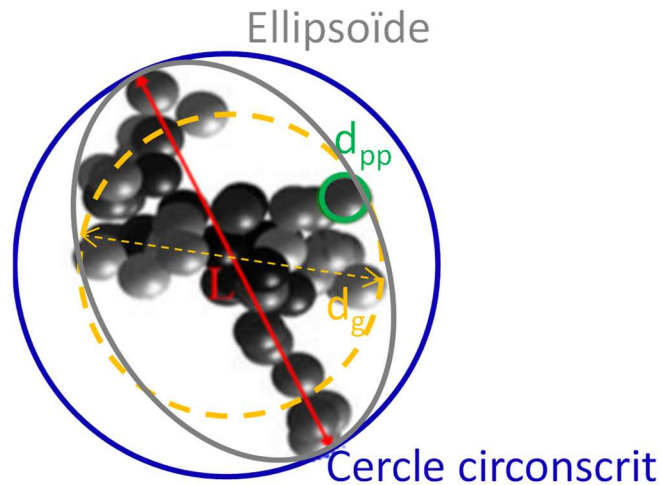


Figure 97 : Schéma des diamètres caractéristiques d'un agrégat

Ne possédant pas de données expérimentales sur la masse du dépôt obtenu (en conséquence le nombre de particules primaires n'est pas connu) pour les agrégats de suies issue de la génération du disperseur, ces données seront retirées de l'analyse qui suit.

- Porosité intra-agrégat via la longueur maximale projetée

Nous rappelons ici l'équation (eq. 85) permettant de déterminer la porosité intra-agrégat à partir de la longueur maximale projetée Figure 97 :

$$\varepsilon_{intra L} = 1 - k_f^{\frac{3}{D_f}} \cdot (N_{pp})^{\frac{D_f-3}{D_f}} \cdot \left( \frac{D_f}{D_f + 2} \right)^{3/2}$$

Le Tableau 30 regroupe l'ensemble des valeurs de porosité intra-agrégat calculées par cette équation :

| Aérosol             | $d_m$ (nm) | L (nm) | Porosité intra-agrégat |
|---------------------|------------|--------|------------------------|
| Carbone             | 101        | 287    | 0,989                  |
|                     | 132        | 354    | 0,991                  |
|                     | 165        | 564    | 0,995                  |
| Aluminium           | 48         | 90     | 0,942                  |
|                     | 84         | 150    | 0,975                  |
|                     | 107        | 260    | 0,990                  |
| Titane              | 68         | 245    | 0,997                  |
|                     | 112        | 512    | 0,999                  |
|                     | 131        | 573    | 0,999                  |
| Cuivre              | 31         | 89     | 0,999                  |
|                     | 77         | 351    | 0,989                  |
|                     | 108        | 673    | 0,999                  |
| Suies du CAST       | 190        | 971    | 0,999                  |
| Suies de l'Argonaut | 114        | 1154   | 0,999                  |

Tableau 30 : Valeurs de porosité intra-agrégat calculées par la méthode de la longueur maximale projetée

Une majorité des résultats semble se regrouper à une porosité intra-agrégat proche de 100 %. L'aluminium, de par son nombre de particules primaires très faible (< 40) présente des porosités très disparates allant de 94 % à 99 %. Plus le nombre de particules primaires augmente, plus la porosité intra-agrégat est importante. La Figure 98 présente le graphe de parité entre cette porosité intra-agrégat et celle déterminée théoriquement.

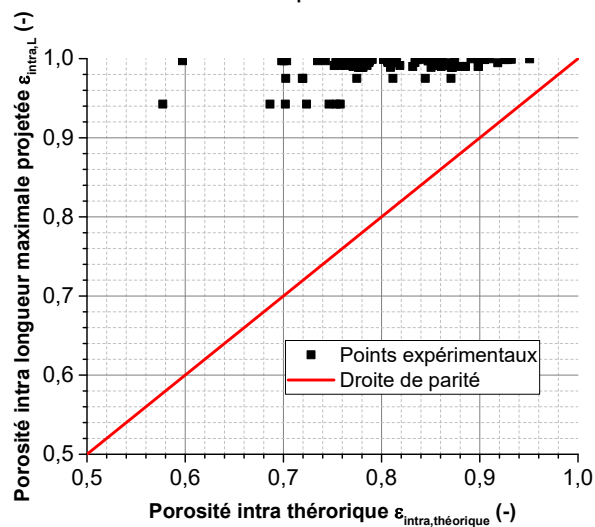


Figure 98 : Graphe de parité entre la porosité intra-agrégat calculé par la longueur maximale projetée et la porosité intra théorique

La porosité intra-agrégat calculée par la longueur maximale projetée reste proche des 100 %, seul l'aluminium suit une tendance bien différente où la porosité varie de 94 % à 99 %. Cette méthode ne semble pas convaincante.

- Porosité intra-agrégat via le diamètre de giration :

Nous rappelons ici l'équation permettant de déterminer la porosité intra-agrégat à partir du diamètre de giration (eq. 87) :

$$\varepsilon_{intra\ d_g} = 1 - k_f^{\frac{3}{D_f}} \cdot (N_{pp})^{\frac{D_f-3}{D_f}}$$

Le Tableau 31 regroupe l'ensemble des valeurs de porosité intra-agrégat calculées par cette équation :

| Aérosol             | $d_m$ (nm) | $d_g$ (nm) | Porosité intra-agrégat |
|---------------------|------------|------------|------------------------|
| Carbone             | 101        | 198        | 0,966                  |
|                     | 132        | 244        | 0,974                  |
|                     | 165        | 388        | 0,985                  |
| Aluminium           | 48         | 57         | 0,779                  |
|                     | 84         | 95         | 0,905                  |
|                     | 107        | 165        | 0,962                  |
|                     |            |            |                        |
| Titane              | 68         | 166        | 0,991                  |
|                     | 112        | 346        | 0,997                  |
|                     | 131        | 388        | 0,997                  |
| Cuivre              | 31         | 60         | 0,983                  |
|                     | 77         | 235        | 0,998                  |
|                     | 108        | 451        | 0,999                  |
| Suies du CAST       | 190        | 661        | 0,972                  |
| Suies de l'Argonaut | 114        | 794        | 0,935                  |

Tableau 31 : Valeurs de porosité intra-agrégat calculées par la méthode du diamètre de giration

Tout comme pour la méthode de la longueur maximale projetée, une majorité des résultats semble se regrouper autour d'une porosité intra-agrégat proche de 100 %. La Figure 99 présente le graphe de parité entre cette porosité intra-agrégat et celle déterminée théoriquement.

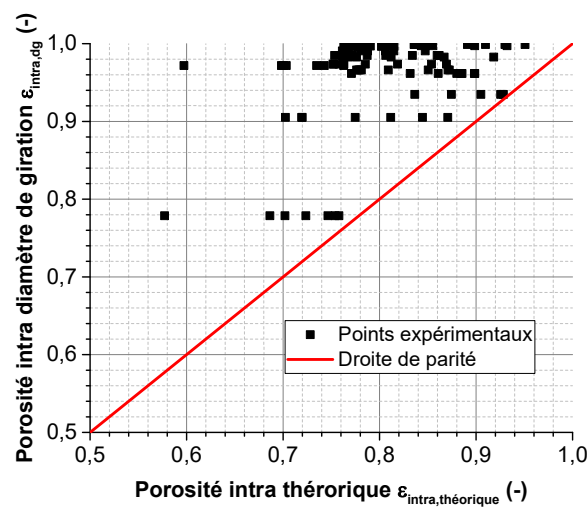


Figure 99 : Graphe de parité entre la porosité intra-agrégat calculé par le diamètre de giration et la porosité intra théorique



La dispersion semble cette fois plus importante. La porosité totale est proche à 100 % sauf pour l'aluminium dont la porosité varie de 78 % à 96 %. Cette nouvelle porosité intra-agrégat déduite par la méthode du diamètre de giration n'est pas convaincante.

- Porosité intra-agrégat via un rapport de diamètres caractéristiques

La porosité intra-agrégat est cette fois exprimée à partir du rapport entre le diamètre de giration et du diamètre de mobilité électrique de l'agrégat. Ainsi nous proposons l'équation suivante :

$$\varepsilon_{intra\ d_c} = 1 - k_f^{\frac{1}{D_f}} \cdot \left(\frac{d_g}{d_m}\right)^{\frac{D_f-3}{3}} \left(\frac{D_f}{D_f + 2}\right)^{3/2} \quad (\text{eq. 100})$$

Avec

$$d_g = d_{pp} \left(\frac{N_{pp}}{k_f}\right)^{1/D_f} \quad (\text{eq. 101})$$

Le Tableau 32 regroupe l'ensemble des valeurs de porosité intra-agrégat ainsi calculées :

| Aérosol             | $d_m$ (nm) | Porosité intra-agrégat |
|---------------------|------------|------------------------|
| Carbone             | 101        | 0,708                  |
|                     | 132        | 0,697                  |
|                     | 165        | 0,742                  |
| Aluminium           | 48         | 0,679                  |
|                     | 84         | 0,661                  |
|                     | 107        | 0,740                  |
| Titane              | 68         | 0,779                  |
|                     | 112        | 0,818                  |
|                     | 131        | 0,811                  |
| Cuivre              | 31         | 0,752                  |
|                     | 77         | 0,831                  |
|                     | 108        | 0,870                  |
| Suies du CAST       | 190        | 0,882                  |
| Suies de l'Argonaut | 114        | 0,876                  |

*Tableau 32 : Valeurs de porosité intra-agrégat calculées par la méthode du rapport de diamètre*  
Par cette méthode, la porosité intra-agrégat calculée se rapproche de la porosité intra-agrégat théorique, comme le présente la Figure 100.

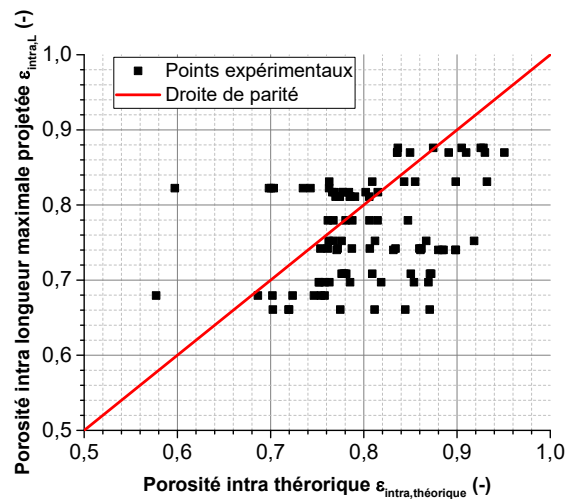


Figure 100 : Graphe de parité entre la porosité intra-agrégat calculé par le rapport de diamètres caractéristiques et la porosité intra théorique

Une comparaison entre la porosité totale calculée à partir de la porosité intra-agrégat (eq. 100) et la porosité inter-agrégat (eq. 80) et la porosité expérimentale du dépôt est donnée Figure 101. Cette approche semble plus pertinente. Cependant, la porosité inter-agrégat déterminée pour les particules sphériques présente de base une légère incertitude. C'est à prendre en compte dans l'interprétation de cette comparaison.

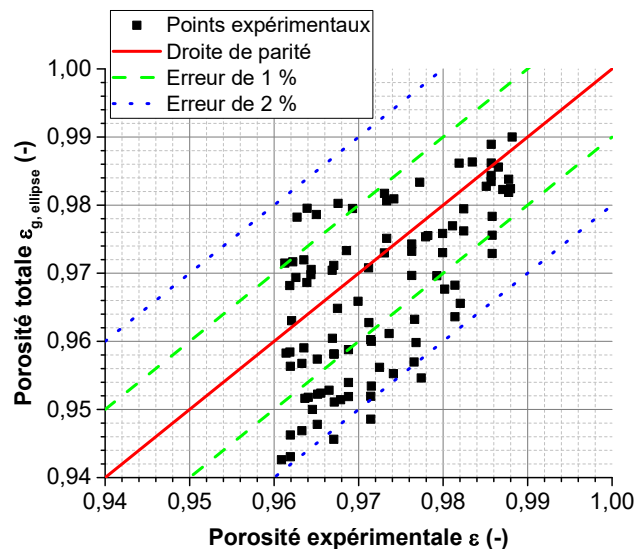


Figure 101 : Graphe de parité entre la porosité totale calculé et la porosité expérimentale

La Figure 101 regroupe les 98 valeurs de porosité déterminées expérimentalement et calculées. Parmi eux, 95 se trouvent dans la zone d'erreur absolue de 2 %. Ainsi 97 % des résultats sont validés avec une marge d'erreur absolue de  $\pm 2\%$ . Dans la zone d'erreur absolue de  $\pm 1\%$ , 59 points expérimentaux y sont présents soit 60 % des résultats.

Les points expérimentaux qui s'écartent le plus du modèle concernent les agrégats issus de l'aluminium, pour lesquels la dimension fractale est la plus faible (1,35) et qui possèdent un nombre de particules primaires très faible ( $< 40$ ). Ces agrégats représentent donc des objets où le diamètre minimum ( $d_g$ ) et maximum ( $L$ ) sont les plus importants. De notre point de vue, l'orientation des agrégats est à l'origine d'un tel écart. D'autant plus que l'écart est plus grand dans la zone

balistique (pour les valeurs de porosité les plus faibles) que dans la zone de diffusion. Dans la zone diffusionnelle, la diffusion domine et par conséquent la position finale de l'agrégat sera aléatoire ; Dans la zone balistique, l'inertie des particules domine et par conséquent, la position finale de l'agrégat est proche de sa position de départ. Le schéma de la Figure 102 résume cette idée :

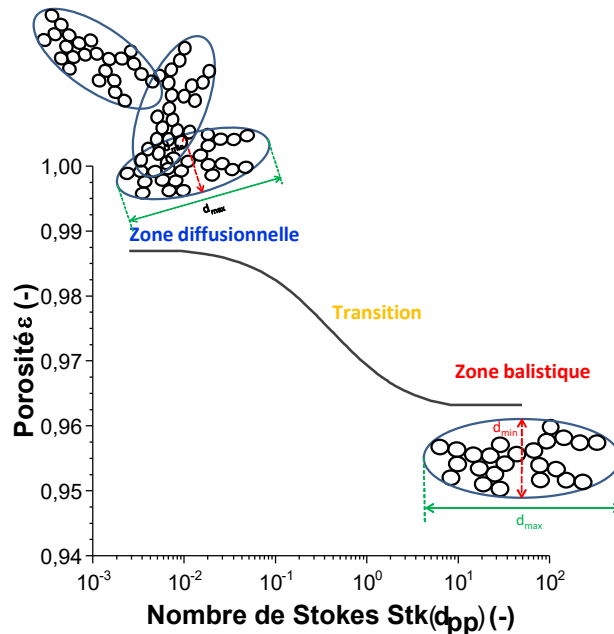


Figure 102 : Schéma de l'orientation d'un agrégat selon son domaine d'étude

Dans le domaine balistique, l'énergie est minimisée donc les agrégats s'accroissent de telle sorte que le diamètre minimum prédomine. Dans le domaine diffusionnel, l'orientation est aléatoire. En moyenne, l'agrégat aura autant de « chance » de s'accumuler horizontalement que verticalement. Il est donc en moyenne orienté de  $45^\circ$ . De la sorte, le vide s'accumule plus facilement et entraîne une porosité plus importante.

## 4. POROSITE D'UN DEPOT DE NANOPARTICULES SUR FILTRE PLISSE

Dans le cas d'un dépôt formé par filtration sur un filtre plissé, le volume du dépôt est conditionné par les porosités intra et inter-agrégats et par la porosité macroscopique définie par Alilou (2018). Afin de prendre en compte la géométrie des filtres, les bancs expérimentaux RAFALES et CATFISH ont été utilisés (cf. description au Chapitre II, 3.2.3.). Le but étant de colmater en parallèle un filtre plan et le filtre plissé à la même vitesse de filtration. Un exemple de courbe de colmatage pour chacune des configurations est visible sur la Figure 103.

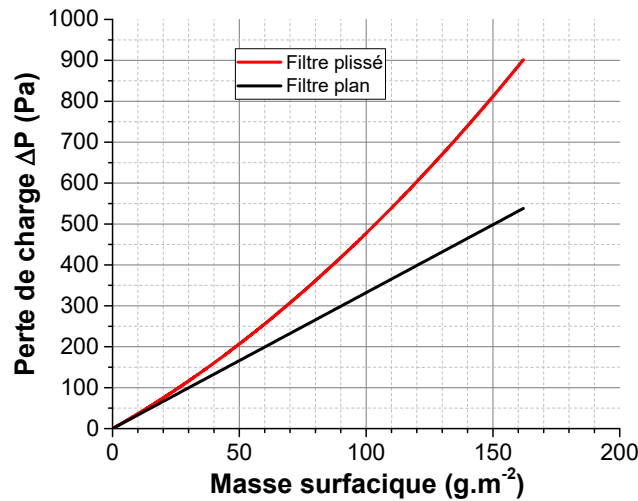


Figure 103 : Évolution de la perte de charge en fonction du temps pour un filtre plissé et plan

#### 4.1. Porosité macroscopique

La porosité macroscopique est liée aux volumes de cavités formées lors du dépôt dans un filtre plissé qui sont conditionnées par la conception du filtre plissé, de l'aérosol et des conditions opératoires. Localement, ces cavités sont formées à l'intérieur du dépôt au sein du filtre plissé engendrant une porosité macroscopique  $\delta$ . Globalement, la porosité macroscopique est la porosité du dépôt qui tient compte des cavités (arches formées). Elle est supérieure à la porosité du dépôt obtenu sur filtre plan. La Figure 104 illustre schématiquement l'ensemble des porosités présentes pour un dépôt dans un pli.

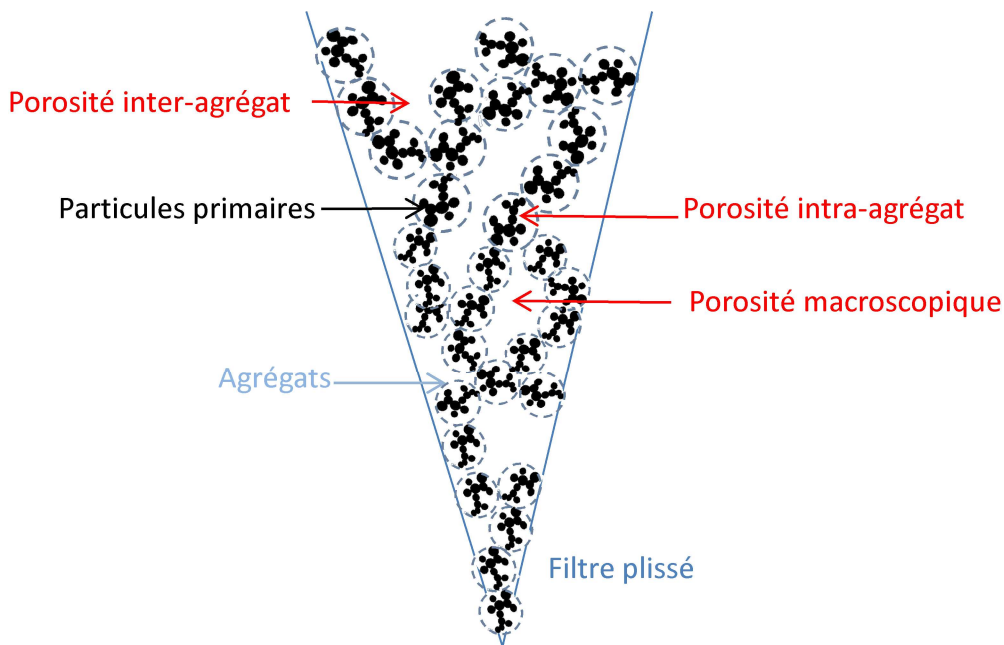


Figure 104 : Schéma des différentes porosités présentes lors d'un dépôt de particules nanostructurées dans le pli d'un filtre

Pour les expériences menées sur filtres plissés, en parallèle de ce dernier, le dispositif MEGAPAN/ULTRAPAN a été utilisé afin de déterminer la valeur des porosités sur filtre plan pour les

mêmes aérosols et dans les mêmes conditions opératoires. A chaque expérience, on mesure la valeur de perte de charge du filtre plan, du filtre plissé et la porosité du dépôt sur filtre plan. L'unique contribution due au plissage est investiguée à travers la réduction de surface.

