
THESE

Présentée

A LA FACULTE DES SCIENCES ET TECHNIQUES DE L'UNIVERSITE DE ROUEN

En vue de l'obtention du titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE ROUEN

Discipline : Physique

Spécialité : Energétique

Par

François-Xavier OUF

CARACTERISATION DES AEROSOLS EMIS LORS D'UN INCENDIE

Soutenu le 17.01.2006

Devant le jury composé de :

Mme. Pascale DESGROUX, Directeur de recherche CNRS, Lille, *rapporteur*

M. Alfred WEBER, Professeur à l'université de Clausthal, *rapporteur*

M. Alexis COPPALLE, Professeur à l'INSA de Rouen

M. Laurent AUDOUIN, Ingénieur-Chercheur à l'IRSN

M. Frantz GOURIOU, Ingénieur de recherche au CERTAM

M. Jacques VENDEL, Chef de laboratoire à l'IRSN

M. Marc Emmanuel WEILL, Professeur à l'université de Rouen

à Marjolaine

à ma mère et mon père

à la mémoire de mes grands-mères

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au sein de l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN) et plus particulièrement au sein de la Direction de la Sécurité des Usines, des laboratoires, des transports et des déchets (DSU), dans le Service d'Etude et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en Confinement (SERAC). Je tiens, à ce titre, à remercier sincèrement Messieurs Denis BOULAUD et Jean-Claude LABORDE, chefs successifs du SERAC, pour m'avoir accueillis et permis de mener à bien ce travail.

Je tiens aussi à remercier :

Mme Pascale DESGROUX, Directeur de recherche CNRS, Lille
M. Alfred WEBER, Professeur à l'université de Clausthal
M. Alexis COPPALLE, Professeur à l'INSA de Rouen
M. Laurent AUDOUIN, Ingénieur-Chercheur à l'IRSN
M. Frantz GOURIOU, Ingénieur de recherche au CERTAM
M. Jacques VENDEL, Chef de laboratoire à l'IRSN
M. Marc Emmanuel WEILL, Professeur à l'université de Rouen

qui m'ont fait l'honneur de juger ce travail. Je tiens particulièrement à remercier Madame Pascale DESGROUX et Monsieur Alfred WEBER qui ont accepté d'être les rapporteurs de ce travail.

Je tiens à remercier Monsieur Jacques VENDEL de m'avoir accueilli dans le Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols (LPMA). Je le remercie tout particulièrement puisqu'il a de plus assuré l'encadrement scientifique et technique de ce travail de thèse avec toute la patience et la confiance nécessaire à mon épanouissement scientifique et humain.

J'adresse mes sincères remerciements à mes deux directeurs de thèse, Messieurs Alexis COPPALLE et Marc-Emmanuel WEILL qui ont toujours été disponibles et attentifs aussi bien dans les moments heureux que dans les heures de doutes qui accompagnent les trois années d'une thèse. Je garderai en mémoire votre disponibilité, votre optimisme, votre passion communicative et vos qualités scientifiques et humaines qui m'ont toujours porté vers l'avant.

De même, je remercie très chaleureusement François GENSDARMES, Ingénieur-chercheur au LPMA, ainsi que Jérôme YON, maître de conférence à l'INSA de Rouen, pour leur aide précieuse sur le plan technique, scientifique et humain. Merci à toi François pour tes nombreux conseils sur la métrologie et la physique des aérosols ainsi que pour ta bonne humeur et ta passion communicative. Merci aussi à toi Jérôme pour ton aide tout aussi précieuse sur la mise en œuvre du dispositif EXSCA et pour nos nombreuses discussions téléphoniques sur l'analyse de nos résultats et sur l'avancement de mon travail. J'espère avoir de nombreuses fois encore l'occasion de discuter et travailler avec vous deux sur les nombreux domaines qu'il reste à couvrir dans la caractérisation des agrégats de suie.

Que Mademoiselle Charlène COURSIL, Terkia AFTIS, Mesdames Catherine DRUGEAU, Geneviève GOMES, et Messieurs Victor MOCHO, Sébastien DILLENSCHNEIDER, Dominique LUCIUS, Roger SESTIER-CARLIN et Michel MAILLE trouvent ici l'expression de mes plus vifs remerciements pour leurs aides scientifiques, techniques et administratives qui ont permis l'aboutissement de ce travail.

J'adresse un grand MERCI à mes amis et collègues Stéphane LOUARN, Matthieu FERAILLE, Sylvain CALAIS, Pascal LEMAITRE, Pierre-Yves MESLIN, Guillaume BASSO, Florence DESCHAMPS et François GENSDARMES pour l'amitié dont ils ont et font encore preuve même après ces trois années de thèse.

Espérant n'oublier personne, je remercie les membres du SERAC et du CORIA qui ont rendu ces années aussi agréables que l'on peut l'espérer.

Je souhaite dédier ces trois dernières années à ma famille et plus particulièrement à mes parents, ma sœur, son mari et leur fils, aux parents de mon amie ainsi que mes deux grands-mères qui veillent sur moi et auraient été fières de moi. Merci à vous tous pour votre soutien de chaque jour et le courage que vous m'avez conféré.

Enfin merci à celle qui a toujours été à mes côtés dans les moments heureux et difficiles de ces trois dernières années. Merci à toi Marjolaine...

TABLE DES MATIÈRES

THESE	1
LISTE DES FIGURES	10
LISTE DES TABLEAUX	15
INTRODUCTION	17
1 ETAT DE L'ART DES CONNAISSANCES SUR LES PARTICULES EMISES LORS DES INCENDIES	20
1.1 FORMATION ET EVOLUTION DES PARTICULES DANS LA FLAMME.....	20
1.1.1 La nucléation.....	20
1.1.2 La croissance de surface	20
1.1.3 La coagulation et l'agglomération.....	21
1.1.4 L'oxydation.....	21
1.2 NATURE ET STRUCTURE INTERNE DES AGREGATS	22
1.3 MORPHOLOGIE ET GRANULOMETRIE DES PARTICULES DE SUIE	23
1.3.1 Présentation générale des particules de suie.....	23
1.3.2 Morphologie des agrégats	24
1.3.3 Granulométrie et diamètres équivalents des agrégats	27
1.3.3.1 Distribution granulométrique des agrégats de suie	27
1.3.3.2 Informations couramment utilisées pour caractériser un aérosol	29
1.3.3.3 Diamètre de mobilité électrique équivalent	32
1.3.3.4 Diamètre aérodynamique équivalent.....	32
1.3.3.5 Synthèse des diamètres utilisés pour caractériser un agrégat de suie.....	33
2 DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL	34
2.1 INTRODUCTION	34
2.2 LA VEINE AERAULIQUE	34
2.3 LES FLAMMES ETUDIEES.....	36
2.3.1 Rappet sur les flammes de diffusion dans les incendies.....	36
2.3.2 Combustibles et brûleurs étudiés.....	37
2.3.2.1 Le brûleur gaz de référence	37
2.3.2.2 Les combustibles et les brûleurs utilisés pour générer un feu de liquide ou de solide.....	37
2.3.2.3 Calcul de la richesse globale du milieu étudié et caractéristiques des flammes des différents combustibles.....	38
2.4 PRELEVEMENT ET DILUTION DE L'AEROSOL	40
2.4.1 Difficultés posées lors du prélèvement des suies	40
2.4.2 Principe du système de dilution DEKATI FPS 4000	41
2.4.3 Validation du système de dilution	42
2.5 ANALYSE PONDERALE DE L'AEROSOL DE COMBUSTION	44
2.5.1 Intérêt de l'analyse pondérale des particules de suie.....	44