La porosité macroscopique a un impact faible sur la résistance aéraulique mais important sur la diminution de la surface de filtration. Sur la base des relations proposées par Alilou (2018) décrites dans le chapitre I, cette porosité macroscopique peut être déterminée à partir de la porosité du dépôt sur un filtre plan.

$$\Delta P_{plan} = \frac{\Delta P_{plissé}}{\Delta S} \quad (eq. 102)$$

Avec  $\Delta P_{plan}$  la perte de charge du filtre plan,  $\Delta P_{plissé}$  la perte de charge du filtre plissé et  $\Delta S$  le rapport de surface. Les pertes de charges sont obtenues dans les mêmes conditions et à la même vitesse de filtration.

Le but étant de déterminer l'épaisseur équivalente du dépôt formé sur filtre plissé afin d'obtenir une valeur de  $\Delta S$  confirmant l'équation précédente (eq. 102). Connaissant la masse déposée sur filtre plissé et filtre plan, la porosité du dépôt sur filtre plan, la géométrie du filtre, on en déduit une valeur de porosité macroscopique.

Il est important de noter que la couche de vide ne joue aucun rôle dans l'estimation de la perte de charge induite par la traversée d'une couche élémentaire, mais elle permet de prendre en compte la présence d'espaces libres lors du processus de remplissage des plis par les particules dans la réduction de la surface de filtration. Ainsi on obtient la Figure 105 regroupant les valeurs de porosités macroscopiques pour différentes caractéristiques de filtres plissés et différentes vitesses de filtration.

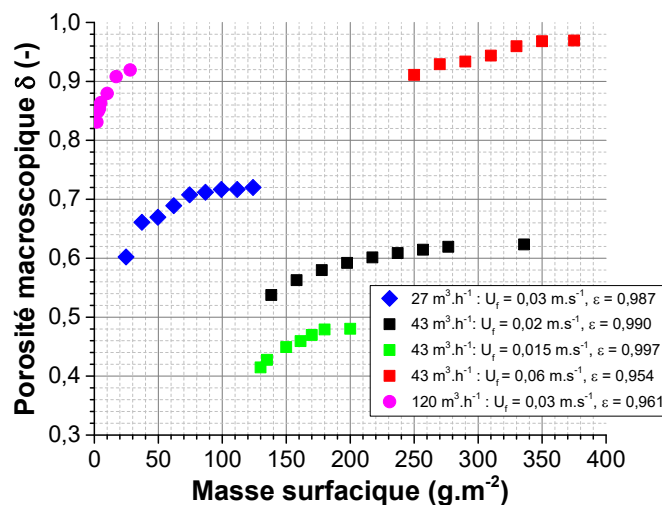


Figure 105 : Évolution de la porosité macroscopique en fonction de la masse déposée pour différentes vitesses de filtration

On remarque une tendance identique sur les points expérimentaux des filtres de  $43 m^3 \cdot h^{-1}$ , si l'on prolonge la courbe rouge. En fonction des caractéristiques (hauteur du pli, pas du plis et nombre de plis) du filtre utilisé, la masse surfacique varie. Le filtre de  $27 m^3 \cdot h^{-1}$  et celui de  $120 m^3 \cdot h^{-1}$  présentent les mêmes caractéristiques, seule la dimension change. On observe également une porosité macroscopique élevée pour des porosités microscopiques faibles. Lorsque l'on se trouve dans le domaine balistique, la porosité macroscopique est grande.

La Figure 106 présente l'évolution de la porosité macroscopique pour deux types de filtres présentant des pas différents (cf Chapitre I, 1.1.2. et Chapitre II, 3.2.4.). La porosité macroscopique est nulle au début du colmatage. Pour une même vitesse, la porosité macroscopique diminue avec la porosité microscopique. L'augmentation de la vitesse de filtration induit une élévation de la porosité macroscopique. Il apparaît que pour une masse surfacique donnée, l'écart perceptible entre deux courbes dépend de la vitesse de filtration et de la porosité microscopique.

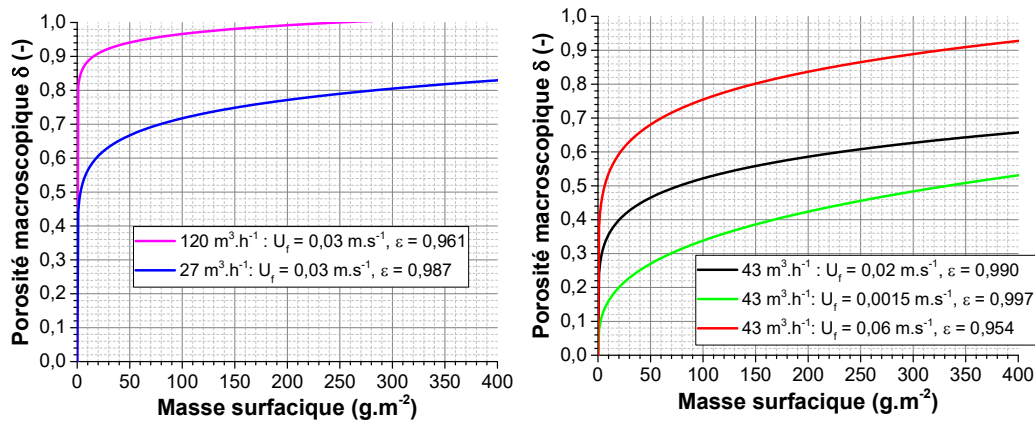


Figure 106 : « Guide pour les yeux » sur l'évolution de la porosité macroscopique pour 2 types de filtres plissés à différentes vitesses de filtration

Le faible nombre de points expérimentaux ne nous permet pas d'aboutir à une corrélation ferme et définitive. Néanmoins, les tendances observées sont cohérentes et permettront d'alimenter une étude de modélisation de la formation de dendrites au sein du pli.

## 5. CONCLUSION

L'étude sur le dépôt de nanoparticules sphériques a permis de définir le nombre de Stokes comme le paramètre le plus pertinent pour observer l'évolution de la porosité du dépôt. Une corrélation semi-empirique (eq. 97) est proposée permettant une estimation de la porosité à  $\pm 3\%$ . Cette étude a également permis de quantifier l'influence des paramètres liés aux conditions opératoires : la pression, le libre parcours moyen, la viscosité dynamique, la vitesse.

$$\varepsilon_g = \varepsilon_{limit_{dif}} + \frac{(\varepsilon_{limit_{bal}} - \varepsilon_{limit_{dif}}) Kn_D^2 Pe}{J + Kn_D^2 Pe} = 0.9876 + \frac{(0.82979 - 0.9876) Stk}{0.06498 + Stk}$$

Globalement, la porosité varie selon trois domaines :

- La zone diffusionnelle ( $Stk < 10^{-2}$ ) caractérisée par une porosité proche de 97,5 %. On peut observer une faible diminution de la porosité avec la diminution de la pression ou du diamètre des particules.

- La zone de transition ( $10^{-2} < Stk$ ) caractérisée par une forte décroissance de la porosité. Dans cette zone, toute chose restant égale par ailleurs, une augmentation du diamètre de particule primaire et de mobilité électrique, de la masse volumique des particules ou de la pression induit une augmentation de la porosité du dépôt.

- La zone balistique ( $Stk > 1$ ) caractérisée par une porosité constante égale à 84%.

Les évolutions de la porosité en fonction des différentes conditions opératoires confirment celles obtenues lors des différentes simulations numériques relevées dans la littérature. Le Tableau 28

résume l'impact de chaque paramètre sur l'évolution de la porosité d'un dépôt formé de nanoparticules pseudo-sphériques isolées.

L'étude sur le dépôt de nanoparticules formé par des agrégats a également permis de déboucher sur une corrélation semi empirique de la porosité selon le nombre de Stokes. Une nouvelle dimension s'ajoute à celle de l'étude sur les sphères mais ne dépend pas des conditions expérimentales. Une variation en fonction du nombre de Péclet, de Stokes, et donc de la vitesse est perceptible. Une grandeur fixe qui dépend que des propriétés des particules générées va influencer la porosité.

L'influence de chaque paramètre morphologique est résumée dans le Tableau 33.

| Paramètres étudiés             | Zone d'étude | Impact sur la porosité | Si oui lequel   |
|--------------------------------|--------------|------------------------|---|
| Nombre de particules primaires | Diffusion    | Fort                   | Pour $N_{pp} < 40$ : $N_{pp} \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$<br>Pour $N_{pp} > 40$ : palier à 98,5 %        |
|                                | Transition   | Fort                   | Pour $N_{pp} < 40$ : $N_{pp} \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$<br>Pour $N_{pp} > 40$ : décroissance identique |
|                                | Balistique   | Fort                   | Pour $N_{pp} < 40$ : $N_{pp} \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$<br>Pour $N_{pp} > 40$ : palier à 96 %          |
| Diamètre de particule primaire | Diffusion    | Faible                 | $d_{pp} \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$   |
|                                | Transition   | Aucun                  | Pente identique   |
|                                | Balistique   | Aucun                  | Palier à 96 %   |
| Dimension fractale             | Diffusion    | Fort                   | $D_f \downarrow$ alors $\epsilon \uparrow$<br>$D_f = 3$ : palier à 97 %<br>$D_f = 1,8$ : palier à 99 %          |
|                                | Transition   | Fort                   | $D_f \downarrow$ alors $\epsilon \uparrow$  |
|                                | Balistique   | Fort                   | $D_f \downarrow$ alors $\epsilon \uparrow$<br>$D_f = 3$ : palier à 84 %<br>$D_f = 1,8$ : palier à 96 %          |

Tableau 33 : Bilan de l'impact des paramètres morphologiques sur l'évolution de la porosité des dépôts selon le nombre de Stokes

Une corrélation semi-empirique a pu être proposée (eq. 98) :

$$\epsilon_g = 0,9875 + \frac{(0,962 - 0,9875)Stk}{0,4 + Stk}$$

En se focalisant sur la construction du dépôt (formation de dendrites), un paramètre fondamental est apparu : la porosité intra-agrégat, représentant le rapport entre le volume de vide au sein de l'agrégat sur le volume de l'agrégat. Cette approche de double porosité a pour but d'utiliser une seule corrélation, celle obtenue pour les particules sphériques et de l'appliquer aux particules nanostructurées. La porosité totale du dépôt est donc découpée en une porosité inter-agrégat (corrélation particules sphériques) et une porosité intra-agrégat (dépendant des caractéristiques morphologiques de l'agrégat). La difficulté de cette approche réside dans la détermination de ce volume. Un diamètre caractéristique a été choisi afin de calculer cette porosité. Ce diamètre évolue selon le domaine dans lequel nous nous trouvons. De ce fait, l'enveloppe de l'agrégat est assimilée à une ellipsoïde et non à une sphère. L'orientation de l'agrégat dans le dépôt est différente en fonction des zones diffusionnelles et balistiques induisant de fait une porosité du dépôt différente.

L'étude complémentaire sur filtre plissé a permis de « valider » un terme introduit par Alilou (2018), la porosité macroscopique. La porosité macroscopique est nulle au début du colmatage. Pour une même vitesse, la porosité macroscopique diminue avec la porosité microscopique. L'augmentation de la vitesse de filtration entraîne une élévation de la porosité macroscopique. Comme la littérature nous l'a indiqué, la porosité macroscopique a été constatée sur les filtres plissés. On a une variation en fonction de la masse accumulée et une variation en fonction de la géométrie du pli, ce qui va dans le sens des simulations de Alilou (2018).

En guise de synthèse, le Tableau 34 regroupe les corrélations proposées suite à notre étude sur les agrégats.

|                               | <b>Corrélation</b>   | <b>Signification des termes</b>   |
|-------------------------------|--|---|
| <b>Porosité globale</b>       | $\varepsilon_g = 0,9875 + \frac{(0,962 - 0,9875)Stk}{0,4 + Stk}$   | Stk : Nombre de Stokes défini à partir de $d_{pp}$  |
| <b>Porosité intra</b>         | $\varepsilon_{intra\ d_c} = 1 - k_f^{\frac{1}{D_f}} \cdot \left(\frac{d_g}{d_m}\right)^{\frac{D_f-3}{3}} \left(\frac{D_f}{D_f + 2}\right)^{3/2}$ | <p><math>k_f</math> : Préfacteur fractal<br/> <math>D_f</math> : Dimension fractal<br/> <math>d_m</math> : Diamètre de mobilité électrique<br/> <math>d_g = d_{pp} \left(\frac{N_{pp}}{k_f}\right)^{1/D_f}</math> avec <math>d_{pp}</math> le diamètre de particules primaires et <math>N_{pp}</math> le nombre de particules primaires</p> |
| <b>Porosité totale</b>        | $\varepsilon_g = \varepsilon_{inter} + (1 - \varepsilon_{inter}) \varepsilon_{intra}$  |   |
| <b>Porosité macroscopique</b> | $\delta = \frac{\omega_a}{\omega_a + \omega_p}$  | <p><math>\omega_a</math> : Espace vide contenu dans le dépôt<br/> <math>(\omega_a + \omega_p)</math> : Volume total du dépôt</p>  |

Tableau 34 : Corrélations semi-empirique de la porosité



---

## CHAPITRE IV : MODELE ANALYTIQUE

### 1. INTRODUCTION

Les approches qui ont été adoptées jusqu'ici s'en tiennent à une observation des résultats expérimentaux et à des corrélations empiriques et certains éléments nous montrent que le système n'est pas décrit de manière complète. En effet, on remarque que certains points expérimentaux sont en dehors des corrélations que nous avons proposées, ce qui nous engage à avoir une réflexion phénoménologique. Les précédents résultats nous ont permis de considérer que le transport des particules conditionne la structure du dépôt. Il doit donc exister un moyen déterministe de décrire ce système sur la base de grandeurs physiques qui sont caractéristiques du gaz et de l'aérosol

### 2. DESCRIPTION PHYSIQUE

#### 2.1. Hypothèses

Avant de décrire notre modèle, au vue de nos résultats et de la littérature existante, on suppose que :

- la formation du dépôt se fait couche par couche comme le montre la Figure 107.
  - les lignes de courant sont perpendiculaires au flux et parallèles entre elles pour la taille des objets que l'on considère. Étant donné la taille des particules considérée, on peut considérer que les perturbations qui sont dues aux particules elles-mêmes et au dépôt sont négligeables au vu du libre parcours moyen de l'air.
  - la diffusion brownienne est la contribution prédominante sur la position finale de chaque particule.
  - le déplacement des particules et la manière dont elles vont s'accumuler pilotent uniquement la porosité.
  - Il n'y a pas de réorganisation du dépôt.
-

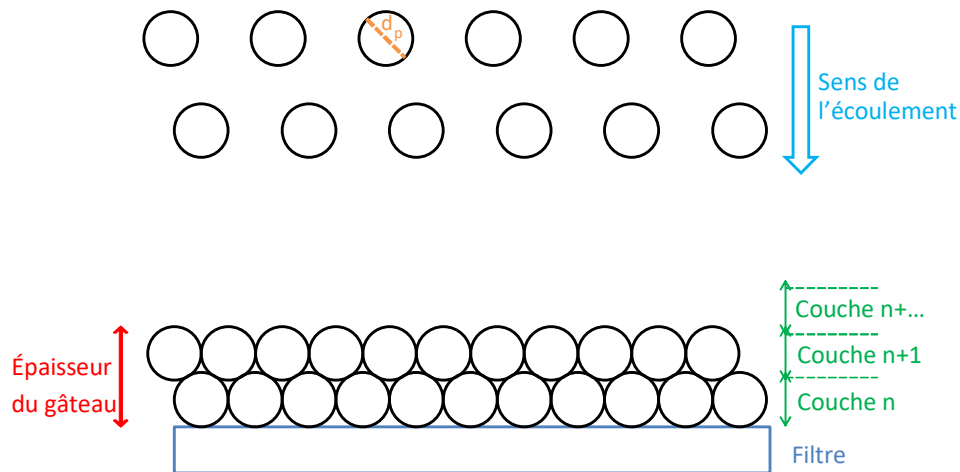


Figure 107 : Schéma du principe d'accumulation

## 2.2. Principe d'accumulation

Dans un premier temps, pour les besoins de l'explication du modèle, on ne considère pas l'interpénétration des couches.

Pour prendre en compte la construction du dépôt il faut s'intéresser à la trajectoire d'une particule. La Figure 108 illustre le trajet d'une particule jusqu'à ce qu'elle soit déposée. Cette particule est transportée jusqu'à sa position finale par advection et diffusion. La force advective représente la force moyenne d'une particule due à l'écoulement.

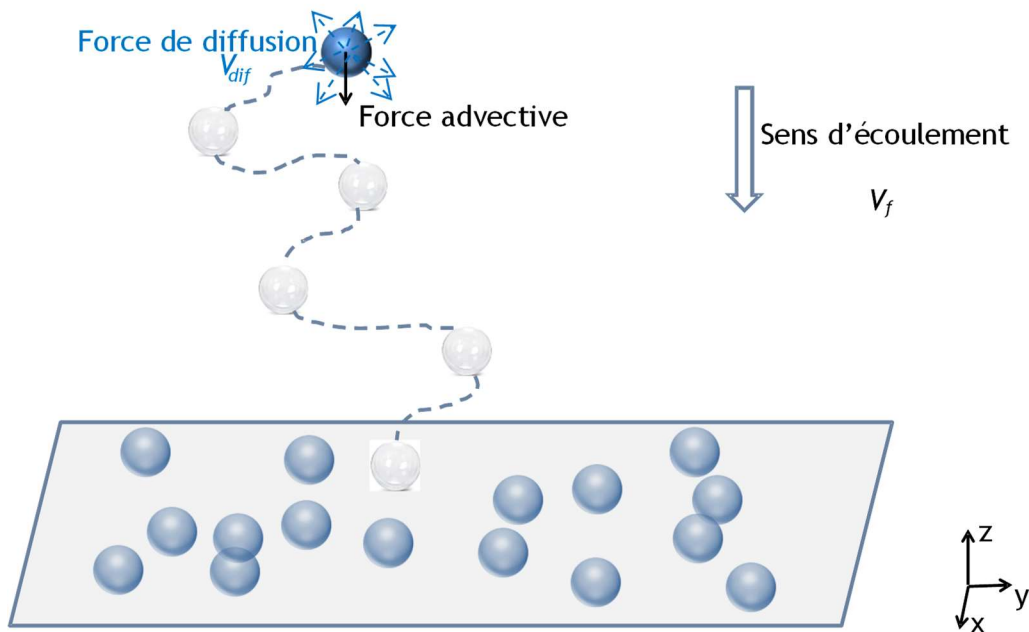


Figure 108 : Schéma global du principe de déposition

On s'intéresse au mécanisme engendrant la position finale d'une particule sur une surface donnée. On cherche à déterminer cette surface, là où une particule se dépose en fonction du coefficient de diffusion.

### 2.2.1. Zone de présence d'une particule

La Figure 109 schématise le dépôt d'une particule entre deux instants  $t$  pour différents coefficients de diffusion.

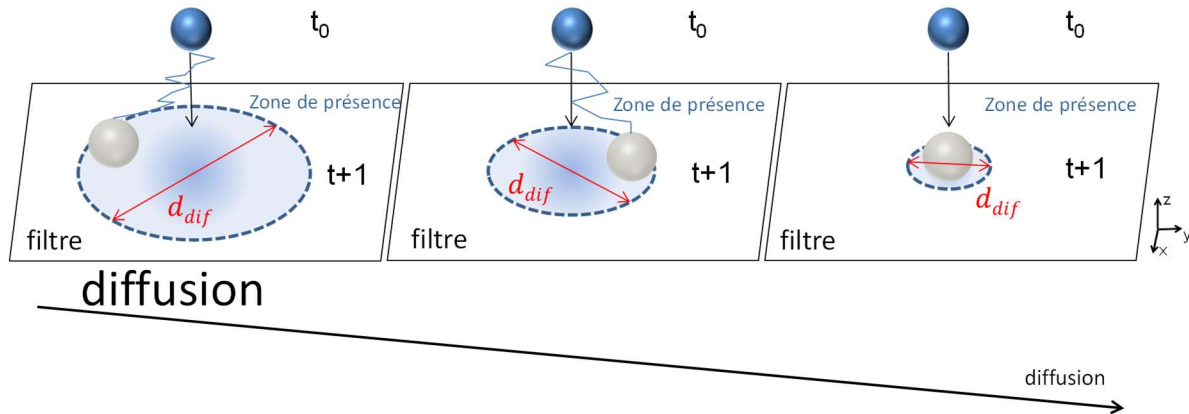


Figure 109 : Zone de présence d'une particule dans un plan pour différents coefficients de diffusion,  $d_{dif}$  représente le diamètre de la surface probable de dépôt

Si l'on considère une particule avant son dépôt à  $t_0$ , à  $t+1$ , lors de son dépôt la particule peut se retrouver sur toute la zone limitée par le trait en pointillé ( $d_{dif}$ ). Plus la diffusion est importante par rapport à la vitesse de l'écoulement, plus le cercle s'agrandit. La diffusion conditionne donc la surface où la particule est possiblement présente. En l'absence de diffusion, la particule aura une trajectoire rectiligne et se trouvera à une position unique (cas à droite dans la Figure 109). Le dégradé de couleur représente la zone de présence probable. Plus la couleur est bleu foncé, plus la particule aura tendance à se positionner dans cette zone.

### 2.2.2. Hypothèse sur la vitesse de diffusion

Pour décrire cette surface et donc la valeur de  $d_{diff}$ , on va devoir s'intéresser à ce qui conditionne cette diffusion. La zone de présence d'une particule dépend de la diffusion  $D$  et de la distance  $d_{dif}$ . Plus la particule est haute, plus sa zone de présence est grande. Pour résoudre ce problème, on ne doit considérer la particule qu'à partir du moment où elle arrive à une distance égale à son propre diamètre de la surface du filtre.

Lorsque cette particule parcourt cette distance, sa position sera le résultat d'interactions avec l'air conduisant à un certain nombre de trajectoires rectilignes dont la distance moyenne est donnée par le libre parcours moyen de l'aérosol (eq. 103).

La Figure 110 schématise le déplacement dû à la diffusion pour deux cas.

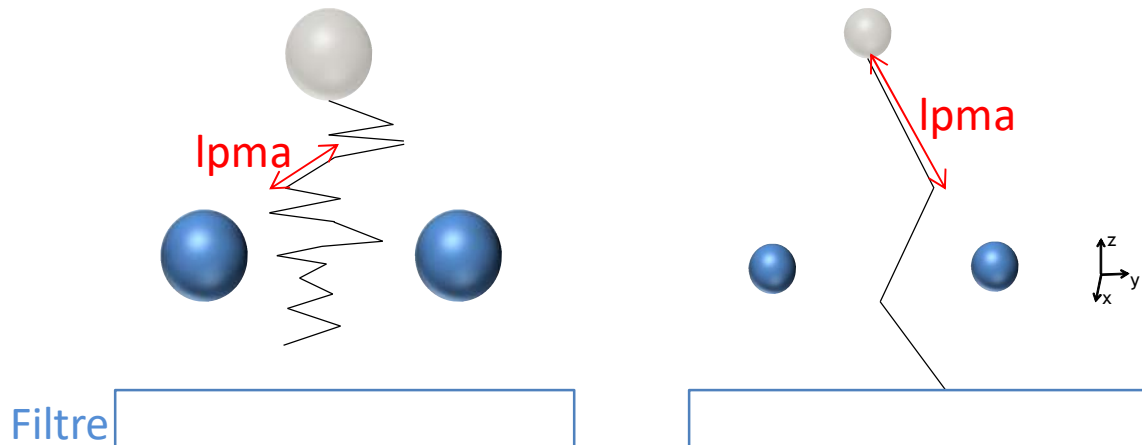


Figure 110 : Schéma de la vitesse de diffusion pour différentes tailles de particules

Dans le cas de gauche, le diamètre des particules est grand devant le libre parcours moyen du gaz. Deux particules sont déposées, la particule qui arrive aura une trajectoire décomposée en plusieurs petites trajectoires afin de passer entre ces deux particules. Dans le cas de droite, le diamètre des particules est faible devant le libre parcours moyen. La particule qui se dépose aura une trajectoire décomposée en un très faible nombre de trajectoires rectilignes.

Afin de calculer la vitesse de déplacement de la particule dans le plan du filtre ( $V_{dif}$ ) à partir d'une distance initiale égale à son propre diamètre, nous considérerons ici le rapport entre le coefficient de diffusion et le libre parcours moyen :

$$V_{dif} = \frac{D}{lpma} \quad (eq. 103)$$

Avec  $D$  le coefficient de diffusion et  $lpma$  le libre parcours moyen de la particule.

Le coefficient de diffusion est donnée par :

$$D = \frac{k_b T C_u}{3\pi \eta d_p} \quad (eq. 104)$$

Avec  $k_b$  la constante de Boltzman,  $T$  la température,  $C_u$  le coefficient de Cunningham,  $\eta$  la viscosité dynamique et  $d_p$  le diamètre de la particule.

Et le libre parcours moyen vaut :

$$lpma = \frac{(V_p \rho k_b T)^{1/2}}{f} \quad (eq. 105)$$

Avec  $V_p$  le volume d'une particule, ici une sphère,  $\rho$  la masse volumique de la particule,  $k_b$  la constante de Boltzman,  $T$  la température et  $f$  le coefficient de friction qui s'exprime comme tel :

$$f = \frac{k_b T}{D} \quad (eq. 106)$$

### 2.2.3. Détermination du temps critique et de la distance de diffusion

Lorsque la particule se dépose, il y a une contribution en plus due à l'écoulement, caractérisée ici par la vitesse de filtration. Le temps que la particule va mettre pour traverser une distance équivalente à son propre diamètre correspond au temps critique. On considère uniquement le mouvement qui est normal au média.

Le temps parcouru par la particule sur une distance  $d_p$  est donnée par la relation suivante :

$$t_{crit} = \frac{d_p}{U_f + V_{dif}} \quad (eq. 107)$$

Avec  $d_p$  le diamètre de la particule,  $U_f$  la vitesse de filtration et  $V_{dif}$  la vitesse de diffusion.

Pendant ce temps critique, compte tenu de sa vitesse de diffusion, la particule peut se déplacer latéralement par rapport à son déplacement perpendiculaire au dépôt.

La particule est gouvernée par ses propres propriétés. L'équation d'Einstein montre que le déplacement moyen au carré d'une particule qui diffuse est proportionnel au temps de diffusion :

$$\overline{x^2} = 2Dt_{crit} \quad (eq. 108)$$

La distance que nous cherchons est une distance de diffusion d'une particule. Il faut prendre en compte la vitesse du flux (vitesse de diffusion et vitesse de filtration) :

$$d_{dif} = \frac{V_{dif}}{U_f} \sqrt{2D t_{crit}} \quad (eq. 109)$$

Avec  $V_{dif}$  la vitesse de diffusion d'une particule,  $U_f$  la vitesse de filtration,  $D$  le coefficient de diffusion et  $t_{crit}$  le temps critique.

### 2.2.4. Distance entre plusieurs particules

Si l'on considère un dépôt monocouche où chaque particule se situe sur une surface dont dépend sa trajectoire, alors on peut considérer une distance moyenne entre chaque  $d_{diff}$  tel que calculée plus haut (Figure 111).

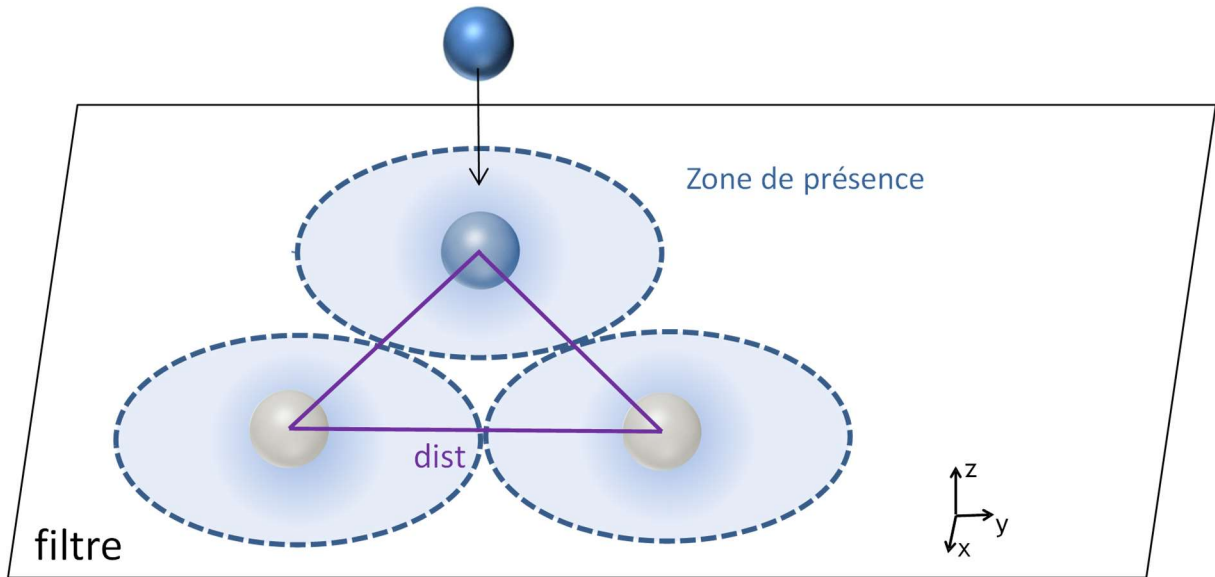


Figure 111 : Probabilité de présence d'une particule au-dessus du dépôt

On connaît notre distance entre deux particules. En considérant la distance à partir du centre de particule, il faut lui rajouter un rayon de chaque particule, d'où :

$$dist = 2d_{dif} + d_p \tag{eq. 110}$$

Avec  $d_{dif}$  la distance de diffusion (caractéristique du mouvement brownien) et  $d_p$  le diamètre de la particule (caractéristique du mouvement de la particule).

**2.2.5. Détermination de la porosité d'un dépôt monocouche**

A partir de cette distance, on considère qu'une particule se déposant sur une couche suit un maillage homogène. On considère ainsi la géométrie du dépôt comme le montre la Figure 111.

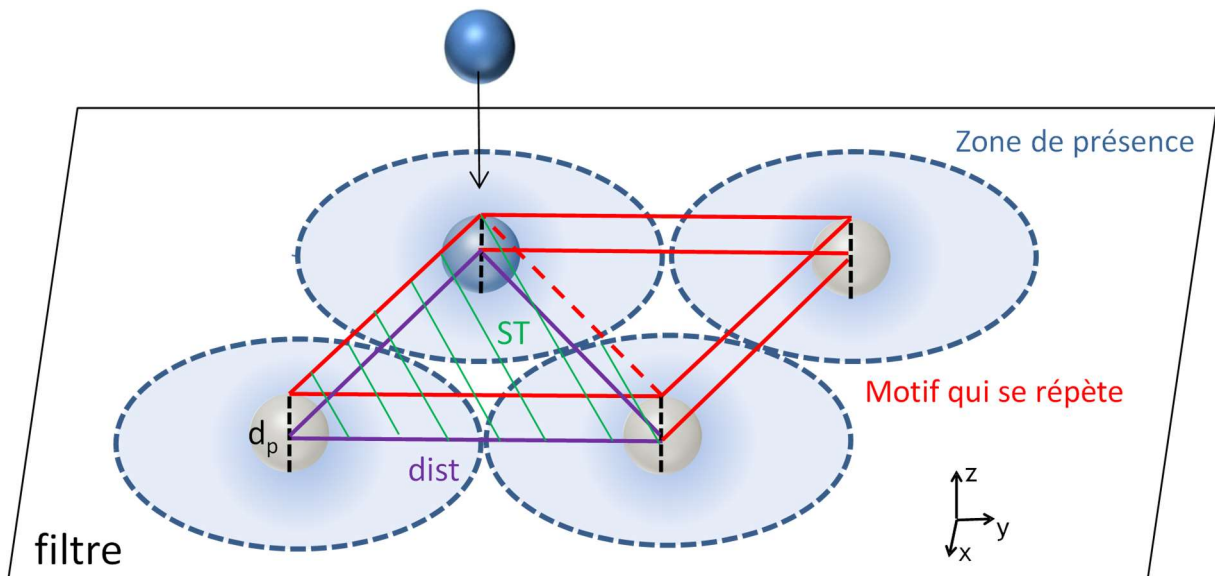


Figure 112 : Probabilité de présence en vue de dessus entre deux centres de particules

A partir de cette distance, on calcule le volume moyen de zone de présence d'une particule qui se dépose, caractérisé par un prisme triangulaire :

$$ST = \frac{1}{2} dist^2 d_p \quad (eq. 111)$$

La porosité se calcule comme le rapport de volume entre le volume d'une particule et le volume de ce prisme :

$$\varepsilon_{mono} = 1 - 0,5 \frac{V_p}{ST} \quad (eq. 112)$$

Avec  $V_p$  le volume d'une particule et  $ST$  le volume moyen de présence d'une particule.

En reprenant avec des termes physiques, on obtient :

$$\varepsilon_{mono} = 1 - \frac{\pi d_p}{3 \left[ \frac{d_p D^3}{U_f (D + U_f \lambda)} + \frac{D}{\lambda U_f} \sqrt{2D \frac{d_p}{U_f + \frac{D}{\lambda}} + d_p} \right]} \quad (eq. 113)$$

### 2.3. Modèle multicouche

Le principe expliqué précédemment ne considère qu'une seule couche. Dans la réalité les particules ne s'accumulent pas strictement selon un schéma avec des diamètres mais elles s'interpénètrent. Expérimentalement, on constate que le dépôt est formé de dendrites. On suppose donc que le dépôt est constitué d'une superposition de dépôts monocouches tels que considérés dans la partie précédente.

Lorsqu'une nouvelle particule se dépose sur une autre particule, elle se dépose selon un angle  $\alpha$ , représenté en Figure 113. Cet angle représente l'angle moyen (dans le plan normal au filtre) entre deux particules qui constituent les dendrites constituant le dépôt. La prise en compte de cet angle permet de calculer la porosité d'un dépôt multicouche.

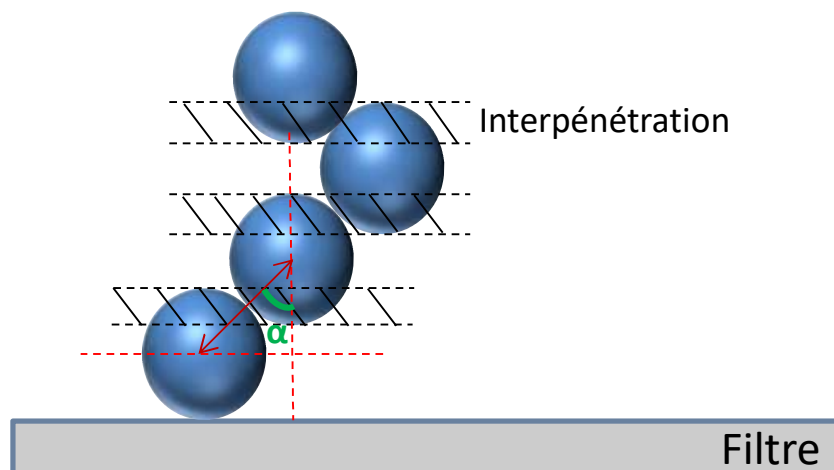


Figure 113 : Principe du modèle multicouche

Plus on diffuse, plus l'angle  $\alpha$  sera ouvert, plus on aura d'interpénétration.

La particule est sphérique, la distance  $dist$  représente la distance entre les deux centres de particules. Notre distance n'est pas tout à fait exacte, il lui faut retirer la courbure de la particule. En considérant un angle  $\alpha$  de  $45^\circ$ , on obtient donc une distance  $dd$  plus faible que la distance  $dist$ , schématisée en Figure 114.

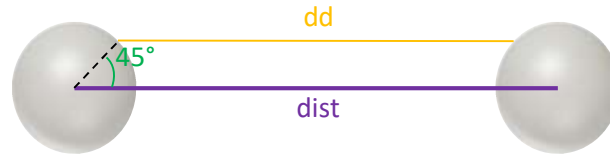


Figure 114 : Schéma de la distance en prenant en compte la courbure de la particule

Ainsi la nouvelle distance s'exprime comme étant :

$$d_d = \frac{3}{4} dist\sqrt{3} \quad (eq. 114)$$

De la même manière que pour le modèle monocouche :

$$ST = \frac{1}{2} dd^2 d_p \quad (eq. 115)$$

La porosité se calcule comme le rapport de volume :

$$\varepsilon_{multi} = 1 - 0,5 \frac{V_p}{ST} \quad (eq. 116)$$

En reprenant avec des termes physiques, on obtient :

$$\varepsilon_{multi} = 1 - \frac{\pi d_p}{\frac{81}{32} \left[ \frac{2d_p D^3}{U_f(D + U_f\lambda)} + \frac{2D}{\lambda U_f} \sqrt{2D \frac{d_p}{U_f + \frac{D}{\lambda}} + d_p} \right]} \quad (eq. 117)$$

Afin de corriger l'écart entre le modèle et nos résultats expérimentaux, un paramètre correctif est ajouté. Ce paramètre fait référence à un angle de  $45^\circ$  :

$$\varepsilon_{multi,angle} = \varepsilon_{multi} \tan(45^\circ) \quad (eq. 118)$$

### 3. RESULTATS POUR DES PARTICULES PSEUDO-SPHERIQUES

#### 3.1. Modèle vs Expériences

Dans le but de tester le modèle simplifié proposé, nous comparons ce modèle aux résultats expérimentaux. Les caractéristiques du gaz et de l'aérosol nous permettent d'obtenir les comparaisons observées en Figure 115. Le modèle multicouche et celui avec prise en compte de l'angle ( $45^\circ$ ) sont représentés sur chacun des graphes.