2.5.2	Analyse pondérale en temps réel : le TEOM	44
2.5.3	Pesée sur filtre	46
2.5.4	Etude comparative des données du TEOM et des filtres	47
2.6	DISPOSITIFS GRANULOMETRIQUES	47
2.6.1	Granulomètre à mobilité électrique : le SMPS.....	47
2.6.1.1	La notion de mobilité électrique.....	48
2.6.1.2	Le classificateur et la sélection des particules	49
2.6.1.3	Le compteur à noyaux de condensation	50
2.6.1.4	L'impacteur d'entrée du SMPS	51
2.6.2	Le granulomètre aérodynamique ELPI	52
2.7	ANALYSE DES AGREGATS PAR MICROSCOPIE ELECTRONIQUE	54
2.7.1	Etat de l'art des dispositifs de prélèvement.....	54
2.7.2	Dispositif de prélèvement utilisé dans cette étude.....	55
2.7.3	Traitement des clichés de microscopie électronique.....	55
2.7.3.1	Détermination de R_{pp} , N_p et R_g	56
2.7.3.2	Détermination de D_f et k_f	57
2.7.3.3	Incertitude sur la détermination de D_f et k_f	58
3	TRAITEMENT DES DONNEES ET RESULTATS EXPERIMENTAUX	59
3.1	INTRODUCTION	59
3.2	ANALYSE EN SERIE DMA-ELPI.....	59
3.2.1	Rappel des notions de base	59
3.2.1.1	Relations théoriques entre le diamètre de mobilité électrique et le diamètre aérodynamique de particules de morphologie fractale	59
3.2.1.2	Détermination de la masse volumique effective par analyse en série DMA-ELPI, application à la détermination de la relation fractale.....	62
3.2.2	Validation expérimentale du protocole de détermination de la masse volumique effective	64
3.2.3	Application de la méthode à des agrégats de suie.....	66
3.2.3.1	Dispositif expérimental et paramètres utilisés pour l'analyse des données	66
3.2.3.2	Comparaison expérimentale du diamètre aérodynamique et du diamètre de mobilité électrique pour des agrégats de suie.....	67
3.2.3.3	Détermination de la dimension fractale à partir de l'approche de Van Gulijk	67
3.2.3.4	Détermination de la masse volumique effective et de la dimension fractale	69
3.2.4	Discussion des résultats expérimentaux	70
3.2.4.1	Détermination expérimentale de la fonction d'évolution du rapport β	71
3.2.4.2	Détermination de la dimension fractale pour des agrégats présentant un rapport β constant ...	73
3.2.5	Conclusions sur l'analyse en série DMA-ELPI	74
3.3	DISCUSSION SUR LE TRAITEMENT DES DONNEES DU SMPS	75
3.3.1	Le phénomène de charges multiples dans le SMPS.....	75
3.3.2	La méthode actuelle pour corriger les données SMPS	76

3.3.3 Influence du diamètre de coupure sur l'inversion	78
3.3.3.1 Production et conversion d'une distribution granulométrique	79
3.3.3.2 Traitement des données et correction de charges multiples	79
3.3.3.3 Influence du diamètre de coupure sur le traitement des données	80
3.3.3.4 Traitement des données à partir de la distribution non-corrigée	81
3.3.4 La méthode proposée pour traiter les données SMPS	83
3.4 TRAITEMENT DES DONNEES DE L'ELPI	84
3.4.1 Détermination de la distribution en nombre de particules	84
3.4.2 Discussions sur la méthode de traitement des données	87
3.4.3 Exemple de traitement de données ELPI à partir de la relation entre le diamètre aérodynamique et le diamètre de mobilité électrique	89
3.5 CONSEQUENCES DES CORRECTIONS APORTEES SUR LES INFORMATIONS GRANULOMETRIQUES DU ELPI ET DU SMPS	91
3.5.1 Comparaison des distributions granulométriques ELPI et SMPS	91
3.5.2 Comparaison de la concentration massique et numérique apportées par l'ELPI, le SMPS et le TEOM	92
3.5.3 Détermination en parallèle de la dimension fractale des particules de suie	93
3.6 CONCLUSIONS SUR LE TRAITEMENT DES DONNEES	95
4 PRESENTATION ET DISCUSSION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX	96
4.1 INTRODUCTION	96
4.2 EVOLUTION DES DEBITS DE COMBUSTIBLE ET DE LA TEMPERATURE DES FUMES EN FONCTION DE LA VENTILATION	96
4.3 ETUDE DE L'EMISSION DE SUIES DES DIFFERENTS COMBUSTIBLES	97
4.3.1 Définition de la fraction volumique et du facteur d'émission des suies	97
4.3.2 Influence de la richesse sur la concentration massique, la fraction volumique et le facteur d'émission des suies	98
4.3.3 Relations avec les émissions de gaz polluants	100
4.3.4 Influence de la puissance de la flamme sur l'émission de suie	101
4.4 EVOLUTION DES CARACTERISTIQUES GRANULOMETRIQUES ET MORPHOLOGIQUES	102
4.4.1 Evolution de la granulometrie dans la ligne de ventilation	102
4.4.2 Influence de la richesse sur la morphologie	104
4.4.3 Influence de la richesse sur la distribution des diamètres des agrégats	106
4.4.4 Causes possibles de grossissement des agrégats de suie en fonction de la richesse globale dans le foyer	111
4.4.4.1 Effet de la taille des particules primaires	111
4.4.4.2 Effet de la coagulation	112
4.4.5 Relation entre le facteur d'émission et le diamètre médian des agregats, et entre le facteur d'émission et le diamètre des particules primaires	116
4.5 UTILISATION DES DONNEES GRANULOMETRIQUES ET MORPHOLOGIQUES POUR LE CALCUL DE L'EVOLUTION DU FACTEUR D'EMISSION EN FONCTION DE LA RICHESSE GLOBALE	117

4.6 CONCLUSIONS DE L'ANALYSE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX.....	119
5 PROPRIETES OPTIQUES DES PARTICULES DE SUIE : MODELES DE CALCUL ET DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX	121
5.1 OBJECTIFS DE L'ETUDE	121
5.2 DIFFUSION DE LA LUMIERE PAR DES PARTICULES DE SUIE	121
5.2.1 Interactions onde - particule	121
5.2.1.1 Expression du champ incident et diffusé	121
5.2.1.2 Extinction, diffusion, absorption, albédo.....	122
5.2.2 Modèles de calcul de la diffusion de la lumière	123
5.2.2.1 Cas des sphères : Théorie de Mie et approximation de Rayleigh	123
5.2.2.2 La théorie de Rayleigh-Debye-Gans (RDG).....	126
5.2.2.3 La RDG-FA (Rayleigh-Debye-Gans-for-Fractal-Agregates).....	127
5.3 L'INDICE OPTIQUE DES PARTICULES DE SUIE	128
5.4 PRINCIPE DE DETERMINATION DE L'INDICE OPTIQUE.....	130
5.4.1 Mesures des coefficients d'extinction K_{ext} et de diffusion K_{vv}	130
5.4.1.1 Le dispositif expérimental	130
5.4.1.2 Protocole de mesure des coefficients d'extinction et de diffusion.....	132
5.4.1.3 Détermination du coefficient d'extinction	133
5.4.1.4 Détermination du coefficient de diffusion vertical-vertical	134
5.5 ETALONNAGE DU BANC EXSCA SUR DES BILLES DE LATEX.....	134
5.5.1 Protocole d'étalonnage	134
5.5.2 Résultats de l'étude de validation.....	135
5.6 INVERSION DES DONNEES.....	136
5.6.1 Principe de la méthode d'inversion	136
5.6.2 Relation entre diamètre de mobilité et diamètre de giration : détermination expérimentale du rapport β	138
5.6.2.1 "Lissage" des distributions granulométriques SMPS.....	138
5.6.2.2 Détermination expérimentale du rapport β	139
5.6.2.3 Sensibilité du paramètre β à la limite supérieure de la distribution SMPS	141
6 DETERMINATION EXPERIMENTALE DES PROPRIETES OPTIQUES DES AGREGATS DE SUIE.....	142
6.1 DETERMINATION DES PROPRIETES D'EXTINCTION ET DE DIFFUSION DES AGREGATS DE SUIE ..	142
6.1.1 Coefficients d'extinction et de diffusion massique	142
6.1.2 Evolution des coefficients spécifiques en fonction de la longueur d'onde : comparaison avec les données de la littérature	143
6.2 DETERMINATION DE L'INDICE OPTIQUE DES PARTICULES DE SUIE.....	144
6.2.1 Données utilisées pour la morphologie des suies.....	144
6.2.2 Résultats de l'étude expérimentale.....	144
6.2.3 Discussion des résultats expérimentaux d'indice optique	146
6.2.3.1 Influence du débit de ventilation	146

6.2.3.2 Comparaison des valeurs d'indice optique pour les différents combustibles	147
6.2.3.3 Comparaison avec les données de la littérature.....	148
6.2.3.4 Détermination des fonctions E(m) et F(m) de l'indice pour les différents combustibles et pour les deux longueurs d'onde 632 nm et 1064 nm	149
6.2.4 Etude de sensibilité	150
6.2.4.1 Sensibilité de l'indice aux paramètres D_f , k_f , β , D_p , K_e , K_{vv}	150
6.2.4.2 Sensibilité de l'indice au rapport β et à son évolution	152
6.2.5 Calcul de la fraction volumique de suie	153
6.2.5.1 Fraction volumique "massique"	153
6.2.5.2 Fraction volumique "optique"	154
6.2.5.3 Détermination des coefficients de diffusion et d'absorption.....	154
6.2.6 Comparaison des fractions volumiques	154
6.3 DETERMINATION DES PROPRIETES RADIATIVES DES SUIES	157
6.3.1 Relations de dispersion de l'indice optique.....	157
6.3.2 Détermination de l'émissivité totale des agrégats de suie	159
6.4 CONCLUSION SUR LA DETERMINATION DE L'INDICE OPTIQUE DES PARTICULES DE SUIE	161
CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	162
ANNEXES	166
ANNEXE 1 : ESTIMATION DES PARAMETRES PHYSIQUES DES FLAMMES ETUDIEES	167
ANNEXE 2 : PRESENTATION DE L'ETUDE DE REFERENCE	170
ANNEXE 3 : DONNEES DISPONIBLES SUR LA COMBUSTION DU PMMA.....	172
ANNEXE 4 : DETERMINATION DE LA MASSE VOLUMIQUE DES PARTICULES PRIMAIRES DES AGREGATS DE SUIE	173
ANNEXE 5 : DISTRIBUTIONS GRANULOMETRIQUE DES PARTICULES PRIMAIRES ET MORPHOLOGIE DES AGREGATS.....	177
ANNEXE 6 : EVOLUTION DES FONCTIONS E(M) ET F(M) EN FONCTION DE LA PARTIE REELLE ET IMAGINAIRE DE L'INDICE OPTIQUE.....	179
ANNEXE 7 : DETERMINATION DE L'EMISSIVITE TOTALE	180
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	182