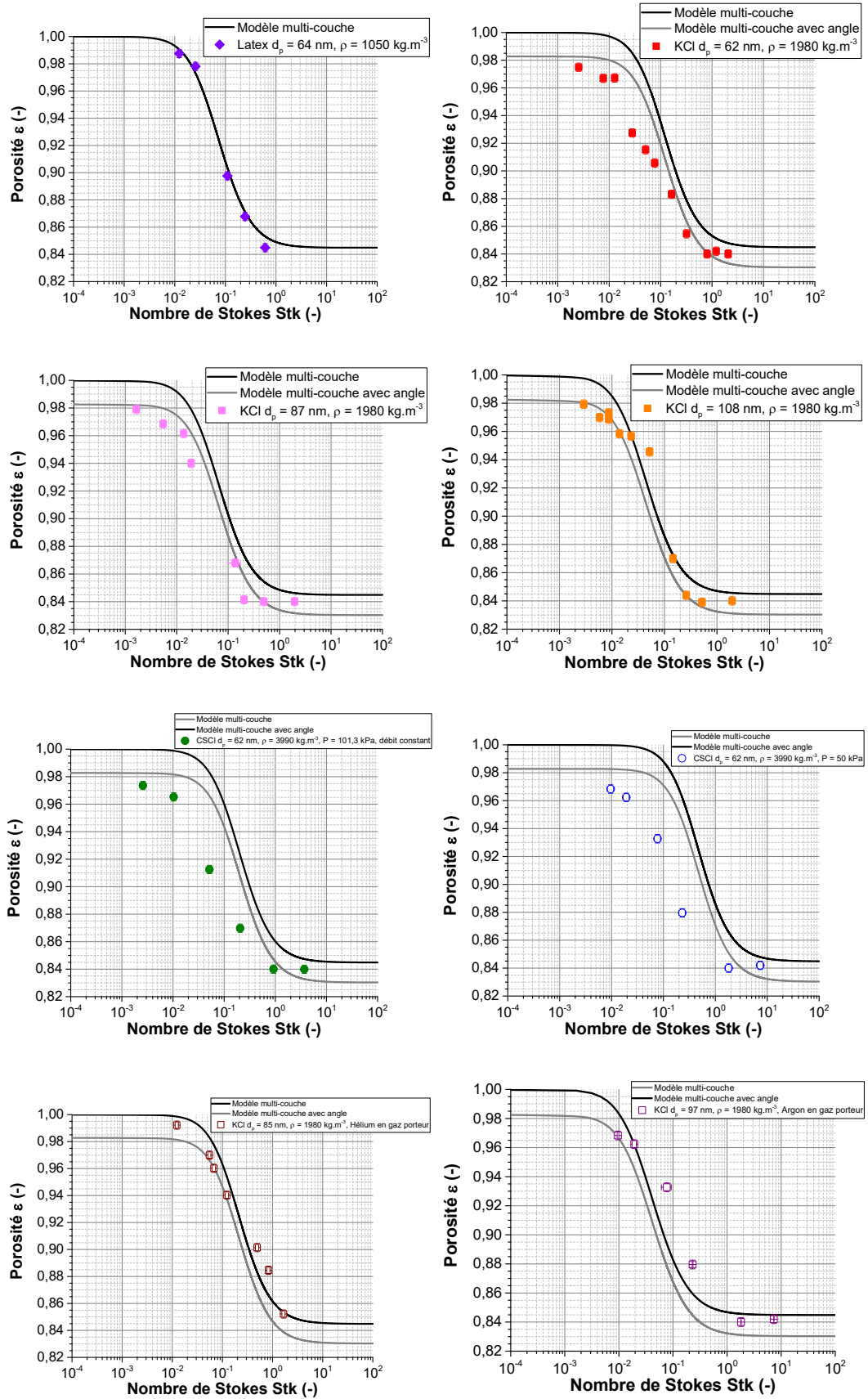
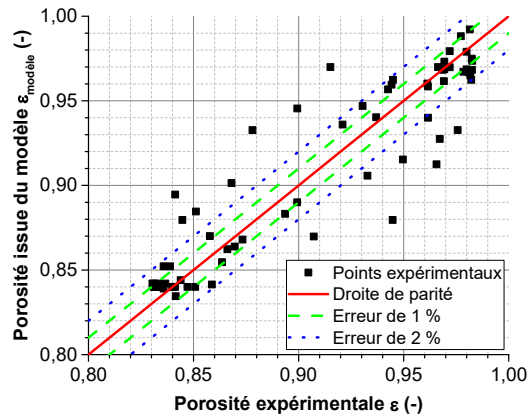


Figure 115 : Valeurs de porosités issues du modèle comparé aux résultats expérimentaux pour le cas de particules pseudo-sphériques

Pour le cas d'un aérosol monodispersé (PSL), le modèle multicouche retrouve les valeurs de porosités expérimentales. Pour le reste, le modèle a tendance à surestimer la porosité dans l'ensemble des trois zones.



Ce modèle, bien que simpliste dans sa construction permet néanmoins une estimation de la porosité à partir des seules caractéristiques de l'aérosol et du gaz.

### 3.2. Étude de sensibilité

On propose d'étendre les résultats et d'observer de manière globale l'influence de chacun des paramètres sur la porosité d'un dépôt de particules sphériques. Deux graphiques sont présentés, l'un avec le modèle multicouche brut et le second avec l'ajout d'un angle comme vu précédemment. Les conclusions de chacun des graphes sont déduites du modèle multicouche sans prise en compte de l'angle (graphique de gauche). Toutes les autres caractéristiques sont fixées de manière identiques entre chaque analyse ( $d_p = 100 \text{ nm}$ ,  $\rho = 2000 \text{ kg.m}^{-3}$ ;  $T = 293 \text{ K}$ ;  $P = 101.4 \text{ Pa}$ ;  $\mu = 1,85 \cdot 10^{-5} \text{ Pa.s}$ ;  $\lambda = 66,4 \text{ nm}$ ).

- Effet du diamètre de particule

La Figure 116 renvoie à l'impact du diamètre de particule sur la porosité du dépôt. De manière générale, la porosité augmente lorsque le diamètre de la particule diminue.

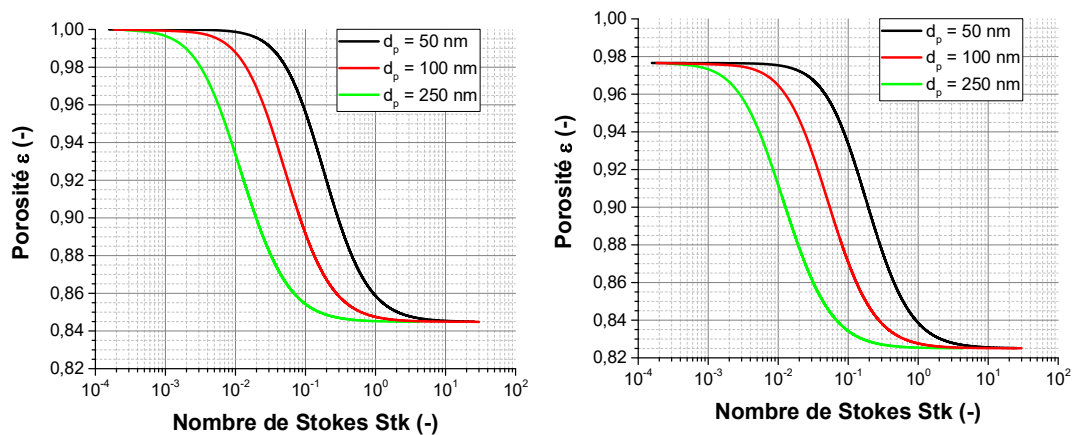


Figure 116 : Influence du diamètre de particule dans le modèle analytique proposé (multicouche à gauche et multicouche avec angle à droite)

Dans la zone diffusionnelle, la porosité n'est pas identique comme nous l'avons observé expérimentalement. En effet, la porosité varie de 94 % à proche de 100 (modèle multicouche). Le palier proche de 100 % est atteint seulement à un nombre de Stokes de  $4 \cdot 10^{-4}$ .

Dans la zone de transition, la pente de la porosité est semblable pour les trois diamètres testés.

Dans la zone balistique, une porosité proche de 84 % est atteinte pour un nombre de Stokes de 3.

- Effet de la température

La Figure 117 renvoie à l'impact de la température sur la porosité du dépôt. La température va modifier la diffusion de l'aérosol à travers le coefficient de diffusion, le coefficient de friction ainsi que le libre parcours moyen de l'aérosol. De manière générale, la porosité augmente lorsque la température augmente.

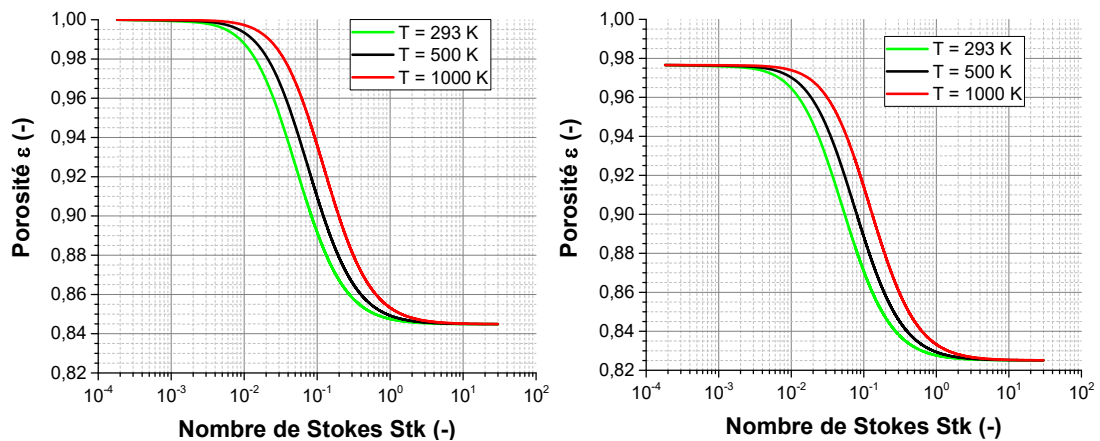


Figure 117 : Influence de la température dans le modèle analytique proposé (multicouche à gauche et multicouche avec angle à droite)

Dans la zone diffusionnelle, la porosité atteint un palier proche du nombre de Stokes de  $10^{-2}$ , comme on pouvait s'y attendre.

Dans la zone de transition, la pente de la porosité est semblable pour les trois diamètres testés. L'écart de porosité entre une valeur de 293 K et 1000 K est faible alors que le ratio de température est proche de 3,5.

Dans la zone balistique, une porosité proche de 84 % est atteinte pour un nombre de Stokes de 3.

- Effet de la pression

La Figure 118 renvoie à l'impact de la pression sur la porosité du dépôt. La pression va modifier la valeur du coefficient de Cunningham et le libre parcours moyen. De manière générale, on observe un décalage des courbes sur l'axe x. Plus la pression diminue, plus elle se décale vers un nombre de Stokes plus élevé.

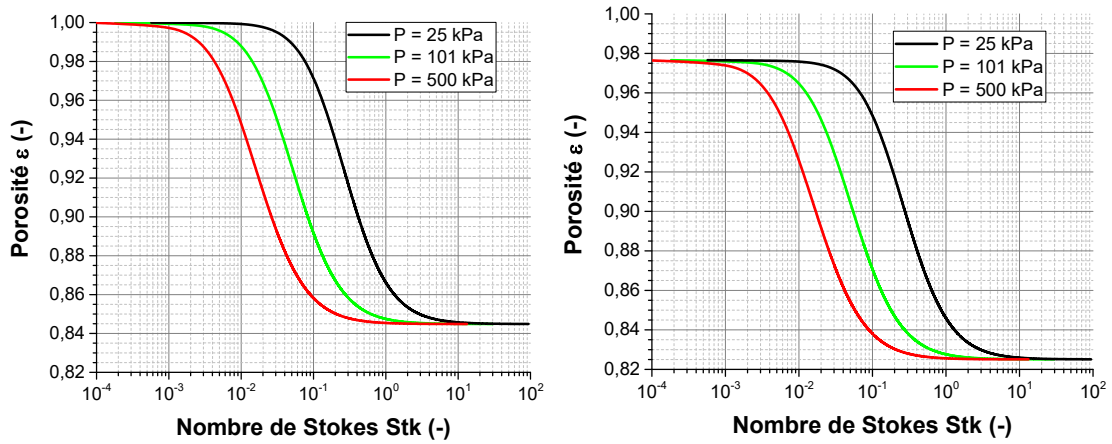


Figure 118 : Influence de la pression dans le modèle analytique proposé (multicouche à gauche et multicouche avec angle à droite)

Dans la zone diffusionnelle, la porosité atteint un palier proche de 100 %. Dans la zone balistique, une porosité proche de 84 % est atteinte. La pression n’a aucune influence sur la porosité du dépôt.

- Effet du libre parcours moyen

La Figure 119 renvoie à l’impact du libre parcours moyen sur la porosité du dépôt. De manière générale, plus le libre parcours moyen augmente, plus la courbe se décale à des plus grands nombres de Stokes.

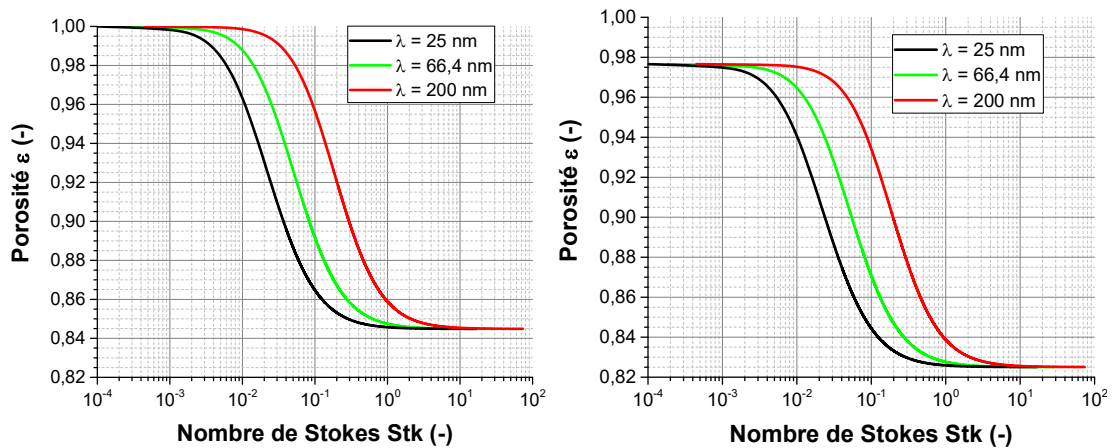


Figure 119 : Influence du libre parcours moyen dans le modèle analytique proposé (multicouche à gauche et multicouche avec angle à droite)

Dans la zone diffusionnelle, la porosité atteint un palier proche de 100 %. Dans la zone balistique, une porosité proche de 84 % est atteinte. Le libre parcours moyen n’a aucune influence sur la porosité du dépôt.

- Effet de la viscosité dynamique

La Figure 121 renvoie à l’impact de la viscosité dynamique sur la porosité du dépôt. De manière générale, plus la viscosité dynamique augmente, plus la courbe se décale à des plus faibles nombres de Stokes.

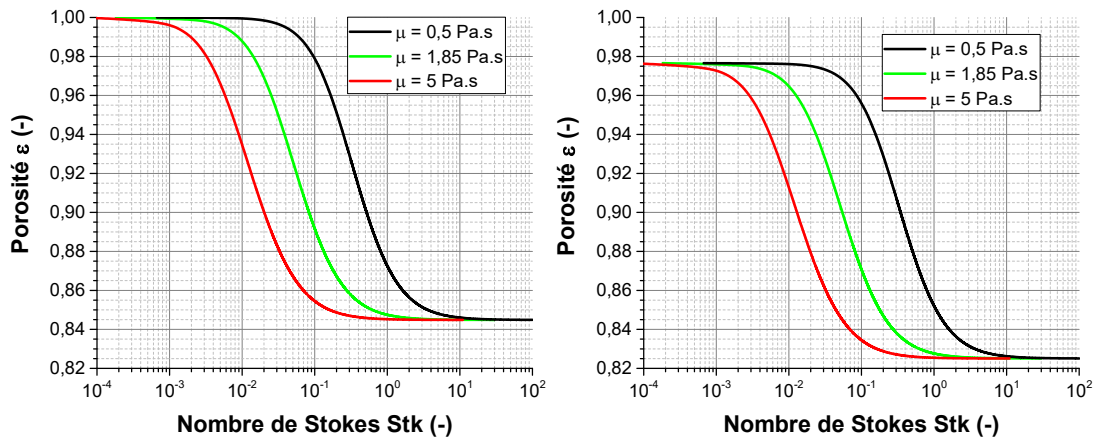


Figure 120 : Influence de la viscosité dynamique dans le modèle analytique proposé (multicouche à gauche et multicouche avec angle à droite)

Dans la zone diffusionnelle, la porosité atteint un palier proche de 100 %. Dans la zone balistique, une porosité proche de 84 % est atteinte. La viscosité dynamique n’a aucune influence sur la porosité du dépôt.

- Effet de la masse volumique

La Figure 121 renvoi à l’impact de masse volumique sur la porosité du dépôt. De manière générale, plus la masse volumique augmente, plus la courbe se décale à des plus grands nombres de Stokes.

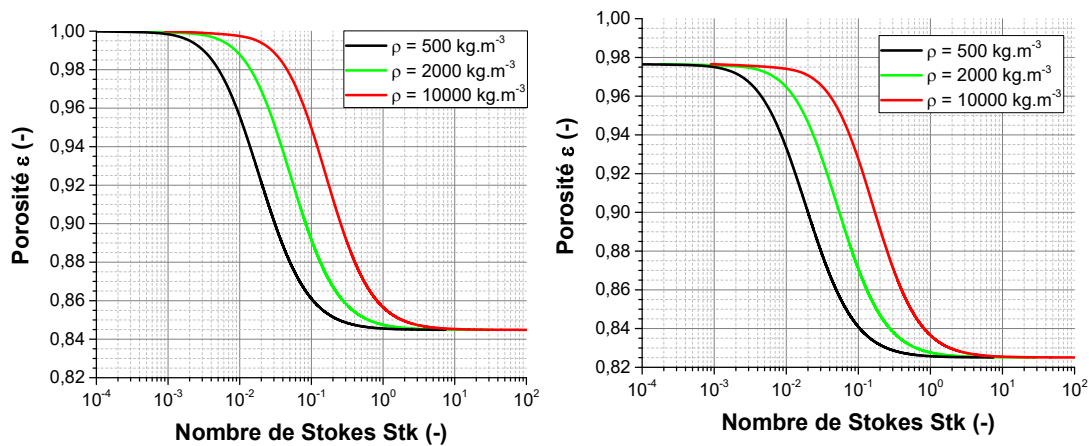


Figure 121 : Influence de la masse volumique dans le modèle analytique proposé (multicouche à gauche et multicouche avec angle à droite)

Dans la zone diffusionnelle, la porosité atteint un palier proche de 100 %. Dans la zone balistique, une porosité proche de 84 % est atteinte. La masse volumique n’a pas d’influence sur la porosité du dépôt.

## 4. CONCLUSION

Afin d’outrepasser le caractère empirique de notre étude sur les sphères (cf Chapitre III), et des observations que nous avons faites, un modèle conçu de manière entièrement physique a été établi.

On sait, de nos précédentes conclusions, que le transport des particules conditionne leur accumulation. A partir de là, et en posant plusieurs hypothèses (formation couche par couche, lignes de courant perpendiculaires au flux et parallèles entre elles, diffusion brownienne prédomine, pas de réorganisation, transport des particules pilote la porosité), une approche physique permet de décrire l'évolution de la porosité du dépôt. En s'intéressant à une particule isolée, en admettant que seule sa diffusion gouvernera sa position finale sur le filtre/couche précédente, et en fixant une distance à partir de laquelle cette particule est considéré (ici  $d_p$ ) il est possible d'obtenir une probabilité de présence de la particule à l'instant final. En fixant un maillage homogène composé de triangles équilatéraux, on détermine la porosité par un rapport de volume.

Bien que le modèle reste simple dans sa conception, il donne des résultats très prometteurs. En effet, par l'ajout d'un angle de contact fixé arbitrairement, les courbes du modèle sont très proches des points expérimentaux. En étendant le modèle, on peut analyser l'ensemble de paramètres influant la porosité du dépôt. L'influence de chacun des paramètres est résumée dans le Tableau 35. Concernant l'influence du diamètre de particules, l'impact observé par le modèle n'est pas identique à l'expérience, il est même inverse. Pour la pression, l'impact est quasi identique entre le modèle et l'expérience. De même pour l'influence du libre parcours moyen et de la masse volumique.

|                       |              | Modèle                 |  | Expériences            |  |
|-----------------------|--------------|------------------------|--|------------------------|--|
| Paramètres étudiés    | Zone d'étude | Impact sur la porosité | Si oui lequel  | Impact sur la porosité | Si oui lequel                                |
| Diamètre de particule | Diffusion    | Fort                   | $d_p \uparrow$ alors $\epsilon \downarrow$                                 | Aucun                  | Palier à 98 %                                |
|                       | Transition   |                        |  | Aucun                  | Pente identique                              |
|                       | Balistique   | Faible                 | Porosité à 84 % à partir d'un nombre de Stokes de 3                        | Aucun                  | Palier à 84 %                                |
| Température           | Diffusion    | Très faible            | Palier proche de 100 %   |                        |  |
|                       | Transition   | Faible                 | $T \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$                                     |                        |  |
|                       | Balistique   | Aucun                  | Palier à 84 %  |                        |  |
| Pression              | Diffusion    | Faible                 | Palier proche de 100 % à partir d'un nombre de Stokes de $3 \cdot 10^{-3}$ | Aucun                  | Palier à 98 %                                |
|                       | Transition   | Fort                   | $P \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$                                     | Aucun                  | Dépendant des autres paramètres              |
|                       | Balistique   | Faible                 | Porosité à 84 % à partir d'un nombre de Stokes de 3                        | Aucun                  | Palier à 84 %                                |
| Libre parcours moyen  | Diffusion    | Faible                 | Palier proche de 100 % à partir d'un nombre de Stokes de $10^{-3}$         | Faible                 | $\lambda \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$ |
|                       | Transition   | Fort                   | $\lambda \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$                               | Fort                   |  |
|                       | Balistique   | Faible                 | Porosité à 84 % à partir d'un nombre de Stokes de 3                        | Aucun                  | Palier à 84 %                                |
| Viscosité dynamique   | Diffusion    | Faible                 | Palier proche de 100 % à partir d'un nombre de Stokes de $10^{-3}$         | Fort                   | $\mu \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$     |
|                       | Transition   | Fort                   | $\mu \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$                                   | Très Fort              |  |
|                       | Balistique   | Faible                 | Porosité à 84 % à partir d'un nombre de Stokes de 10                       | Fort                   |  |
| Masse volumique       | Diffusion    | Faible                 | Palier proche de 100 % à partir d'un nombre de Stokes de $10^{-3}$         | Aucun                  | Palier à 98 %                                |
|                       | Transition   | Fort                   | $\rho \uparrow$ alors $\epsilon \uparrow$                                  | Faible                 | $\rho$ alors $\epsilon \uparrow$             |
|                       | Balistique   | Très faible            | Palier à 84 %  | Aucun                  | Palier à 84 %                                |

Tableau 35 : Bilan de l'impact des paramètres influant l'évolution de la porosité des dépôts selon le nombre de Stokes

## CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

Cette étude s'inscrit dans le cadre du programme de recherche commun (LRGP/IRSN) LIMA qui s'intéresse notamment aux interactions médias-particules et dont l'objectif principal est de disposer de modèles phénoménologiques de colmatage en air sec. Ce travail de thèse visait, plus spécifiquement, à l'amélioration des modèles de colmatages des filtres THE existants. Pour y parvenir, une attention particulière a été portée à la porosité des dépôts. Cette donnée d'entrée pour tous les modèles de pertes de charge développés dans la littérature s'avère très impactante sur la valeur de perte de charge des dépôts de particules de tailles nanométriques.