LISTE DES FIGURES

Figure 1-1 : Processus de formation et d'évolution des agrégats de suie dans une flamme	21
Figure 1-2 : Structure interne de particules primaires d'acétylène (d'après Vander-Wal, 2003 et Smith, 1981) 22	22
Figure 1-3 : Clichés de microscope électronique à transmission d'agrégats de suie d'acétylène	23
Figure 1-4 : Fonction de densité de diamètre et distribution granulométrique de particules primaires (Köylü et Faeth, 1992, Wentzel <i>et al.</i> , 2003)	24
Figure 1-5 : Morphologie d'agrégats de dimensions fractales différentes.....	26
Figure 1-6 : Distribution granulométrique d'agrégats de suie de méthane (Van Hulle <i>et al.</i> , 2003)	28
Figure 1-7 : Distribution granulométrique d'agrégat de suie de fioul (Barakat <i>et al.</i> , 1997).....	28
Figure 1-8 : Diamètres caractéristiques d'un agrégat ($D_p < D_{ev} < D_a < D_m < D_g < D_{agrégat}$)	33
Figure 2-1 : Schéma descriptif du dispositif expérimental de caractérisation de l'aérosol d'incendie : installation BANCO (BANc de COlmatage).....	35
Figure 2-2 : Schéma descriptif d'une flamme de briquet et d'un feu de nappe	36
Figure 2-3 : Flammes d'acétylène dans différentes configurations et schéma descriptif du brûleur.....	37
Figure 2-4 : Flammes de toluène (à gauche) et flammes de PMMA (à droite) pour différentes configurations ..	38
Figure 2-5 : Schéma de principe du système de dilution FPS 4000 - DEKATI.....	41
Figure 2-6 : Validation expérimentale du dispositif de dilution FPS 4000 (DR FPS : facteur de dilution calculé par le dispositif FPS, DR DOS -DR He : facteur de dilution mesuré expérimentalement)	42
Figure 2-7 : Influence de la dilution sur la distribution granulométrique d'un aérosol de suie (la légende contient les différents facteurs de dilution appliqués)	43
Figure 2-8 : Evolution de la concentration de suie en fonction du facteur de dilution (la fonction de dilution est la valeur de la concentration la plus importante pondérée par les valeurs du taux de dilution)	43
Figure 2-9 : Schéma décrivant le principe de la microbalance TEOM.....	45
Figure 2-10 : Schéma de principe du prélèvement pour pesée sur filtre	46
Figure 2-11 : Relation entre concentration TEOM et concentration filtres	47
Figure 2-12 : Schéma descriptif du granulomètre SMPS.....	48
Figure 2-13 : Schéma descriptif de l'analyseur de mobilité électrique (TSI)	50
Figure 2-14 : Schéma descriptif du principe de fonctionnement d'un CNC	50
Figure 2-15 : Schéma descriptif d'un orifice et d'un plateau d'impaction	51
Figure 2-16 : Schéma descriptif du principe de fonctionnement d'un ELPI.....	52
Figure 2-17 : Fonction de charge du chargeur à effet couronne du ELPI (d'après Marjamäki <i>et al.</i> , 2000)	53
Figure 2-18 : Dispositif de prélèvement par thermophorèse (Hu <i>et al.</i> , 2003)	54
Figure 2-19 : Surface observée au MET d'un filtre après 10 s (à gauche) et 2 s (à droite) de prélèvement	55
Figure 2-20 : Détermination de la loi fractale et de la morphologie de particules de suie d'acétylène	57
Figure 3-1: Valeur approchée du facteur de Cunningham dans le régime de transition, Puissance, pour la loi en puissance approchée, Cunningham réel, pour la relation expérimentale établie par Kim <i>et al.</i> (2005).....	62
Figure 3-2: Dispositif expérimental employé pour valider la méthode de détermination de la masse volumique effective et la dimension fractale des agrégats de suie.....	64

Figure 3-3 : Evolution expérimentale du diamètre aérodynamique et de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique pour des particules sphériques de DOS	65
Figure 3-4 : Dispositif expérimental pour l'étude des particules de suie	66
Figure 3-5 : Evolution expérimentale du diamètre aérodynamique en fonction du diamètre de mobilité électrique pour des agrégats de suie issus de la combustion de l'acétylène, du toluène et du PMMA.....	67
Figure 3-6 : Détermination de la dimension fractale des particules de suie à l'aide de l'analyse DMA-ELPI en série.....	68
Figure 3-7 : Masse volumique effective en fonction du diamètre aérodynamique et de mobilité électrique	69
Figure 3-8 : Evolution du nombre de particules primaires en fonction du rapport D_m/D_{pp}	70
Figure 3-9 : Evolution du rapport β en fonction du diamètre de mobilité et du nombre de particules primaires	71
Figure 3-10 : Evolution du rapport β en fonction du diamètre de mobilité électrique pour différentes valeurs de D_f et de k_f , cas de particules de suie issues de la combustion de l'acétylène ($D_f = 1,93$, $k_f = 1,68$)	72
Figure 3-11 : Détermination de la dimension fractale par analyse en série DMA-ELPI pour des agrégats dont le diamètre de mobilité est supérieur à 250 nm, c'est à dire avec un rapport β constant	73
Figure 3-12 : Fraction de particules portant N charges en fonction de leur diamètre (à gauche) et évolution de la mobilité électrique pour N charges en fonction du rapport diamètre des particules sur facteur de correction de Cunningham correspondant (à droite).....	76
Figure 3-13 : Distribution granulométrique corrigée et non-corrigée pour des suies d'acétylène	77
Figure 3-14 : Comparaison entre la distribution à l'entrée du DMA et la distribution corrigée en considérant la totalité de la distribution ($d_{limite} = 3 \mu m$) et une distribution tronquée ($d_{limite} = d_{coupure} = 0,658 \mu m$)	80
Figure 3-15 : Comparaison entre la distribution à l'entrée du DMA et les distributions granulométriques corrigée et non-corrigée en considérant un diamètre limite identique au diamètre de coupure ($0,658 \mu m$)	81
Figure 3-16 : Comparaison de la distribution corrigée avec la distribution granulométrique en entrée du DMA et la distribution non-corrigée étendue jusqu'à $3 \mu m$	82
Figure 3-17: Distribution non-corrigée issue du logiciel commercial du SMPS et distribution "lissée" et étendue pour des agrégats de suie d'acétylène	83
Figure 3-18 : Comparaison de la distribution SMPS non-corrigée, "lissée" et étendue jusqu'à $3 \mu m$ avec les distributions corrigées avec $d_{limite} = 0,658$ et $3 \mu m$ et la distribution "lissée" pour des diamètres inférieurs à 200 nm et sur la distribution SMPS corrigée avec $d_{limite} = 0,658 \mu m$	84
Figure 3-19 : Dispositif expérimental d'établissement de la loi de charge de l'ELPI (Marjamäki <i>et al.</i> , 2000) ...	85
Figure 3-20 : Lien entre diamètre de mobilité électrique et aérodynamique pour des agrégats de suie	87
Figure 3-21 : Evolution du rapport des fonctions de charge calculées soit en fonction du diamètre de Stokes soit en fonction du diamètre de mobilité électrique.....	88
Figure 3-22 : Rapport entre le nombre de particules calculé à partir du diamètre de Stokes et le nombre de particules calculé à partir du diamètre de mobilité électrique	89
Figure 3-23 : Comparaison des distributions granulométriques pour le toluène	90
Figure 3-24 : Comparaison entre distributions SMPS et ELPI non-corrigées (à gauche) et corrigées (à droite) pour les trois combustibles et pour différentes conditions de ventilation.....	91
Figure 3-25 : Comparaison entre les concentrations en nombre de particules mesurées par le SMPS et le ELPI (brut : données non corrigées des logiciels d'exploitation du ELPI et du SMPS ; corrigé : données corrigées à	

partir des réflexions du présent chapitre) et comparaison entre les concentrations massiques mesurées par le TEOM, l'ELPI et le SMPS	92
Figure 3-26: Détermination de la dimension fractale des particules de suie à partir des distributions granulométrique ELPI et SMPS mesurées en parallèle et pour les trois combustibles.	94
Figure 4-1: Débit de combustible en fonction du débit de ventilation	96
Figure 4-2: Evolution de la température des fumées en fonction du débit de ventilation	97
Figure 4-3: Evolution de la concentration massique en fonction du débit de ventilation. Les courbes en pointillés représentent la fonction théorique de dilution.....	98
Figure 4-4 : Evolution du débit massique de suies en fonction du débit de ventilation	99
Figure 4-5: Evolution de la fraction volumique en fonction de la richesse globale.....	99
Figure 4-6: Evolution du facteur d'émission de suie en fonction de la richesse globale	100
Figure 4-7: Relation liant les concentrations de CO et CO ₂ à la concentration de suie.....	100
Figure 4-8: Evolution des rapports émission CO/suies et émission CO ₂ /suies en fonction de la richesse	101
Figure 4-9: Evolution du facteur d'émission de suie en fonction de la puissance dégagée	102
Figure 4-10: Comparaison des granulométries SMPS obtenues aux différents points de prélèvement	103
Figure 4-11: Evolution de la concentration massique de suie en fonction de la position de prélèvement.....	104
Figure 4-12: Evolution de la dimension fractale D _f en fonction de la richesse globale	104
Figure 4-13: Evolution du préfacteur fractal k _f en fonction de la richesse globale.....	105
Figure 4-14: Evolution du diamètre des particules primaires D _{pp} en fonction de la richesse globale.....	105
Figure 4-15 : Evolution de la granulométrie SMPS en fonction du débit de ventilation pour l'acétylène.....	107
Figure 4-16 : Evolution de la granulométrie SMPS en fonction du débit de ventilation pour le toluène	107
Figure 4-17 : Evolution de la granulométrie SMPS en fonction du débit de ventilation pour le PMMA	107
Figure 4-18 : Comparaison des distributions SMPS amont et aval du thermo-dénudeur pour des agrégats de suie de toluène prélevés à 450 m ³ /h	108
Figure 4-19 : Evolution du diamètre médian des agrégats en fonction de la richesse (gauche : diamètre de mobilité mesuré à l'aide du SMPS, droite : diamètre aérodynamique mesuré à l'aide du ELPI).....	109
Figure 4-20 : Evolution de l'écart type géométrique en fonction de la richesse globale (gauche : écart-type de la distribution SMPS, droite : écart-type de la distribution ELPI)	109
Figure 4-21 : Evolution de la dimension fractale en fonction de l'écart-type géométrique des distributions granulométriques mesurées (à gauche : SMPS, à droite : ELPI)	110
Figure 4-22: Evolution du débit d'agrégats et de la concentration en nombre en fonction de la richesse globale	110
Figure 4-23: Evolution du diamètre moyen des agrégats au cours du temps pour différents diamètres de particules primaires et avec : D _f = 1,8, φ = 10 ⁻⁷ , T = 800°K, ρ _{pp} = 1720 kg/m ³ (d'après Wu & Friedlander, 1993).....	112
Figure 4-24 : Fonction d'évolution de la concentration en fonction du débit de ventilation.....	115
Figure 4-25 : Comparaison entre l'évolution expérimentale des diamètres médians des agrégats et l'évolution calculée à partir du modèle de coagulation (acétylène à gauche, toluène au centre et PMMA à droite) ..	116
Figure 4-26 : Facteur d'émission en fonction du diamètre des agrégats (gauche : SMPS, droite : ELPI)	116
Figure 4-27 : Facteur d'émission en fonction du diamètre des particules primaires	117

Figure 4-28: Evolution de la masse des agrégats en fonction de la richesse globale	118
Figure 4-29: Comparaison de l'évolution du facteur d'émission expérimental et calculé en fonction de la richesse pour l'acétylène, le toluène et le PMMA	119
Figure 5-1 : Représentation du champ incident et du champ diffusé.....	122
Figure 5-2 : Evolution de l'indice en fonction de la longueur d'onde (Mullins <i>et al.</i> , 1987). Courbes du haut pour la partie réelle n , celles du bas pour la partie imaginaire k	128
Figure 5-3 : Dispersion des valeurs d'indice issues de la littérature.....	129
Figure 5-4 : Schéma descriptif du dispositif EXSCA	131
Figure 5-5 : Banc EXSCA avec son système d'alimentation et de purge	131
Figure 5-6 : Exemples de signaux d'extinction et de diffusion obtenus avec le banc EXSCA	132
Figure 5-7 : Schéma de principe du protocole d'étalonnage du banc EXSCA avec des billes de latex.....	135
Figure 5-8 : Etude comparative entre les coefficients d'extinction numériques et expérimentaux pour les billes de latex.....	136
Figure 5-9 : Principe de détermination de l'indice optique à l'aide de la méthode d'inversion	137
Figure 5-10 : Principe du calcul des coefficients d'extinction et de diffusion des suies	137
Figure 5-11: Distributions cumulées en mobilité électrique déterminées à partir des clichés MET.....	139
Figure 5-12 : Evolution du rapport $\beta = D_g/D_m$ en fonction du nombre de particules primaires d'après Rogak et Flagan (1990)	140
Figure 5-13 : Sensibilité du rapport β au diamètre de coupure de la distribution SMPS	141
Figure 6-1 : Evolution du coefficient d'extinction en fonction de la concentration TEOM.....	142
Figure 6-2 : Evolution du coefficient de diffusion vertical-vertical pour chaque combustible	143
Figure 6-3 : Evolution du coefficient spécifique massique d'extinction en fonction de la longueur d'onde, les résultats issus de la littérature sont les valeurs moyennes tirées des analyses de Mulholland et Croarkin (2000) et Newman et Steciak (1987).....	144
Figure 6-4 : Influence du débit de ventilation sur le coefficient d'extinction, de diffusion vertical-vertical et sur l'indice de réfraction de particules de suie d'acétylène à 1064 nm.....	146
Figure 6-5 : Comparaison des valeurs expérimentales et bibliographiques d'indice optique.....	148
Figure 6-6 : Evolution des fonctions de l'indice $E(m)$ et $F(m)$ en fonction de la nature du combustible	149
Figure 6-7 : Comparaison des valeurs expérimentales de $E(m)$ avec les données issues de la littérature (d'après Krishnan <i>et al.</i> (2001)	150
Figure 6-8 : Influence des variations de D_f , k_f , β , D_p , K_e et K_w sur les parties réelle et imaginaire de l'indice .	151
Figure 6-9 : Comparaison de l'évolution expérimentale du rapport β en fonction du nombre de particules primaires avec l'évolution issue des travaux de Rogak <i>et al.</i> (1990)	152
Figure 6-10 : Comparaison de la fraction volumique "massique" à la fraction volumique "optique" déterminée à partir du coefficient d'extinction K_{ext} des particules de suies. Les points correspondent à l'ensemble des résultats obtenus pour les trois combustibles.	155
Figure 6-11 : Comparaison de la fraction volumique "massique" à la fraction volumique "optique" déterminée à partir du coefficient d'absorption K_{abs} des particules de suies. Les points correspondent à l'ensemble des résultats obtenus pour les trois combustibles.	155