L'étude bibliographique sur la porosité des dépôts a permis de mettre en évidence de nombreux manques. En effet, il existe très peu de données expérimentales sur la porosité d'un dépôt formé de nanoparticules. De plus, ces expériences ne sont pas systématiques. La grande majorité des études sur ce sujet porte essentiellement sur des simulations numériques et dont les résultats n'ont pu être confrontés à l'expérience.

Devant ce manque de données, une méthodologie expérimentale spécifique a été développée afin d'étudier notamment l'influence sur la porosité des dépôts de la taille et la morphologie des particules, des caractéristiques physico-chimiques des particules et du gaz vecteur (nature, masse volumique, viscosité) et des conditions opératoires (vitesse de filtration, pression).

Par ailleurs, un banc expérimental permettant d'étudier la porosité de dépôts de nanoparticules filtrées sur média plan a été spécifiquement conçu. Ce banc comprend trois grandes zones. La première concerne la génération des aérosols (sphérique ou agrégats). La seconde concerne la caractérisation des aérosols générés. La troisième porte sur la caractérisation du dépôt en connaissant la masse déposée et l'épaisseur du dépôt formé. Pour mesurer l'épaisseur de ce dépôt, un premier dispositif par mesure laser issu des travaux de Bourrous *et al.* (2016) a été amélioré et un second, plus précis a été développé. A partir de la mesure de l'évolution de l'épaisseur du dépôt couplée à sa masse déposée au cours du temps il est possible de déterminer sa porosité.

La première phase de l'étude s'est consacrée aux particules nanométriques pseudo-sphériques. Les contributions de la masse et du diamètre des particules, de la vitesse de filtration et du coefficient de diffusion à la porosité du dépôt ont été étudiées dans une large gamme de  $Pe$  ( $10^{-2} < Pe < 10^2$ ) permettant d'isoler la contribution de la diffusion et de l'inertie des particules. Les différentes expériences ont permis de confirmer les tendances observées sur les simulations numériques.

L'évolution de la porosité (56 valeurs) en fonction du nombre de Stokes présente l'allure d'une sigmoïde inversée qui peut être divisée en 3 zones :

- La zone de diffusion ( $Stk < 10^{-2}$ ) caractérisée par une porosité proche de 97,5 %. On peut observer une faible diminution de la porosité avec la diminution de la pression ou du diamètre des particules.
- La zone de transition ( $10^{-2} < Stk < 1$ ) caractérisée par une forte décroissance de la porosité avec le nombre de Péclet. Dans cette zone, toute chose restant égale par ailleurs, une augmentation du diamètre, de la masse volumique des particules ou de la pression induit une augmentation de la porosité du dépôt.
- La zone balistique ( $Stk > 1$ ) caractérisée par une porosité constante égale à 84%.

Une corrélation semi-empirique fonction du nombre de Stokes a été proposée. Cette dernière permet d'estimer la porosité avec une incertitude absolue de  $\pm 3$  % de 95 % des données expérimentales.



La seconde phase de l'étude concernait l'influence de la morphologie des particules sur la porosité du dépôt. Les aérosols d'essais étaient composés de particules nanostructurées, *i.e.* des agrégats ou agglomérats de nanoparticules. L'évolution de la porosité (107 valeurs) en fonction du nombre de Stokes (défini à partir du diamètre de la particule primaire) est similaire à celle des dépôts de nanoparticules sphériques mais avec des valeurs de porosité bien plus élevées.

Une corrélation semi-empirique permettant d'estimer la porosité d'un dépôt de particules nanostructurées à  $\pm 2\%$  a également pu être proposée.

Une approche fondée sur une double porosité (inter et intra-agrégat) a été explorée dans cette seconde phase. La porosité inter-agrégats étant estimée à partir de la corrélation empirique développée dans la phase une sur les nanoparticules pseudo-sphériques et la porosité intra-agrégat étant déterminée à partir des corrélations de la littérature. La difficulté de cette approche réside dans la détermination du diamètre caractéristique pour calculer l'enveloppe de l'agrégat. Au final, l'enveloppe de l'agrégat a été assimilée à une ellipsoïde et non à une sphère. Cette forme permet d'expliquer les différences de porosité relevées dans les zones diffusionnelle et balistique par les orientations différentes des agrégats.

L'étude complémentaire sur filtre plissé a permis de confirmer les simulations de Alilou (2018) qui ont révélé la présence d'une porosité macroscopique au sein d'un dépôt obtenu par filtration. Cette porosité macroscopique est liée à la formation d'arche au sein du pli générant des cavités plus ou moins importantes. Ainsi pour un dépôt de particules nanostructurées trois niveaux de porosité sont observés : une porosité intra-agrégat, une porosité inter-agrégat et une porosité macroscopique.

En conséquence, la suite logique de cette étude serait d'approfondir le travail sur filtre plissé. En effet, partant du modèle de colmatage sur filtre plan il faudrait l'étendre au cas des filtres plissés en se concentrant sur la formation de dendrites au sein du pli. De plus, des études expérimentales sur filtre plissé devront être réalisées. Pour y parvenir, un nouveau dispositif, semblable au dispositif MEGAPAN mais pour filtre plissé doit être développé. Il devra reposer sur une mesure, via une nappe laser, de l'épaisseur d'un dépôt d'agrégats formé sur un filtre plan dont l'angle par rapport à l'écoulement serait modifiable.

## REFERENCES

- AFNOR, XP CEN ISO/TS 80004-1 Nanotechnologies – Vocabulaire – Partie 1 : Termes «coeur». 2015
- Alilou, Y. (2018). *Impact sur le colmatage en régimes transitoire et permanent des écoulements d'air induits par le plissage des médias filtrants THE* (Thèse de doctorat, Université de Lorraine).
- Bau, S., Toussaint, A., Payet, R., & Witschger, O. (2017). Performance study of various Condensation Particle Counters (CPCs): development of a methodology based on steady-state airborne DEHS particles and application to a series of handheld and stationary CPCs. *Journal of Physics: Conference Series* (Vol. 838, No. 1, p. 012002).
- Bourrous, S., Bouilloux, L., Ouf, F. X., Lemaitre, P., Nerisson, P., Thomas, D., & Appert-Collin, J. C. (2016). Measurement and modeling of pressure drop of HEPA filters clogged with ultrafine particles. *Powder Technology*, 289, 109-117.
- Brockmann, J. E., & Rader, D. J. (1990). APS response to nonspherical particles and experimental determination of dynamic shape factor. *Aerosol Science and Technology*, 13(2), 162-172.
- Charvet, A., Bau, S., Coy, N. E. P., Bémer, D., & Thomas, D. (2014). 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), 2418.
- Choi, M. Y., Mulholland, G. W., Hamins, A., & Kashiwagi, T. (1995). Comparisons of the soot volume fraction using gravimetric and light extinction techniques. *Combustion and Flame*, 102(1-2), 161-169.
- Davies, D. C. (1973). *Air filtration academic press. London, New York.*
- Del Fabbro, L. (2001). *Modélisation des écoulements d'air et du colmatage des filtres plissés par des aérosols solides* (Thèse de doctorat, Université Paris-Est Créteil Val de Marne (UPEC)).
- Ehara, K., Hagwood, C., & Coakley, K. J. (1996). 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.
- Elmøe, T. D., Tricoli, A., Grunwaldt, J. D., & Pratsinis, S. E. (2009). Filtration of nanoparticles: evolution of cake structure and pressure-drop. *Journal of Aerosol Science*, 40(11), 965-981.
- Endo, Y., & Alonso, M. (2001). Physical meaning of specific cake resistance and effects of cake properties in compressible cake filtration. *Filtration & separation*, 38(7), 42-46.
- Fotovati, S., Hosseini, S. A., Tafreshi, H. V., & Pourdeyhimi, B. (2011). Modeling instantaneous pressure drop of pleated thin filter media during dust loading. *Chemical engineering science*, 66(18), 4036-4046.
- Fotovati, S., Hosseini, S. A., Tafreshi, H. V., & Pourdeyhimi, B. (2011). Modeling instantaneous pressure drop of pleated thin filter media during dust loading. *Chemical engineering science*, 66(18), 4036-4046.
- Gruy, F., & Cugniet, P. (2004). Experimental study of small aggregate settling. *Journal of colloid and interface science*, 272(2), 465-471.
- Hettkamp, P., Kasper, G., & Meyer, J. (2012). Influence of geometric and kinetic parameters on the performance of pleated filters. In *World filtration congress* (Vol. 11, p. G27).
- Hettkamp, P., Kasper, G., & Meyer, J. (2012). Simulation of pressure drop and capacity for pleated air filters loaded with dust. *Filtration*, 12(3), 185.
- Hinds, W. C. (1999). *Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles*. John Wiley & Sons.
- Johnson, T. J., Symonds, J. P., & Olfert, J. S. (2013). Mass-mobility measurements using a centrifugal particle mass analyzer and differential mobility spectrometer. *Aerosol Science and Technology*, 47(11), 1215-1225.

- Kanaoka, C., Emi, H., Hiragi, S., & Myojo, T. (1986). Morphology of particulate agglomerates on a cylindrical fiber and collection efficiency of a dust loaded fiber. In *Aerosols, Formation, and Reactivity, 2nd International Conference, Berlin* (pp. 674-677).
- Kasper, G., Schollmeier, S., & Meyer, J. (2010). Structure and density of deposits formed on filter fibers by inertial particle deposition and bounce. *Journal of Aerosol Science*, 41(12), 1167-1182.
- Kazemimanesh, M., Moallemi, A., Thomson, K., Smallwood, G., Lobo, P., & Olfert, J. S. (2019). A novel miniature inverted-flame burner for the generation of soot nanoparticles. *Aerosol Science and Technology*, 53(2), 184-195.
- Kim, S. C., Wang, J., Emery, M. S., Shin, W. G., Mulholland, G. W., & Pui, D. Y. (2009). Structural property effect of nanoparticle agglomerates on particle penetration through fibrous filter. *Aerosol Science and Technology*, 43(4), 344-355.
- Kim, S. C., Wang, J., Shin, W. G., Scheckman, J. H., & Pui, D. Y. (2009). Structural properties and filter loading characteristics of soot agglomerates. *Aerosol Science and Technology*, 43(10), 1033-1041.
- Köylü, Ü. Ö., Faeth, G. M., Farias, T. L., & Carvalho, M. D. G. (1995). Fractal and projected structure properties of soot aggregates. *Combustion and Flame*, 100(4), 621-633.
- Mädler, L., Lall, A. A., & Friedlander, S. K. (2006). One-step aerosol synthesis of nanoparticle agglomerate films: simulation of film porosity and thickness. *Nanotechnology*, 17(19), 4783.
- Maynard, A. D., & Aitken, R. J. (2007). Assessing exposure to airborne nanomaterials: current abilities and future requirements. *Nanotoxicology*, 1(1), 26-41.
- Mocho, V. M., & Ouf, F. X. (2011). Clogging of industrial pleated high efficiency particulate air (HEPA) filters in the event of fire. *Nuclear Engineering and design*, 241(5), 1785-1794.
- Novick, V. J., Monson, P. R., & Ellison, P. E. (1992). The effect of solid particle mass loading on the pressure drop of HEPA filters. *Journal of aerosol science*, 23(6), 657-665.
- Ou, Q. (2013). Aerosol Filtration--Agglomerate Particle Filtration and Particle Deposition Uniformity.
- Ouf, F. X., Mocho, V. M., Pontreau, S., Wang, Z., Ferry, D., & Yon, J. (2014). Clogging of industrial High Efficiency Particulate Air (HEPA) filters in case of fire: From analytical to large-scale experiments. *Aerosol Science and Technology*, 48(9), 939-947.
- Ouf, F. X., Mocho, V. M., Pontreau, S., Wang, Z., Ferry, D., & Yon, J. (2015). Physicochemical properties of aerosol released in the case of a fire involving materials used in the nuclear industry. *Journal of hazardous materials*, 283, 340-349.
- Ouf, F. X., Vendel, J., Coppalle, A., Weill, M., & Yon, J. (2008). Characterization of soot particles in the plumes of over-ventilated diffusion flames. *Combustion Science and Technology*, 180(4), 674-698.
- Ouf, F. X., Yon, J., Ausset, P., Coppalle, A., & Maillé, M. (2010). Influence of sampling and storage protocol on fractal morphology of soot studied by transmission electron microscopy. *Aerosol Science and Technology*, 44(11), 1005-1017.
- Ouf, F. X., Coppalle, A., Vendel, J., & Weill, M. E. (2006). Caractérisation des aérosols émis lors d'un incendie. *Faculté des Sciences et Techniques de l'Université de Rouen, France*.
- Penicot-Bauge, P. (1998). *Étude de la performance de filtres à fibres lors de la filtration d'aérosols liquides ou solides submicroniques* (Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine).
- Xu, R. (2002). Electrophoretic light scattering: Zeta potential measurement. *Particle characterization: Light scattering methods*, 289-343.
- Renoux, A., & Boulaud, D. (1998). *Les aérosols: physique et métrologie*. Tec & Doc Lavoisier.
- Rissler, J., Messing, M. E., Malik, A. I., Nilsson, P. T., Nordin, E. Z., Bohgard, M., ... & Pagels, J. H. (2013). Effective density characterization of soot agglomerates from various sources and comparison to aggregation theory. *Aerosol Science and Technology*, 47(7), 792-805.
- Sakano, T., Otani, Y., Namiki, N., & Emi, H. (2000). Particle collection of medium performance air filters consisting of binary fibers under dust loaded conditions. *Separation and purification technology*, 19(1-2), 145-152.

- Schmidt-Ott, A. U. H. W. D. T., Baltensperger, U., Gäggeler, H. W., & Jost, D. T. (1990). Scaling behaviour of physical parameters describing agglomerates. *Journal of Aerosol Science*, 21(6), 711-717.
- Schnaiter, M., Horvath, H., Möhler, O., Naumann, K. H., Saathoff, H., & Schöck, O. W. (2003). UV-VIS-NIR spectral optical properties of soot and soot-containing aerosols. *Journal of Aerosol Science*, 34(10), 1421-1444.
- Shapiro, M., Vainshtein, P., Dutcher, D., Emery, M., Stolzenburg, M., Kittelson, D. B., & McMurry, P. H. (2012). Characterization of agglomerates by simultaneous measurement of mobility, vacuum aerodynamic diameter and mass. *Journal of Aerosol Science*, 44, 24-45.
- Sorensen, C. M. (2001). Light scattering by fractal aggregates: a review. *Aerosol Science & Technology*, 35(2), 648-687.
- Stechkina, I. B., & Fuchs, N. A. (1966). Studies on fibrous aerosol filters—I. Calculation of diffusional deposition of aerosols in fibrous filters. *Annals of occupational Hygiene*, 9(2), 59-64.
- Thomas, D. (2001). *Etude de la filtration des aérosols par des filtres à fibres* (Habilitation à Diriger des Recherches).
- Thomas, D., Penicot, P., Contal, P., Leclerc, D., & Vendel, J. (2001). Clogging of fibrous filters by solid aerosol particles experimental and modelling study. *Chemical Engineering Science*, 56(11), 3549-3561.
- Wang, H. C., & Kasper, G. (1991). Filtration efficiency of nanometer-size aerosol particles. *Journal of Aerosol Science*, 22(1), 31-41.
- Wiesner, M. R., & Chellam, S. (1992). Mass transport considerations for pressure-driven membrane processes. *Journal-American Water Works Association*, 84(1), 88-95.
- Witschger, O., & Fabries, J. F. (2005). Ultra-fine particles and occupational health. 1-characteristics and potential health effects; *Cahiers de Notes Documentaires*.
- Yu, A. B., Feng, C. L., Zou, R. P., & Yang, R. Y. (2003). On the relationship between porosity and interparticle forces. *Powder Technology*, 130(1-3), 70-76.
- Yu, A. B., Bridgwater, J., & Burbidge, A. (1997). On the modelling of the packing of fine particles. *Powder technology*, 92(3), 185-194.
- Yu, A. B., Feng, C. L., Zou, R. P., & Yang, R. Y. (2003). On the relationship between porosity and interparticle forces. *Powder Technology*, 130(1-3), 70-76.

## ANNEXE I : PRINCIPE DU SMPS

L'appareil de référence pour mesurer en continu la distribution granulométrique des particules dans la gamme submicronique est le Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS). Ce dispositif couple une étape de sélection faite au moyen d'un analyseur différentiel de mobilité électrique (DMA) à une étape de détection optique effectuée par un compteur de noyaux de condensation (CNC). Cet instrument procède à la mesure de la distribution granulométrique de façon séquentielle. Pour chaque taille de particule fixée dans le DMA, est associée une concentration en nombre détecté par le CNC.

Le fonctionnement du DMA, présenté en Figure 122, repose sur le fait que les particules sont chargées électriquement par la source radioactive. L'aérosol est ensuite introduit dans la colonne du DMA et entraîné par de l'air propre. Une électrode polarisée va créer un champ électrique plus ou moins important selon la taille souhaitée des particules en sortie. Les plus petites particules sont captées par l'électrode alors que les grosses particules vont finir au fond de la colonne. Seules les particules de taille souhaitée vont avoir la trajectoire parfaite pour passer dans l'orifice de sortie. On passe dès lors d'un mode polydispersé avant DMA à un mode monodispersé en sortie de DMA / début de CNC. La détermination de la distribution granulométrique est ainsi possible en balayant une large gamme de tensions appliquées au DMA, et donc une large gamme de diamètres de mobilité allant de 13 à 1000nm.

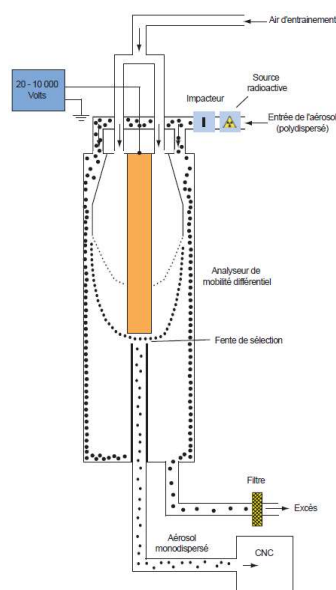


Figure 122 : Schéma de principe d'un SMPS par Witschger et al. (2005)

Le principe du CNC (Figure 123), repose sur une détection optique des particules par l'intermédiaire d'un faisceau lumineux incident et d'un photodétecteur : les particules sont comptées une par une par extinction du faisceau optique. Les particules de taille inférieure à ~300nm n'étant pas détectables par ce procédé. Elles sont donc artificiellement grossies afin de les rendre détectables. Pour ce faire, les particules de l'aérosol pénètrent dans une chambre de saturation où des molécules d'alcool sont présentes sous forme gazeuse. Cette chambre se trouve typiquement à une température de 35°C. Les molécules d'alcool vont ainsi diffuser et s'adsorber à la surface des particules. Ensuite, l'aérosol entre dans une chambre de condensation, où la température est inférieure à 10°C. Les molécules d'alcool vont se condenser autour des particules et provoquer un

accroissement de la taille de ces dernières. Une fois grossies jusqu'à une taille d'environ  $1\mu\text{m}$ , les particules sont comptées.

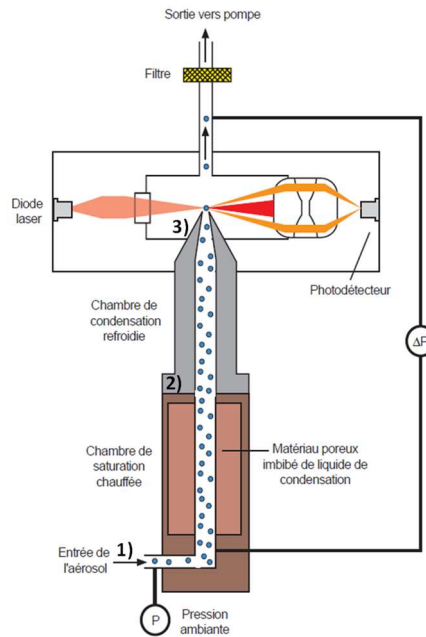


Figure 123 : Schéma de principe d'un CPC d'après Bau et al. (2017)

## ANNEXE II : QUALIFICATION DU DISPERSEUR DE POUDRE

Préalablement, une qualification du système d'alimentation avec une poudre spécifique a été réalisée par la société TEKNA. Pour ce faire, un filtre THE a été placé en sortie de l'alimentation en lieu et place de la sonde de dispersion. La masse du dépôt a été mesurée en temps réel à l'aide d'une balance de précision de résolution 0,1 mg. Le débit de transport était proche de 30 L/min et la vitesse de rotation du servomoteur a été modifiée. Le Tableau 36 présente l'évolution du débit massique de génération de la poudre en fonction de la rotation du moteur.

| Vitesse de rotation du moteur (RPM) | Débit massique de poudre en sortie (g/h) | Variation observée sur le débit massique (g/h) |
|-------------------------------------|--|--|
| 0,05                                | 7,8                                      | 0,5  |
| 0,2                                 | 41,8                                     | N.M.   |
| 1,5                                 | 93                                       | N.M.   |

N.M. : variation non mesurée

*Tableau 36 : Débit massique de poudre en sortie de l'alimenteur*

Les principales conclusions de ce pré-test sont :

- une bonne stabilité de la dispersion de la nanopoudre de suies,
- des débits massiques compris entre 8 et 93 g/h.

Afin d'assurer une génération stable dans le temps et sans phénomène de bouchage, il est nécessaire d'imposer un débit élevé de gaz porteur, ici 38,3 L/min. Le débit de gaz porteur ne joue pas de rôle significatif sur la granulométrie des particules dispersées. A l'inverse, le débit de dispersion joue un rôle très important sur la granulométrie de ces particules, la dispersion étant d'autant plus efficace que le débit de dispersion est élevé. A l'aide de ce paramètre, nous pouvons ainsi produire un aérosol de suie dont le mode de la distribution granulométrique en nombre peut être maîtrisé entre 100 nm et 300 nm. Concernant le débit massique, un réglage à 2 RPM permet d'atteindre une valeur de 3,7 g/h +/- 0,4 g/h. L'augmentation de cette vitesse devrait nous permettre in-fine d'atteindre la valeur cible de débit massique de 10 g/h.

En guise de conclusion, ce dispositif de dispersion est donc parfaitement adapté à la génération d'un aérosol de suie de dimensions, morphologie et composition représentatives d'un aérosol émis lors d'un feu de boîte à gants. Si l'on considère les spécifications suivantes, l'ensemble de celles-ci sont atteintes à l'aide de ce dispositif :

1. Débit massique compris entre 1 et 100 g/h permettant de colmater des filtres THE plissés analytiques étudiés sur le dispositif RAFALES
2. Stabilité du débit massique de génération de l'ordre de +/- 10 %
3. Granulométrie des particules dispersées comprise entre 100 et 400 nm (en accord avec les résultats obtenus pour les foyers analytiques et à grande échelle, Ouf *et al.*, 2008 ; 2014 ; 2015).
4. Morphologie des particules de type « agrégat fractal » constitué de particules primaires de diamètre compris entre 20 et 60 nm.
5. Compositions élémentaire et chimique représentatives de suies d'incendie.

Un tel dispositif permet donc de disperser des suies dont les propriétés physiques sont représentatives de celles d'incendie.



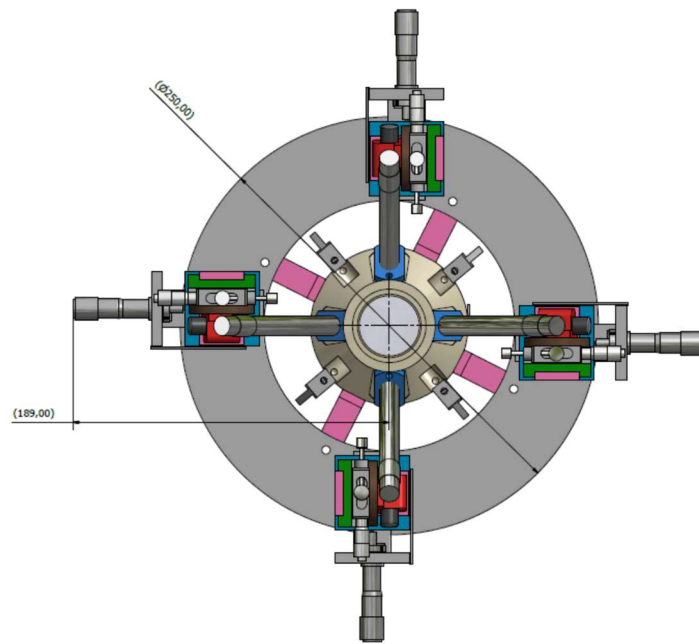
**ANNEXE III : PLAN DU DISPOSITIF ULTRAPAN**

Figure 124 : Vue de dessus du dispositif ULTRAPAN

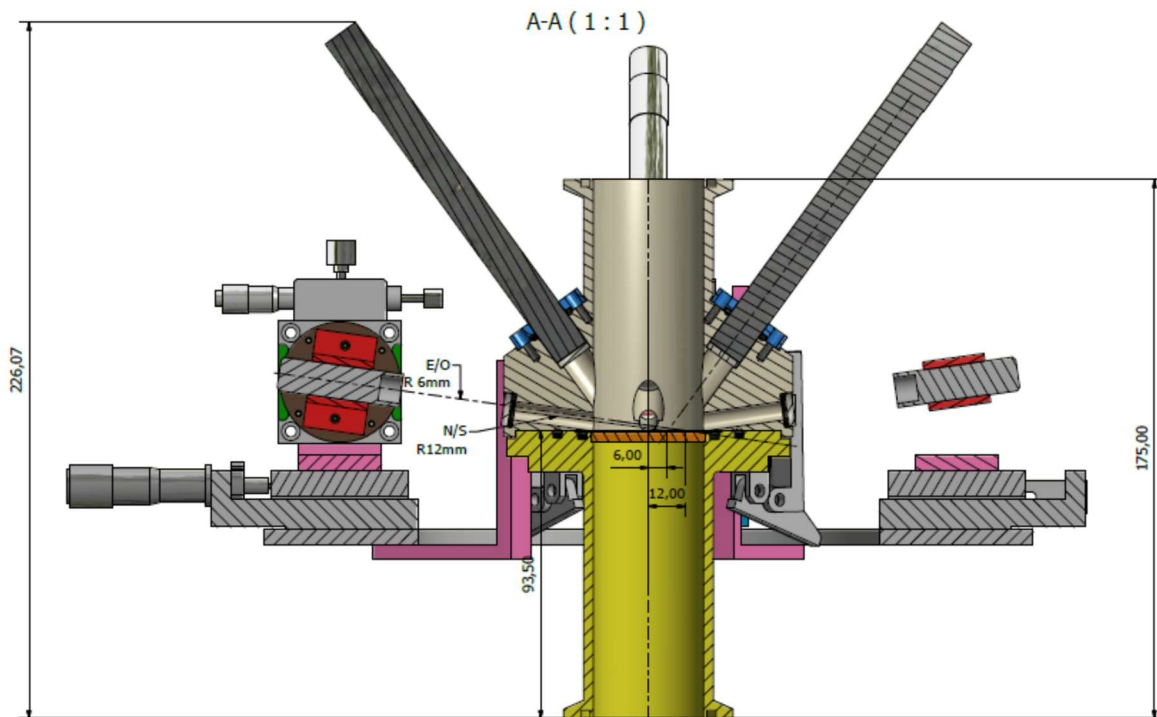


Figure 125 : Vue éclatée de côté du dispositif ULTRAPAN

## ANNEXE IV : INCERTITUDES

### Estimation des incertitudes liées au nombre adimensionnel de Péclet :

Le nombre de Peclet est défini par :

$$Pe = \frac{d_p U_f}{D}$$

Avec  $d_p$  le diamètre de particule, ici le diamètre géométrique de mobilité électrique déterminé à partir du SMPS ou le diamètre des particules primaires déterminée par microscopie TEM ou couplage CPMA/DMA,  $U_f$  la vitesse de filtration et  $D$  le coefficient de diffusion. On étudie donc l'erreur sur chacun de ses paramètres :

- $\sigma_{dp}$  :

A partir des données SMPS on obtient un écart-type associé à plusieurs mesures du diamètre de mobilité électrique. Le Tableau 37 suivant résume l'ensemble de cette incertitude.

| Aérosol     | Gaz porteur | $d_p$ (nm) | $\sigma_{dp}$ (nm) |
|-------------|-------------|------------|--------------------|
| KCl 5 g/L   | Helium      | 85         | 6,2                |
|             | Argon       | 97         | 5,8                |
| KCl 50 g/l  | Air         | 62         | 4,5                |
| KCl 200 g/L |             | 87         | 5,2                |
| KCl 200 g/L |             | 108        | 6,95               |
| CsCl 30 g/L |             | 62         | 8,6                |

*Tableau 37 : Incertitude sur le diamètre de mobilité électrique*

- $\sigma_{Uf}$  :

Expérimentalement la vitesse de filtration est déterminée en fixant un débit. L'incertitude sur le débit est donnée par l'instrument et est de 2 % de la gamme totale, équivalent à 0,2 L/min.

$$\sigma_{Uf} = \sqrt{\left(\frac{\partial \Delta U_f}{\partial Q_f}\right)^2 \sigma_{Q_f}^2}$$

- $\sigma_{Cu}$  :

$$\sigma_{Cu} = \sqrt{\left(\frac{\partial \Delta Cu}{\partial d_p}\right)^2 \sigma_{d_p}^2}$$

- $\sigma_D$  :

$$\sigma_D = \sqrt{\left(\frac{\partial \Delta D}{\partial d_p}\right)^2 \sigma_{d_p}^2 + \left(\frac{\partial \Delta D}{\partial Cu}\right)^2 \sigma_{Cu}^2}$$

- $\sigma_{Pe}$  :

Ainsi pour aboutir à l'incertitude sur le nombre de Peclet, on résout l'équation suivante pour chaque expérience

$$\begin{aligned}\sigma_{Pe} &= \sqrt{\left(\frac{\partial \Delta Pe}{\partial d_p}\right)^2 \sigma_{d_p}^2 + \left(\frac{\partial \Delta Pe}{\partial U_f}\right)^2 \sigma_{U_f}^2 + \left(\frac{\partial \Delta Pe}{\partial D}\right)^2 \sigma_D^2} \\ &= \sqrt{\left(\frac{U_f}{D}\right)^2 \sigma_{d_p}^2 + \left(\frac{d_p}{D}\right)^2 \sigma_{U_f}^2 + d_p^2 U_f^2 \sigma_D^2}\end{aligned}$$

L'incertitude totale varie de  $1.2 \cdot 10^{-3}$ , pour des nombres de Peclet faible ( $< 10^{-3}$ ), à 6,5 pour les nombres de Peclet plus important ( $> 10^2$ ).

#### Estimation des incertitudes liées au nombre adimensionnel de Stokes :

Le nombre de Stokes est défini par

$$Stk = \frac{\rho d_p C_u U_f}{9\eta}$$

Avec  $d_p$  le diamètre de mobilité électrique de la particule déterminé par le SMPS ou le diamètre de particules primaires déterminé par microscopie TEM ou couplage CPMA/DMA,  $U_f$  la vitesse de filtration,  $\rho$  la masse volumique,  $\eta$  la viscosité dynamique et  $C_u$  le coefficient de Cunningham. On étudie donc l'erreur sur chacun de ses paramètres :

- $\sigma_{d_p}$  : Issue des données SMPS, similaire au Tableau 37.

- $\sigma_{U_f}$  :

$$\sigma_{U_f} = \sqrt{\left(\frac{\partial \Delta U_f}{\partial Q_f}\right)^2 \sigma_{Q_f}^2}$$

- $\sigma_{C_u}$  :

$$\sigma_{C_u} = \sqrt{\left(\frac{\partial \Delta C_u}{\partial d_p}\right)^2 \sigma_{d_p}^2}$$

- $\sigma_\rho$  and  $\sigma_\eta$ : D'après les données constructeur

- $\sigma_{Stk}$ :

Ainsi pour aboutir à l'incertitude sur le nombre de Stokes, on résout l'équation suivante pour chaque expérience :

$$\begin{aligned}\sigma_{Stk} &= \sqrt{\left(\frac{\partial \Delta Stk}{\partial \rho}\right)^2 \sigma_\rho^2 + \left(\frac{\partial \Delta Stk}{\partial d_p}\right)^2 \sigma_{d_p}^2 + \left(\frac{\partial \Delta Stk}{\partial C_u}\right)^2 \sigma_{C_u}^2 + \left(\frac{\partial \Delta Stk}{\partial U_f}\right)^2 \sigma_{U_f}^2 + \left(\frac{\partial \Delta Stk}{\partial \eta}\right)^2 \sigma_\eta^2} \\ &= \sqrt{\left(\frac{d_p C_u U_f}{9\eta}\right)^2 \sigma_\rho^2 + \left(\frac{\rho C_u U_f}{9\eta}\right)^2 \sigma_{d_p}^2 + \left(\frac{\rho d_p U_f}{9\eta}\right)^2 \sigma_{C_u}^2 + \left(\frac{\rho d_p C_u}{9\eta}\right)^2 \sigma_{U_f}^2 + \left(\frac{-\rho d_p C_u U_f}{9\eta^2}\right)^2 \sigma_\eta^2}\end{aligned}$$

L'incertitude totale varie de  $1 \cdot 10^{-3}$ , pour des nombres de Stokes faible ( $< 10^{-2}$ ), à 0,1 pour les nombres de Stokes plus important ( $> 10$ ).

Estimation des incertitudes liées à la porosité des dépôts :

La porosité d'un dépôt de particules formé à la surface d'un filtre plan est déterminée par le biais de la mesure du taux de croissance du dépôt défini par la relation suivante :

$$\varepsilon = 1 - \left( \frac{m}{\rho_p T_X S_f} \right)$$

L'incertitude totale  $\sigma_\varepsilon$  reliant la mesure de porosité dépend des paramètres suivants :

- $\sigma_{\rho_p}$ : Issue de la littérature et du couplage CPMA/DMA

$\sigma_{T_X}$  :

- Par régression linéaire. Une droite est identifiée sur la mesure de l'épaisseur brute. Cette droite constitue la « croissance théorique du dépôt » (Figure 126)

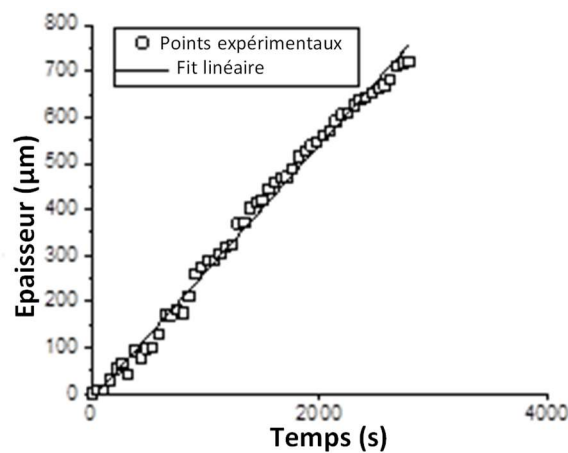


Figure 126 : Écart les valeurs théoriques d'épaisseurs et les valeurs mesurées par le dispositif MEGAPAN

La différence entre la courbe théorique et les points expérimentaux sont exprimés par une loi normale en 0 et d'écart-type  $\sigma_p$  (Figure 127)

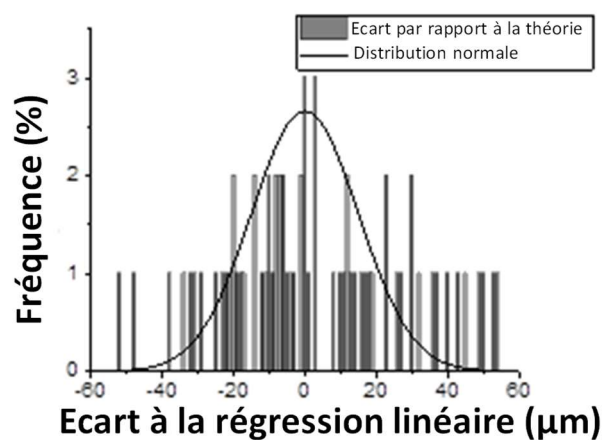


Figure 127 : Distribution de la déviation entre l'épaisseur théorique et les valeurs mesurées par le dispositif MEGAPAN

- Mesure de la masse déposée dépend majoritairement de l'erreur de l'instrument utilisé pour déterminer la concentration massique (ici le TEOM)

$\sigma_{S_f}$ : - Détermination de la surface de filtration, estimé à 5 %

Ainsi pour aboutir à l'incertitude sur la porosité des dépôts de particules, on résout l'équation suivante pour chaque expérience :

$$\sigma_\varepsilon = \sqrt{\left(\frac{\partial\Delta\varepsilon}{\partial\rho}\right)^2 \sigma_\rho^2 + \left(\frac{\partial\Delta\varepsilon}{\partial R_x}\right)^2 \sigma_{R_x}^2 + \left(\frac{\partial\Delta\varepsilon}{\partial S_f}\right)^2 \sigma_{S_f}^2}$$

$$= \sqrt{\left(\frac{-1}{\rho^2 R_x S_f}\right)^2 \sigma_\rho^2 + \left(\frac{-1}{R_x^2 \rho S_f}\right)^2 \sigma_{R_x}^2 + \left(\frac{-1}{S_f^2 \rho R_x}\right)^2 \sigma_{S_f}^2}$$

L'incertitude totale sur la porosité est par conséquent très faible :  $\Delta\varepsilon = 0.003$

## ANNEXE V : ETAT DE SURFACE DES DEPOTS

Dans le but d'observer un motif qui se répète, des clichés MEB de la surface de chaque dépôt ont été réalisés au même grossissement. Les photographies suivantes permettent de comparer les surfaces des dépôts de suies, ceux issus du GFG-1000 avec différentes natures électrodes, et de dépôts composés de particules sphériques monodispersées et de particules sphériques sous différents gaz porteurs.