Figure 6-12: Comparaison de la fraction volumique déterminée à partir de l'indice moyen avec la fraction volumique de référence déterminée à partir de la concentration massique TEOM.	156
Figure 6-13 : Evolution de l'indice optique en fonction de la longueur d'onde déterminée à partir du modèle de dispersion et des résultats expérimentaux	158
Figure 6-14 : Evolution, estimée à l'aide du modèle de dispersion, de l'indice optique des particules de suie en fonction de la longueur d'onde pour différentes températures	159
Figure 6-15: Evolution, estimée à partir de l'évolution de l'indice optique présentée en Figure 6-13, du rapport du coefficient d'absorption K_{abs} sur la fraction volumique f_v de suies en fonction de la longueur d'onde (figure de gauche) et évolution de l'émissivité des particules de suie en fonction du produit fraction volumique f_v fois la longueur L de trajet optique (figure de droite)	160

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1-1 : Tableau récapitulatif des caractéristiques morphologiques d'agrégats rencontrés dans la littérature (g : gaz, l : liquide, s : solide), * : d'après Megaridis et Dobbins (1990)	25
Tableau 1-2 : Grandeurs fractales issues de la littérature (g : gaz, l : liquide, s : solide)	27
Tableau 1-3 : Synthèse des nombres de Knudsen, du facteur de Cunningham et de la force de traînée	31
Tableau 2-1 : Caractéristiques physiques des flammes et des combustibles employés dans l'étude (a : approche de Zukoski, b : approche de Delichatsios, cf. annexe 1)	39
Tableau 2-2 : Evolution par coagulation au cours du temps d'un aérosol monodispersé (d'après Renoux et Boulaud, 1998)	41
Tableau 3-1 : Paramètres utilisés pour l'analyse des données de l'étude en série DMA-ELPI.....	66
Tableau 3-2 : Synthèse des valeurs de dimension fractale déterminées par l'analyse en série DMA-ELPI	68
Tableau 3-3 : Synthèse des dimensions fractales obtenues à partir de la masse volumique effective	70
Tableau 3-4 : Synthèse des valeurs de dimensions fractales de l'analyse DMA-ELPI en série, sous l'hypothèse d'un rapport $\beta = D_g/D_m$ constant	73
Tableau 3-5 : Constantes utilisées dans la relation (3-39).....	75
Tableau 3-6 : Valeurs des paramètres de chaque classe de l'ELPI employées pour le traitement des données et conversion entre courant mesuré par l'ELPI et nombre correspondant de particules de suie d'acétylène (masse volumique des particules primaires de 1,72 g/cm ³)	86
Tableau 3-7: Synthèse des informations granulométriques SMPS/ELPI Mobilité/ELPI Stokes pour le toluène....	90
Tableau 4-1: Valeurs déterminées expérimentalement de la masse volumique des particules primaires de suie	97
Tableau 4-2: Synthèse des facteurs d'émission des trois combustibles étudiés	101
Tableau 4-3: Conditions d'étude de l'influence du temps de résidence dans la ligne de ventilation	103
Tableau 4-4: Synthèse des données expérimentales concernant la morphologie des agrégats.....	106
Tableau 5-1 : Indices de réfraction établis au cours de différentes études	129
Tableau 5-2 : Différentes phases de la mesure des coefficients d'extinction et de diffusion.....	132
Tableau 5-3 : Conditions opératoires de l'étude de validation	135
Tableau 5-4 : Valeurs du rapport β utilisées pour le calcul de l'indice optique des suies.....	140
Tableau 6-1 : Données morphologiques utilisées pour l'inversion des données d'extinction et de diffusion	144
Tableau 6-2 : Nombre d'essais menés et valeurs moyennes de l'indice de réfraction, de la fonction E(m) pour les flammes d'acétylène à 632 et 1064 nm (Ecart type estimé à $\pm 2\sigma$)	145
Tableau 6-3 : Nombre d'essais menés et valeurs moyennes de l'indice de réfraction et de la fonction E(m) pour les flammes de toluène à 632 et 1064 nm (Ecart type estimé à $\pm 2\sigma$)	145
Tableau 6-4 : Nombre d'essais menés et valeurs moyennes de l'indice de réfraction et de la fonction E(m) pour les flammes de PMMA à 632 et 1064 nm (Ecart type estimé à $\pm 2\sigma$)	145
Tableau 6-5 : Synthèse des valeurs expérimentales de l'indice optique des particules de suie	147
Tableau 6-6 : Conditions de validité de Farias <i>et al.</i> (1996) de la RDG-FA pour les valeurs d'indice de l'étude	148
Tableau 6-7 : Valeurs de référence pour les paramètres d'entrée pour les trois combustibles. Les valeurs pour l'indice optique sont celles obtenues à 1064 nm	151

Tableau 6-8 : Comparaison de la valeur de l'indice obtenu en utilisant une valeur β indépendante et dépendante du diamètre de mobilité D_m	153
Tableau 6-9 : Valeurs moyennes de coefficients d'extinction mesurés, d'absorption, de diffusion totale théoriques et le pourcentage de diffusion par rapport à l'extinction (les exemples reportés correspondent au cas d'un débit de ventilation de $450 \text{ m}^3/\text{h}$)	154
Tableau 6-10 : Valeurs estimées des constantes n_c et g_c du modèle de dispersion.....	158

INTRODUCTION

La pollution atmosphérique et le réchauffement climatique sont actuellement les sujets majeurs de préoccupation à la fois des scientifiques et du grand public. Si la contribution des gaz à effet de serre a rapidement été identifiée, il a fallu attendre la dernière moitié du XX^{ième} siècle pour souligner la contribution majeure des particules émises par les activités anthropiques. Ces particules sont essentiellement issues des activités qui reposent sur les phénomènes de combustion. Ainsi, en 2000, près de 20 millions de tonnes de particules de suie issues de la combustion ont été émises par des activités aussi diverses que la production d'énergie, les industries pétrolières, les incendies de forêt mais aussi les différents modes de transport qu'ils soient privés ou publics. Ces particules présentent ainsi un double impact, à la fois global à travers leurs propriétés radiatives sur les modifications du climat à l'échelle planétaire et sanitaire de par leurs dimensions et leur morphologie. Ces préoccupations justifient grandement le nombre important d'études menées sur ce point depuis une trentaine d'années et les domaines d'applications de ces recherches sont nombreux et variés. En effet si l'impact est global, les modes de production de ces particules n'en sont pas moins très divers. On les rencontre à la fois dans des applications industrielles où elles peuvent être maîtrisées, et dans des situations où elles sont plus difficilement contrôlables comme dans le cas des émissions "moteur" ou des incendies. La caractérisation de ces particules est donc primordiale afin d'appréhender leur impact climatique et sanitaire. Des travaux de recherches sur leurs modes de formation, leur nature chimique, leur réactivité, leur morphologie, leur taille et leurs propriétés optiques ont été et sont encore menés aujourd'hui.