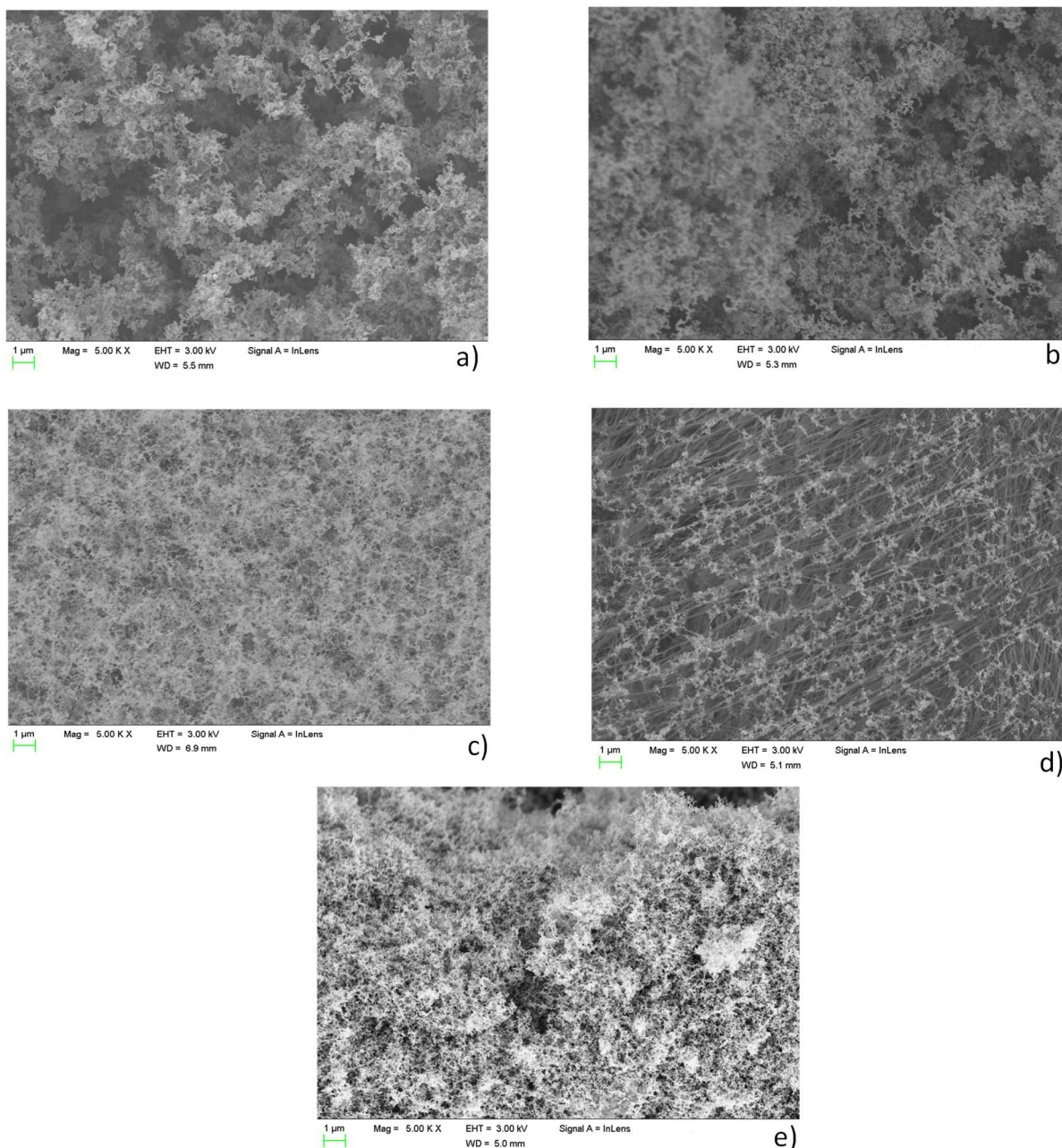


Figure 128 : Images MEB des dépôts de suie avec en a) issu du disperseur à faible vitesse ; b) issu du disperseur à grande vitesse ; c) issu du CAST à faible vitesse ; d) issu de l'Argonaut à faible vitesse et e) issu de l'Argonaut à forte vitesse

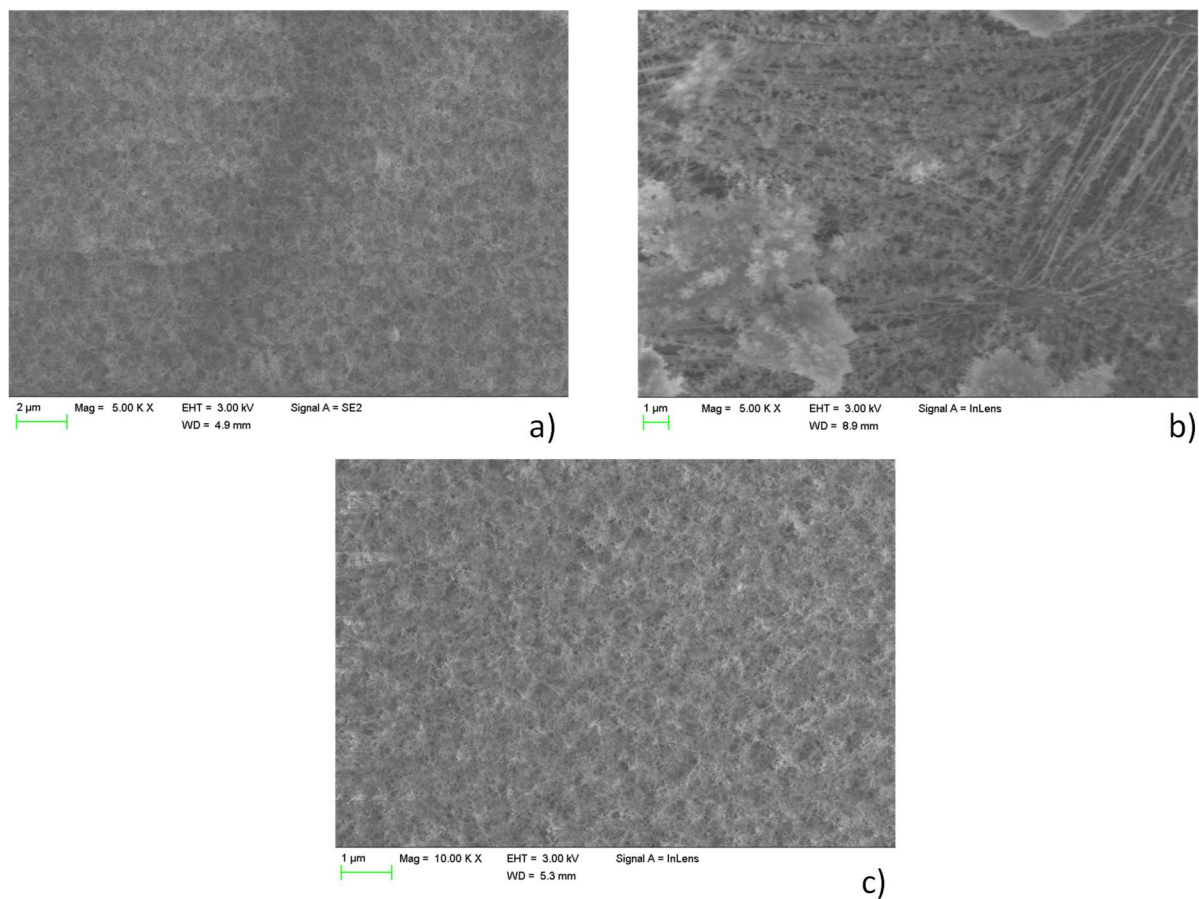


Figure 129 : Images MEB des dépôts issus du GFG-1000 avec a) électrodes en titane à faible vitesse; b) électrodes en cuivre à forte vitesse ; c) électrodes en aluminium à forte vitesse

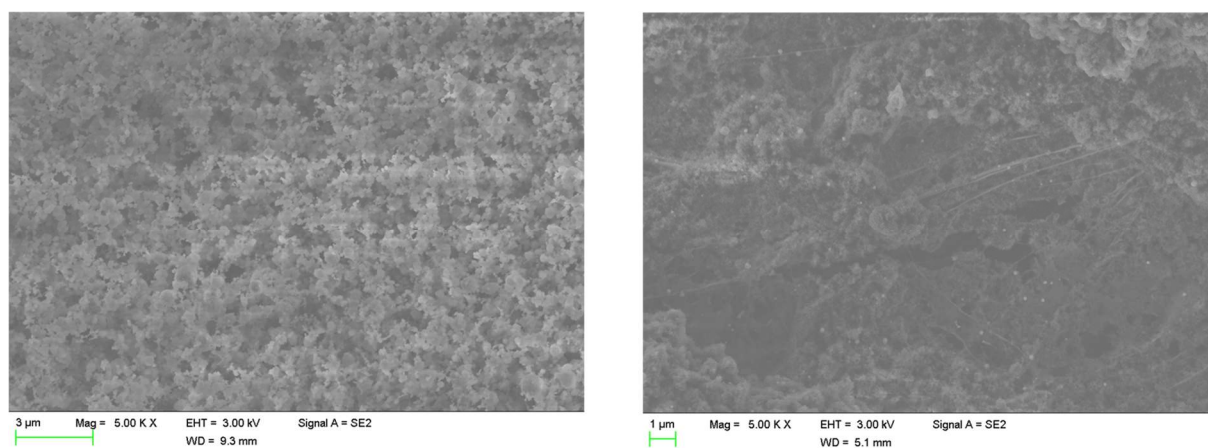


Figure 130 : Images MEB d'un dépôt de particules sphériques monodispersées de diamètre de 64nm à faible (à gauche) et forte vitesse (à droite)

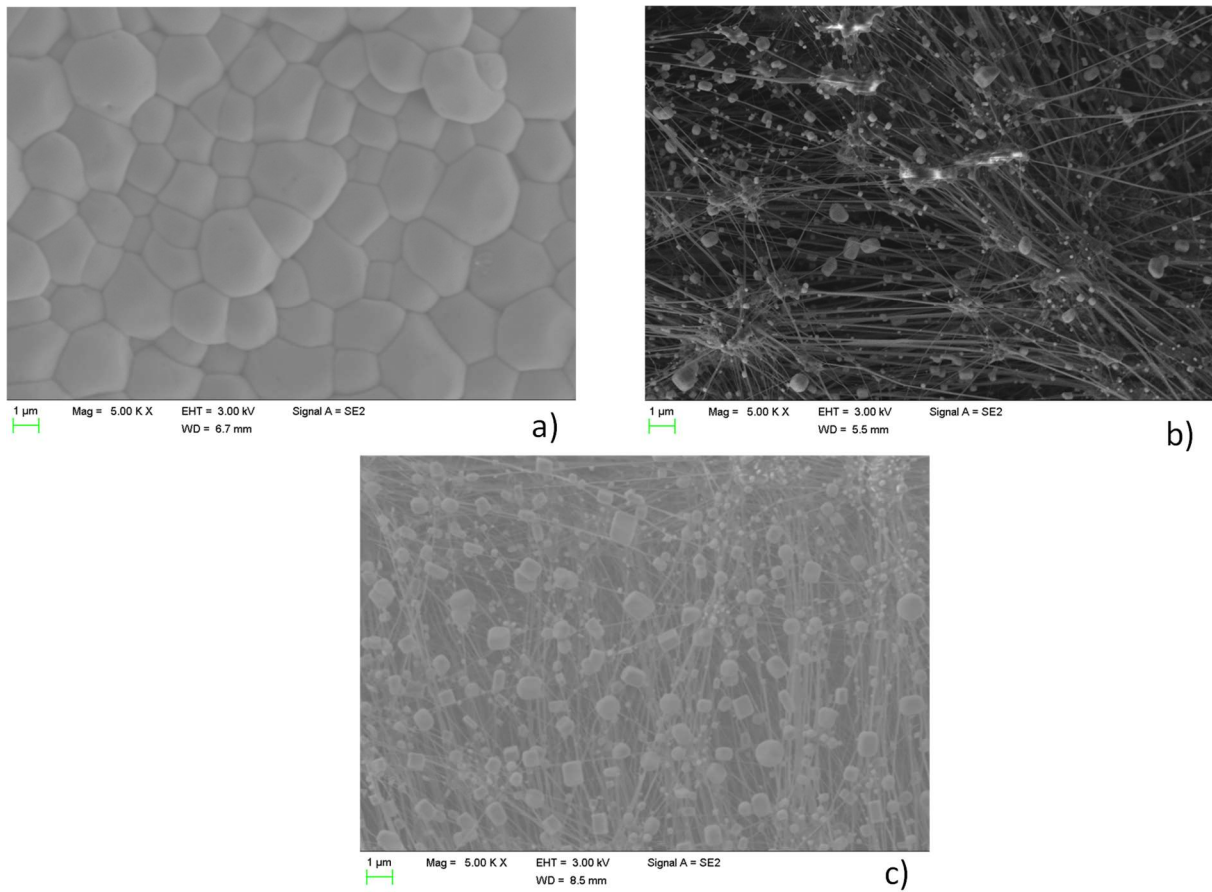


Figure 131 : Images MEB de KCl de diamètre 62 nm pour différents gaz porteur : a) Argon à faible vitesse ; b) Argon à forte vitesse ; c) Hélium à faible vitesse



## LISTE DES FIGURES

|  |    |
|--|----|
| Figure 1 : Schéma de la stratégie bibliographique .....  | 3  |
| Figure 2 : Filtre plissé avec un média THE industriel .....  | 5  |
| Figure 3 : Schéma des caractéristiques d'un pli du filtre .....  | 5  |
| Figure 4 : Évolution de la perte de charge au cours du colmatage (Del Fabbro 2001) .....   | 7  |
| Figure 5 : Évolution du nombre de Knudsen (Kn) selon le diamètre de particule $d_p$ .....  | 9  |
| Figure 6 : Évolution du nombre de Stokes $Stk$ selon le diamètre de particule $d_p$ .....  | 10 |
| Figure 7 : Évolution du coefficient de Cunningham $C_u$ selon le diamètre de la particule $d_p$ .....  | 11 |
| Figure 8 : Évolution du nombre de Péclet $Pe$ selon le diamètre de particule $d_p$ .....   | 12 |
| Figure 9 : Catégorisation des nanoparticules d'après Maynard et Aitken (2007). .....   | 13 |
| Figure 10 : Illustrations de la définition des agglomérats (alumine $Al_2O_3$ ) et agrégats (silice $SiO_2$ ) de particules en image de Microscopie Électronique en Transmission (MET) ..... | 15 |
| Figure 11 : Représentation d'agrégats à différentes valeurs de dimension fractale $D_f$ .....  | 17 |
| Figure 12 : Description du diamètre de collision basé sur un modèle de sphères équivalentes (Zurita et al. 2002).....  | 18 |
| Figure 13 : Évolution du rayon hydrodynamique en fonction du nombre de particules primaires (Mackowski 2006) .....   | 19 |
| Figure 14 : Influence du nombre de particules primaires sur la force de traînée (simulation ASD)...  | 20 |
| Figure 15 : Évolution du facteur de correction $F_c$ en fonction du coefficient de recouvrement $Co$ ..  | 26 |
| Figure 16 : Évolution de la perte de charge en fonction de la porosité du dépôt $\epsilon$ .....   | 27 |
| Figure 17 : Schéma représentatif du pli (Alilou 2018) .....  | 28 |
| Figure 18 : Comparaison entre la corrélation empirique et les données expérimentales de colmatage pour des particules produites lors d'un essai d'incendie (Ouf et Mocho 2014) .....         | 29 |
| Figure 19 : Trois configurations du dépôt de particules dans un filtre THE selon la vitesse de filtration (Del Fabbro 2001) .....  | 30 |
| Figure 20 : Image à l'entrée du pli lors d'un colmatage à une vitesse de filtration de 0,25 cm/s (Bourrous 2014).....  | 31 |
| Figure 21 : Variation de la compacité en fonction de l'épaisseur du dépôt pour différentes conditions (Elmoe <i>et al.</i> 2009) .....   | 32 |
| Figure 22 : Structure du dépôt formé pour un nombre de Péclet faible (Elmo <i>et al.</i> 2009) .....   | 32 |

|   |    |
|---|----|
| Figure 23 : Structure du dépôt formé par filtration composé de nanoparticules de 50 nm (Elmo <i>et al.</i> 2009).....   | 33 |
| Figure 24 : Croissance d'un dépôt de suie pour un Péclet de 0,1 à gauche contre un Péclet de 100 à droite pour une même masse de gâteau déposée (Rodriguez-Pérez <i>et al.</i> 2004).....   | 33 |
| Figure 25 : Évolution de la porosité selon le diamètre des particules en comparant le modèle et la littérature (Kasper <i>et al.</i> 2010) .....  | 36 |
| Figure 26 : Compacité de la région II en fonction de $\log(Kn_D)$ et $\log(\chi^F)$ ; Zone A = compacité proche du maximum théorique ; Zone B = nombre de Peclet dépendant de la compacité ; Zone C = $\chi^F$ dépendant de la compacité et Zone D = région haute pour $Kn_D$ et region basse pour $\chi^F$ ..... | 38 |
| Figure 27 : évolution de la porosité pour des particules sphériques de différent diamètre en fonction du nombre de Péclet .....   | 39 |
| Figure 28 : Formation du dépôt à une vitesse de filtration de $2,34 \text{ cm.s}^{-1}$ dont la masse déposée est de $204 \text{ g.m}^{-2}$ (Alilou 2018) .....  | 39 |
| Figure 29 : Schéma d'un dépôt de particules monodispersées (Alilou 2018).....   | 40 |
| Figure 30 : Définition des couches élémentaires de colmatage dans le modèle d'Alilou.....   | 40 |
| Figure 31 : Évolution de la porosité du dépôt en fonction du nombre de Péclet (Thomas <i>et al.</i> (2014)).....  | 41 |
| Figure 32 : Évolution de la porosité d'un dépôt pour différents diamètres de particules primaires en fonction du nombre de Péclet (d'après Mädler <i>et al.</i> (2006)) .....   | 43 |
| Figure 33 : Évolution de la porosité d'un dépôt pour différentes dimensions fractales en fonction du nombre de Péclet (d'après Mädler <i>et al.</i> (2006)).....  | 43 |
| Figure 34 : Évolution de la porosité d'un dépôt pour différents nombres de particules primaires en fonction du nombre de Péclet (d'après Mädler <i>et al.</i> (2006)) .....   | 44 |
| Figure 35 : Schéma d'un dépôt d'agglomérats.....  | 44 |
| Figure 36 : Évolution de la porosité d'un dépôt selon le nombre de particules primaires .....   | 46 |
| Figure 37 : Comparaison de l'évolution de la porosité intra et inter-agglomérat selon le diamètre de giration .....   | 47 |
| Figure 38 : Zones d'étude de l'évolution de la porosité selon le nombre de Péclet .....   | 48 |
| Figure 39 : Principe de fonctionnement d'un atomiseur .....   | 51 |
| Figure 40 : Distributions granulométriques des différents aérosols générés avec le nébuliseur.....  | 52 |
| Figure 41 : Photographie du générateur PALAS GFG-1000 et schéma de la chambre de génération..   | 52 |
| Figure 42 : Photographie du générateur CAST et schéma de principe de génération .....   | 53 |

|  |    |
|--|----|
| Figure 43 : Schéma et vue isométrique de l'Argonaut montrant ses dimensions et ses composants. 1 : Tube de carburant, 2 : capuchon supérieur, 3 : entrée d'air concourante, 4 : disques poreux, 5 : tube à air concourant (tube de quartz), et 6 : sortie d'échappement par Kazemimanesh et al. (2019) ..... | 53 |
| Figure 44 : Schéma du principe de fonctionnement du disperseur de suie Tekna .....   | 54 |
| Figure 45 : Distributions granulométriques des aérosols générés par le GFG-1000.....   | 55 |
| Figure 46 : Distributions granulométriques des aérosols de suie générés par le CAST (rouge), l'ARGONAUT (noire) et le disperseur de suie (verte) .....   | 56 |
| Figure 47 : Schéma du principe de fonctionnement du CPMA .....   | 57 |
| Figure 48 : Évolution de la masse d'un agrégat de cuivre et carbone en fonction de son diamètre de mobilité électrique .....   | 58 |
| Figure 49 : Évolution de la masse volumique effective d'un agrégat de cuivre et de carbone en fonction de son diamètre de mobilité électrique .....  | 58 |
| Figure 50 : Schéma du banc expérimental .....  | 64 |
| Figure 51 : Modification du banc initial pour passer en configuration vitesse variable .....   | 65 |
| Figure 52 : Modification du banc expérimental initial pour passer en configuration basse pression..  | 65 |
| Figure 53 : Schéma de principe du dispositif MEGAPAN .....   | 66 |
| Figure 54 : Schéma de principe et photographie de la microbalance TEOM.....  | 67 |
| Figure 55 : Modélisation du prototype ULTRAPAN.....  | 68 |
| Figure 56 : Mesure de l'épaisseur par les 4 lasers du dispositif ULTRAPAN .....  | 68 |
| Figure 57: Évolutions respectives, en fonction de la masse surfacique déposée, de la perte de charge (gauche) et de l'épaisseur du dépôt (droite) d'un dépôt de particules sphériques de KCl ayant un diamètre de 62 nm mesurée par MEGAPAN .....  | 69 |
| Figure 58 : Schéma et photographie de principe de calibration des dispositifs de mesure de taux de croissance MEGAPAN / ULTRAPAN .....   | 69 |
| Figure 59 : Graphe de parité entre l'épaisseur mesurée par le dispositif MEGAPAN et l'épaisseur imposée par le comparateur .....   | 70 |
| Figure 60 : Schéma des cibles des lasers du dispositif ULTRAPAN .....  | 70 |
| Figure 61 : Schéma du banc expérimental pour figer un dépôt de particules sur filtre plan .....  | 71 |
| Figure 62 : Image MEB d'une vue large d'un dépôt de nanoparticules de KCl mis sous résine.....   | 71 |
| Figure 63 : Image MEB (gauche) et par microscopie optique (droite) pour la mesure d'épaisseur d'un dépôt de nanoparticules de KCl.....   | 72 |
| Figure 64 : Graphe de parité entre l'épaisseur MEGAPAN et l'épaisseur MEB.....   | 72 |

|   |    |
|---|----|
| Figure 65 : Schéma de l'homogénéité d'un dépôt de nanoparticules de carbone .....   | 73 |
| Figure 66 : Schéma simplifié du banc expérimental en condition plissé .....   | 74 |
| Figure 67 : Schéma expérimental du banc expérimental CATFISH.....   | 75 |
| Figure 68 : Schéma simplifié du banc expérimental RAFALES .....   | 76 |
| Figure 69 : Évolution, en fonction du nombre de Pécllet, de la porosité de dépôts de particules<br>sphériques formés sous différentes conditions .....  | 82 |
| Figure 70 : Influence du diamètre de particule sur la porosité de dépôt de nanoparticules de KCl ..   | 82 |
| Figure 71 : Évolution de la porosité selon le domaine d'étude .....   | 83 |
| Figure 72 : Influence de la masse volumique sur la porosité de dépôt de nanoparticules de même<br>diamètre géométrique .....  | 84 |
| Figure 73 : Image TEM de particules de CsCl (gauche) et de KCl (droite) .....   | 84 |
| Figure 74 : Influence de la polydispersion des particules sur la porosité du dépôt.....   | 85 |
| Figure 75 : Évolution de la pente de la porosité du dépôt dans la zone de transition .....  | 86 |
| Figure 76 : Évolution de la vitesse de filtration selon les trois approches.....  | 87 |
| Figure 77 : Influence d'une vitesse variable sur la porosité du dépôt.....  | 87 |
| Figure 78 : Influence de la pression .....  | 88 |
| Figure 79 : Évolution de la porosité pour des aérosols « transportés » avec différents gaz porteurs.  | 88 |
| Figure 80 : Diagramme de parité : porosité selon Lindquist en fonction de la porosité expérimentale<br>.....  | 89 |
| Figure 81 : Porosités expérimentales et calculées (eq. 94) en fonction du nombre de Stokes .....  | 91 |
| Figure 82 : Graphe de parité entre la porosité déduite de la corrélation proposée et la porosité<br>expérimentale .....   | 91 |
| Figure 83 : Graphe de parité entre la porosité déduite de la corrélation proposée et la porosité<br>expérimentale sans prendre en compte le latex et le KCl sous hélium .....                                       | 92 |
| Figure 84 : Comparaison de l'évolution de la porosité d'un dépôt de nanoparticules formées par<br>filtration entre des sphères et des agrégats .....  | 96 |
| Figure 85 : Valeurs de porosités expérimentales obtenues pour un dépôt de nanoparticules<br>d'agrégats en fonction du nombre de Pécllet (haut) et du nombre de Stokes (bas) .....                                   | 97 |
| Figure 86 : Évolution de la porosité pour un dépôt d'agrégat de carbone composé d'un nombre<br>différent de particules primaires en fonction du nombre de Pécllet (gauche) et du<br>nombre de Stokes (droite) ..... | 98 |

|   |     |
|---|-----|
| Figure 87 : Évolution de la porosité pour un dépôt d'agrégat d'aluminium composé d'un nombre différent de particules primaires en fonction du nombre de Péclet (gauche) et du nombre de Stokes (droite) ..... | 99  |
| Figure 88 : Évolution de la porosité pour un dépôt d'agrégat de cuivre composé d'un nombre différent de particules primaires en fonction du nombre de Péclet (gauche) et du nombre de Stokes (droite) .....   | 99  |
| Figure 89 : Évolution de la porosité pour un dépôt d'agrégat de titane composé d'un nombre différent de particules primaires en fonction du nombre de Péclet (gauche) et du nombre de Stokes (droite) .....   | 100 |
| Figure 90 : Évolution de la porosité minimale par famille selon le nombre de particules primaires   | 100 |
| Figure 91 : Évolution de la porosité maximale par famille selon le nombre de particules primaires   | 101 |
| Figure 92 : Évolution de la porosité pour un dépôt d'agrégat composé de différents diamètres de particules primaires en fonction du nombre de Péclet (gauche) et du nombre de Stokes (droite) .....           | 102 |
| Figure 93 : Évolution de la porosité pour des dépôts de nanoparticules de dimension fractale différente en fonction du nombre de Péclet (gauche) et du nombre de Stokes (droite) .....                        | 103 |
| Figure 94 : Porosités expérimentales et calculées d'un dépôt de nanoparticules sous forme d'agrégats en fonction du nombre de Stokes .....  | 103 |
| Figure 95 : Graphe de parité entre la porosité déduite de la corrélation proposée et la porosité expérimentale .....  | 104 |
| Figure 96 : Évolution de la porosité intra-agrégat théorique selon le nombre de Stokes déterminée par le diamètre de mobilité électrique .....  | 105 |
| Figure 97 : Schéma des diamètres caractéristiques d'un agrégat.....   | 106 |
| Figure 98 : Graphe de parité entre la porosité intra-agrégat calculé par la longueur maximale projetée et la porosité intra théorique .....   | 107 |
| Figure 99 : Graphe de parité entre la porosité intra-agrégat calculé par le diamètre de giration et la porosité intra théorique.....  | 108 |
| Figure 100 : Graphe de parité entre la porosité intra-agrégat calculé par le rapport de diamètres caractéristiques et la porosité intra théorique .....   | 110 |
| Figure 101 : Graphe de parité entre la porosité totale calculé et la porosité expérimentale .....   | 110 |
| Figure 102 : Schéma de l'orientation d'un agrégat selon son domaine d'étude .....   | 111 |
| Figure 103 : Évolution de la perte de charge en fonction du temps pour un filtre plissé et plan ...   | 112 |
| Figure 104 : Schéma des différentes porosités présentes lors d'un dépôt de particules nanostructurées dans le pli d'un filtre .....   | 112 |

|  |     |
|--|-----|
| Figure 105 : Évolution de la porosité macroscopique en fonction de la masse déposée pour différentes vitesses de filtration.....   | 113 |
| Figure 106 : « Guide pour les yeux » sur l'évolution de la porosité macroscopique pour 2 types de filtres plissés à différentes vitesses de filtration.....                  | 114 |
| Figure 107 : Schéma du principe d'accumulation.....  | 118 |
| Figure 108 : Schéma global du principe de déposition.....  | 118 |
| Figure 109 : Zone de présence d'une particule dans un plan pour différents coefficients de diffusion, $d_{diff}$ représente le diamètre de la surface probable de dépôt..... | 119 |
| Figure 110 : Schéma de la vitesse de diffusion pour différentes tailles de particules .....  | 120 |
| Figure 111 : Probabilité de présence d'une particule au-dessus du dépôt.....   | 122 |
| Figure 112 : Probabilité de présence en vue de dessus entre deux centres de particules .....   | 122 |
| Figure 113 : Principe du modèle multicouche .....  | 123 |
| Figure 114 : Schéma de la distance en prenant en compte la courbure de la particule.....   | 124 |
| Figure 115 : Valeurs de porosités issues du modèle comparé aux résultats expérimentaux pour le cas de particules pseudo-sphériques.....                                      | 125 |
| Figure 116 : Influence du diamètre de particule dans le modèle analytique proposé (multicouche à gauche et multicouche avec angle à droite) .....                            | 126 |
| Figure 117 : Influence de la température dans le modèle analytique proposé (multicouche à gauche et multicouche avec angle à droite) .....                                   | 127 |
| Figure 118 : Influence de la pression dans le modèle analytique proposé (multicouche à gauche et multicouche avec angle à droite).....                                       | 128 |
| Figure 119 : Influence du libre parcours moyen dans le modèle analytique proposé (multicouche à gauche et multicouche avec angle à droite) .....                             | 128 |
| Figure 120 : Influence de la viscosité dynamique dans le modèle analytique proposé (multicouche à gauche et multicouche avec angle à droite) .....                           | 129 |
| Figure 121 : Influence de la masse volumique dans le modèle analytique proposé (multicouche à gauche et multicouche avec angle à droite) .....                               | 129 |
| Figure 122 : Schéma de principe d'un SMPS par Witschger et al. (2005) .....  | 137 |
| Figure 123 : Schéma de principe d'un CPC d'après Bau et al. (2017) .....   | 138 |
| Figure 124 : Vue de dessus du dispositif ULTRAPAN.....   | 141 |
| Figure 125 : Vue éclatée de côté du dispositif ULTRAPAN .....  | 141 |
| Figure 126 : Écart les valeurs théoriques d'épaisseurs et les valeurs mesurées par le dispositif MEGAPAN .....   | 144 |

|   |     |
|---|-----|
| Figure 127 : Distribution de la déviation entre l'épaisseur théorique et les valeurs mesurés par le dispositif MEGAPAN .....  | 144 |
| Figure 128 : Images MEB des dépôts de suie avec en a) issu du disperseur à faible vitesse ; b) issu du disperseur à grande vitesse ; c) issu du CAST à faible vitesse ; d) issu de l'Argonaut à faible vitesse et e) issu de l'Argonaut à forte vitesse ..... | 146 |
| Figure 129 : Images MEB des dépôts issus du GFG-1000 avec a) électrodes en titane à faible vitesse; b) électrodes en cuivre à forte vitesse ; c) électrodes en aluminium à forte vitesse .  | 147 |
| Figure 130 : Images MEB d'un dépôt de particules sphériques monodispersées de diamètre de 64nm à faible (à gauche) et forte vitesse (à droite) .....  | 147 |
| Figure 131 : Images MEB de KCl de diamètre 62 nm pour différents gaz porteur : a) Argon à faible vitesse ; b) Argon à forte vitesse ; c) Hélium à faible vitesse .....  | 148 |

## LISTE DES TABLEAUX

|   |    |
|---|----|
| Tableau 1 : Classification des filtres à air selon la norme ISO 16890 (2016) .....  | 4  |
| Tableau 2 : Classification des filtres à air selon la norme EN 1822 (2009).....   | 4  |
| Tableau 3 : Valeurs expérimentales de la masse volumique de différentes suies d'après Ouf et al. (2019) avec * densités prises en compte pour les suies, ** densités prises en compte pour les échantillons à CO élevé, <sup>1</sup> PMMA et PVC se réfèrent au solvant de traitement des déchets nucléaires composé de phosphates de tributyle et de liquides d'hydrogène tétrapropylène, <sup>†</sup> Suie contenant une teneur importante en H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> et <sup>††</sup> Suie contenant une teneur importante en métal ..... | 22 |
| Tableau 4 : Récapitulatif des modèles de perte de charge pour de la filtration en surface .....   | 27 |
| Tableau 5 : Paramètres pertinents dans l'étude de l'évolution de la porosité d'un dépôt de nanoparticules.....  | 31 |
| Tableau 6 : Valeurs de porosité avec les caractéristiques morphologique des particules correspondantes issues de la littérature (nd : non disponible).....  | 36 |
| Tableau 7 : Corrélations de la porosité selon Lindquist et al. (2014) .....   | 38 |
| Tableau 8 : Données des porosités mesurées selon les caractéristiques de l'agrégat issues de la littérature provenant d'aérosol de carbone, de diesel ou de suie (nd : non disponible) .....  | 42 |
| Tableau 9 : Conditions expérimentales et caractéristiques des aérosols générés .....  | 51 |
| Tableau 10 : Condition et caractéristiques des agrégats générés par le GFG-1000 .....   | 55 |
| Tableau 11 : Condition et caractéristiques des agrégats générés par le CAST .....   | 56 |
| Tableau 12 : Condition et caractéristiques des agrégats générés par l'Argonaut .....  | 56 |
| Tableau 13 : Condition et caractéristiques des agrégats générés par le disperseur de suie .....   | 56 |

|  |     |
|--|-----|
| Tableau 14 : Valeurs expérimentales de la densité effective obtenues par le CPMA (nd : non disponible) .....                             | 59  |
| Tableau 15 : Caractéristiques morphologique des agrégats étudiés issues des données CPMA (nd : non disponible) .....                     | 60  |
| Tableau 16 : Valeurs expérimentales de la dimension fractale des aérosols étudiés par inversion du modèle de Yon et al. (2015).....      | 61  |
| Tableau 17 : Caractéristiques morphologiques des agrégats étudiés issues des données MET .....   | 63  |
| Tableau 18 : Valeurs de l'épaisseur du dépôt et de la porosité déduite .....   | 73  |
| Tableau 19 : Caractéristiques des gaz porteurs utilisés .....  | 73  |
| Tableau 20 : Grandeurs caractéristiques des filtres plissés testés.....  | 76  |
| Tableau 21 : Récapitulatif des conditions opératoires pour chaque banc utilisé .....   | 77  |
| Tableau 22 : Récapitulatif des caractéristiques des aérosols pseudo-sphériques générés .....   | 77  |
| Tableau 23 : Récapitulatif des caractéristiques des aérosols nanostructurés générés.....   | 78  |
| Tableau 24 : Résultats expérimentaux dans les cas « extrêmes » .....   | 81  |
| Tableau 25 : Valeurs limites des porosités dans les zones diffusionnelle et balistique .....   | 83  |
| Tableau 26 : Valeurs des pentes mesurées de la porosité du dépôt dans la zone de transition .....  | 85  |
| Tableau 27 : Impact des paramètres étudiés sur la porosité d'un dépôt de nanoparticules sphériques en fonction du nombre de Péclet ..... | 93  |
| Tableau 28 : Impact des paramètres étudiés sur la porosité d'un dépôt de nanoparticules sphériques en fonction du nombre de Stokes.....  | 94  |
| Tableau 29 : Résultats expérimentaux dans les cas « extrêmes » .....   | 95  |
| Tableau 30 : Valeurs de porosité intra-agrégat calculées par la méthode de la longueur maximale projetée .....                           | 107 |
| Tableau 31 : Valeurs de porosité intra-agrégat calculées par la méthode du diamètre de giration  | 108 |
| Tableau 32 : Valeurs de porosité intra-agrégat calculées par la méthode du rapport de diamètre   | 109 |
| Tableau 33 : Bilan de l'impact des paramètres morphologiques sur l'évolution de la porosité des dépôts selon le nombre de Stokes .....   | 115 |
| Tableau 34 : Corrélations semi-empirique de la porosité .....  | 116 |
| Tableau 35 : Bilan de l'impact des paramètres influant l'évolution de la porosité des dépôts selon le nombre de Stokes .....             | 131 |
| Tableau 36 : Débit massique de poudre en sortie de l'alimenteur .....  | 139 |



|   |     |
|---|-----|
| Tableau 37 : Incertitude sur le diamètre de mobilité électrique ..... | 142 |
|---|-----|

## Étude des mécanismes de formation des dépôts de particules appliquée à la filtration THE

Mots clés : nanoparticules, particules nanostructurées, suie, filtration, perte de charge, porosité

La filtration de l'air par des médias fibreux à très haute efficacité (THE) constitue un élément important pour la sécurité des installations sensibles. Pourtant, les filtres présentent un inconvénient majeur lié à l'augmentation de leur résistance aéraulique au cours de leur colmatage ce qui peut conduire *in fine* au déséquilibre du réseau de ventilation, voire dans des cas extrêmes à la rupture du filtre et par conséquent à une perte de confinement. Dans certaines situations accidentelles, telles qu'un incendie, les filtres peuvent être soumis à un apport important de particules ou à des particules très colmatantes, occasionnant une élévation rapide de leur perte de charge. Dans les modèles de perte de charge existants utilisés pour l'évaluation des risques, la porosité est une donnée d'entrée clef. De nombreux auteurs, via des simulations, ont proposé des valeurs de porosité pour des dépôts de nanoparticules formés par filtration et ont montré, pour un aérosol donné, une dépendance de la porosité en fonction du nombre de Péclet (rapport des mécanismes de transport par convection et diffusion). Une méthodologie expérimentale spécifique a été développée afin d'étudier notamment l'influence, sur la prosoité des dépôts, de la taille et la morphologie des particules, des caractéristiques physico-chimiques des particules et du gaz vecteur (nature, masse volumique, viscosité) et des conditions opératoires (vitesse de filtration, pression). Pour cette étude, un banc expérimental ainsi qu'un dispositif de mesure laser spécifiques ont été développés. Ce dernier mesure l'évolution de l'épaisseur du dépôt couplée à sa masse déposée au cours du temps afin de déterminer sa porosité. Les études sur les dépôts de nanoparticules sphériques et formées par des agrégats ont permis de définir le nombre de Stokes (rapport entre l'énergie cinétique de la particule et l'énergie dissipée par frottement avec le fluide) comme le paramètre le plus pertinent pour rendre compte de l'évolution de la porosité du dépôt. Cette étude a débouché sur différentes corrélations permettant l'estimation de la porosité d'un dépôt de nanoparticules pseudo-sphériques ou de particules nanostructurées.

### Study of the mechanisms about formation of particles depositions applied to HEPA filtration

Keywords: nanoparticles, nanostructured particles, soot, filtration, pressure drop, porosity

The filtration of air by fibrous media with high efficiency particulate air (HEPA) is a key point for the safety of sensitive installations. However, filters have a major drawback linked to the increase in their aeraulic resistance during their clogging, which can lead to unbalance the ventilation networks, or even in extreme cases to the rupture of filters and therefore to a loss of containment. In case of fire the filters may be subjected to a large supply of particles or to very clogging particles, causing a rapid increase in their pressure drop. In current pressure drop models used for risk assessment, porosity is a key parameter. Many authors, via simulations, have proposed porosity values for deposits of nanoparticles formed by filtration and have shown, for a given aerosol, a dependence of the porosity as a function of the Peclet number (ratio of the transport mechanisms by convection and diffusion). A specific experimental methodology has been developed in order to study the influence of the porosity of the deposits of the size and morphology of the particles, the physico-chemical characteristics of the particles and the carrier gas (nature, density, viscosity) and operating conditions (filtration rate, pressure). For this study, an experimental bench and a laser measurement device have been developed. This device measures the change in the thickness of the deposit coupled with its deposited mass over time in order to determine the porosity of the deposit. Studies on the deposits of spherical nanoparticles and formed by aggregates have made it possible to define the Stokes number (ratio between the kinetic energy of the particle and the energy dissipated by friction with the fluid) as the most relevant parameter to account for the evolution of the porosity of the deposit. This study led to various correlations allowing the estimation of the porosity of a deposit of pseudo-spherical nanoparticles or nanostructured particles.