Dans ce contexte, notre travail se place dans le cadre des situations accidentelles d'incendie et plus particulièrement dans une installation nucléaire. En effet dans ce cas il est nécessaire de conserver le confinement de cette installation et ce même en situation d'incendie. Le confinement est rendu possible par une stratégie de ventilation qui permet de maintenir constamment les locaux en dépression, mais aussi à l'aide de barrières de filtration telles que les filtres à très haute efficacité (THE). Des travaux ont ainsi été menés au sein de l'IRSN (Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire) sur le comportement des filtres THE en situation d'incendie et ont souligné des fortes disparités entre les modèles de colmatage existant et les résultats expérimentaux. Il est ainsi apparu nécessaire de caractériser les particules émises lors de situations d'incendie dans un local ventilé afin d'intégrer ces informations dans les modèles de colmatage. En parallèle de cet impact sur la filtration, les particules de suie jouent un rôle conséquent sur le bilan radiatif des flammes rencontrées lors des incendies et, afin de prédire la propagation de l'incendie, il apparaît nécessaire d'estimer cette contribution. Il est important de noter que cette étude, même si elle s'inscrit plus spécifiquement dans le cadre de l'étude de sûreté d'une installation nucléaire vis-à-vis du risque incendie, apporte des informations applicables aux situations d'incendie rencontrées à une plus large échelle dans des milieux industriels ou des habitations.

L'objectif de ce travail consiste donc en la caractérisation d'un point de vue dimensionnel et radiatif des particules de suie émises lors d'un incendie. Si de nombreux travaux ont été menés dans des flammes

d'hydrocarbures nous avons trouvé assez peu d'informations sur les particules hors de la flamme et pour des combustibles autres que des gaz. Suite à ce constat nous avons étudié des particules dans la zone de fumées de flammes de diffusion sur-ventilées d'acétylène, de toluène et de PolyMethyl Methacrylate (PMMA). La morphologie de ces particules, leur distribution en taille ainsi que leur facteur d'émission et leur indice de réfraction ont donc été établis dans différentes conditions de ventilation correspondant aux conditions rencontrées dans les réseaux de ventilation d'une installation nucléaire. Le dispositif expérimental mis en œuvre permet une détermination morphologique des particules de suie tandis que deux dispositifs granulométriques donnent la distribution en taille des particules en termes de diamètre aérodynamique et de mobilité électrique. Un dispositif de prélèvement permet d'effectuer des clichés de microscopie électronique et l'analyse de ces clichés apporte les caractéristiques morphologiques des agrégats. Une microbalance mesure en temps réel la concentration en particules de suie qui, couplée à un dispositif de détermination de la masse volumique des particules primaires, permet d'estimer la fraction volumique de particules de suie. Les propriétés optiques sont, quant à elles, déterminées à l'aide d'un dispositif spécifique développé au cours de cette étude grâce auquel on mesure les coefficients d'extinction et de diffusion "vertical-vertical" associés aux particules de suie. Une procédure d'inversion de ces données nous a ensuite permis la détermination de l'indice optique des particules issues des différents combustibles pour deux conditions de ventilation.

Ce manuscrit se compose de six parties distinctes :

En première partie nous effectuons une description bibliographique de la nature et de la morphologie quasi-fractale des particules de suie. Une présentation des modes de formation de ces agrégats est aussi effectuée ainsi qu'une introduction des diamètres caractéristiques couramment rencontrés afin de décrire les particules de suie.

La deuxième partie décrit le dispositif expérimental de caractérisation morphologique et dimensionnelle des particules de suie. Nous présentons le dispositif de dilution employé et validé au cours de cette étude ainsi que les granulomètres utilisés. Un paragraphe sur l'analyse pondérale des particules de suie nous permet de décrire la microbalance mesurant la concentration massique en suie ainsi que sa validation. La méthode d'obtention et d'analyse des clichés de microscopie électronique est enfin décrite et ses avantages et inconvénients sont exposés.

Ensuite, la troisième partie de ce manuscrit consiste en une étude comparative et une réflexion sur les informations apportées par les dispositifs granulométriques employés. La comparaison du diamètre aérodynamique et du diamètre de mobilité électrique des agrégats nous a ainsi apporté des informations très utiles afin d'estimer la dimension fractale, la masse volumique effective ainsi que le rapport existant entre le diamètre de mobilité électrique et le diamètre de giration des agrégats. De plus un travail, indispensable, de traitement des données de ces deux granulomètres est présenté permettant ainsi de corriger les distributions en taille issues de ces dispositifs.

Nous présentons dans la quatrième partie l'influence des conditions expérimentales sur les niveaux d'émission des différentes flammes. Une analyse de l'influence de ces conditions sur la taille et la morphologie des particules de suie a été menée et un travail, visant à corréler les informations morphologiques et granulométriques aux facteurs d'émission, a ensuite permis d'isoler l'influence des conditions expérimentales

sur la production de particules de suie des différentes flammes. Ces informations sont nécessaires à la détermination des propriétés optiques des particules de suie introduites dans la partie suivante.

Dans la cinquième partie nous définissons les phénomènes d'interaction lumière-particule ainsi que les modèles employés dans cette étude afin d'estimer les sections efficaces d'extinction et de diffusion des particules de suie. Le dispositif expérimental de détermination des propriétés optiques est décrit dans cette partie ainsi que la méthode d'inversion associée à l'établissement de l'indice optique des particules de suie.

Les résultats expérimentaux de propriétés optiques des particules de suie issues des trois combustibles de cette étude sont présentés dans la sixième partie. On y retrouve les coefficients d'extinction et de diffusion "vertical-vertical" mesurés ainsi que les valeurs d'indice optique obtenues à l'aide de ce dispositif. Une analyse de sensibilité ainsi que l'application directe des valeurs d'indice optique au calcul de la fraction volumique et de l'émissivité totale nous permet alors de conclure quant à la validité de la méthode proposée.

1 ETAT DE L'ART DES CONNAISSANCES SUR LES PARTICULES EMISES LORS DES INCENDIES

Les particules de suie produites lors de la combustion d'hydrocarbures présentent une morphologie très spécifique qu'il convient d'introduire afin d'appréhender les difficultés rencontrées lors de leur étude. Dans cette partie nous détaillerons tout d'abord les mécanismes intervenant lors de la formation de ces agrégats puis nous aborderons leur description morphologique. Une présentation générale des diamètres couramment employés dans la métrologie des aérosols afin de décrire des particules de forme quelconque sera ensuite exposée.

1.1 FORMATION ET EVOLUTION DES PARTICULES DANS LA FLAMME

De nombreuses études ont été menées sur la compréhension des phénomènes complexes mis en jeu lors de la formation des particules de suie dans les flammes. La principale difficulté dans la compréhension de ces phénomènes réside dans l'explication des processus permettant la transition entre une molécule d'hydrocarbure comportant 10 à 20 atomes de carbone et un ratio H/C d'environ 2, à des particules de suie comportant 10^5 atomes de carbone et un ratio H/C de 0,1. Ce travail ne portant pas particulièrement sur ce point, le lecteur pourra trouver dans la littérature de plus amples informations et nous effectuerons ici une simple description générale des phénomènes en présence. Nous distinguerons pour cela cinq grands phénomènes : la nucléation, la croissance de surface, la coagulation, l'agglomération et l'oxydation.

1.1.1 LA NUCLEATION

La nucléation correspond à la genèse des particules primaires et se produit dans la zone la plus réactive de la flamme. Au cours de ce processus les produits issus de l'oxydation et/ou de la pyrolyse des molécules du combustible se condensent et forment les premières particules solides de l'aérosol : les nucléi. Les molécules à l'origine des nucléi sont essentiellement des hydrocarbures insaturés tels que l'acétylène, ses analogues plus "massifs" ($C_{2n}H_{2n}$) et des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP). Les nucléi sont produits en très grande quantité mais, du fait de leur taille (diamètre inférieur à 2 nm et masse de l'ordre de 1000 uma) ne représentent qu'une très faible part de la production totale de particules de suie.

1.1.2 LA CROISSANCE DE SURFACE

Comme nous venons de le voir la nucléation produit une grande quantité de particules "nucléi" de diamètre de l'ordre du nanomètre qui vont ensuite "grossir" au cours des phénomènes de croissance de surface. Au cours de cette étape des espèces gazeuses vont réagir à la surface des nucléi et vont s'y incorporer. Une fois encore les espèces cycliques fortement hydrogénées sont particulièrement réactives et on retrouve les HAP, l'acétylène, les polyacétylènes mais aussi le benzène. Ce processus hétérogène se déroule jusqu'à ce que les particules atteignent une forme quasi sphérique, de diamètre proche de 10 nm. Cette phase représente la principale phase de production massive de particules de suie et elle est précédée de phénomènes de restructuration des particules sans production particulière de masse. On retrouve alors des phénomènes issus de collisions inter-particulaires qui vont imposer la morphologie des agrégats : la coagulation et l'agglomération.

1.1.3 LA COAGULATION ET L'AGGLOMERATION

Lorsque les particules sont encore "jeunes", c'est à dire que leur diamètre est faible (de l'ordre de 10 nm) et que la croissance de surface est encore rapide, deux particules entrant en collision peuvent fusionner. En effet, du fait de la forte concentration et du fort mouvement brownien dus à la température dans la flamme, les particules entrent en collision et leur structure interne encore mobile peut se réorganiser. On assiste suite à cette collision à un phénomène de coalescence. Pour des particules plus "âgées" et de diamètre plus important (supérieur à 10 nm) la structure interne est plus difficile à réorganiser et les particules vont se coller sans fusionner ; c'est le phénomène d'agglomération. C'est au cours de ce phénomène que la morphologie complexe des particules de suie apparaît et que la distribution granulométrique des particules s'établit. Au cours de ces deux phénomènes de collision, la masse totale de l'aérosol n'évolue pas tandis que le nombre de particules diminue.

1.1.4 L'OXYDATION

Dans les zones peu réactives de la flamme, l'oxygène est de plus en plus présent et les particules se trouvant dans ces zones peuvent alors être oxydées. Cette oxydation correspond à une combustion partielle des agrégats. Deux espèces majoritaires peuvent oxyder les particules de suie, l'oxygène et le radical OH induisant ainsi deux phénomènes oxydatifs différents. Ainsi, l'oxygène qui présente une efficacité de collision faible peut pénétrer à l'intérieur des particules et effectuer une oxydation interne de ces dernières pouvant entraîner la cassure de la particule. Le radical OH quant à lui présente une efficacité de collision plus élevée et diffuse alors peu dans la particule. L'oxydation par le radical OH est alors en surface et tend non pas à casser les agrégats mais à réduire la masse des agrégats. Le lecteur pourra trouver plus d'informations sur l'oxydation des agrégats dans les travaux de Haudiquert (1996) et Kennedy (1997). La [Figure 1-1](#) donne une synthèse de ces différentes étapes et permet de les situer spatialement et chronologiquement dans la flamme.

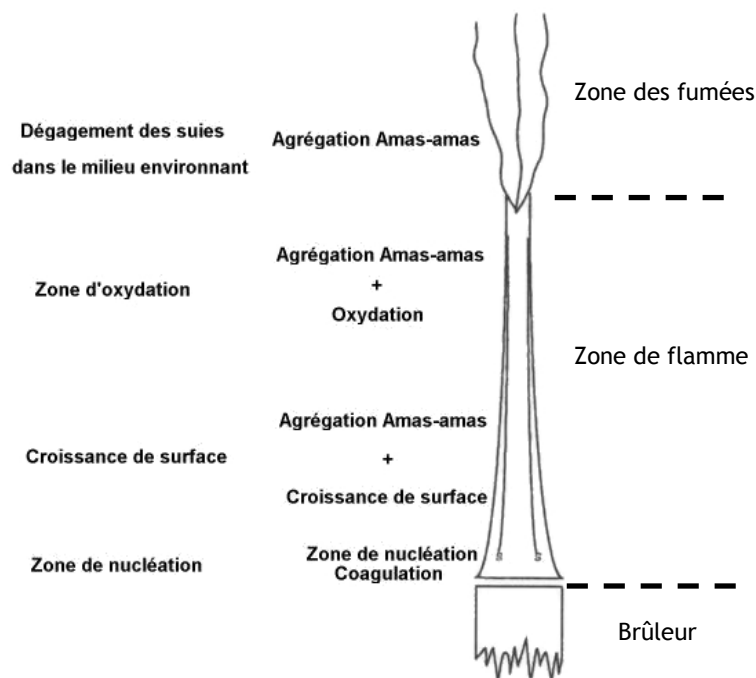


Figure 1-1 : Processus de formation et d'évolution des agrégats de suie dans une flamme

1.2 NATURE ET STRUCTURE INTERNE DES AGREGATS

Lors de la combustion d'un hydrocarbure ou, dans notre cas, lors d'un incendie, les particules produites sont majoritairement (90%) composées de carbone. Des traces d'hydrogène (10%), d'oxygène et d'azote ont été aussi reportées dans de précédentes études (Haynes et Wagner, 1981, Kennedy, 1997). Les particules primaires composant les agrégats de suie comportent environ 10^5 atomes de carbone qui se disposent en rangées hexagonales communément appelées plaquettes. Les distances séparant les plans de plaquettes sont généralement supérieures à celle du graphite. La [Figure 1-2](#) présente un cliché obtenu à l'aide d'un microscope électronique à transmission à haute résolution (HRTEM, Vander Wal, 2003) où l'on retrouve une structure en "peau d'oignon" à la périphérie de la particule, caractéristique du graphite mais beaucoup moins ordonnée au cœur de la particule primaire.

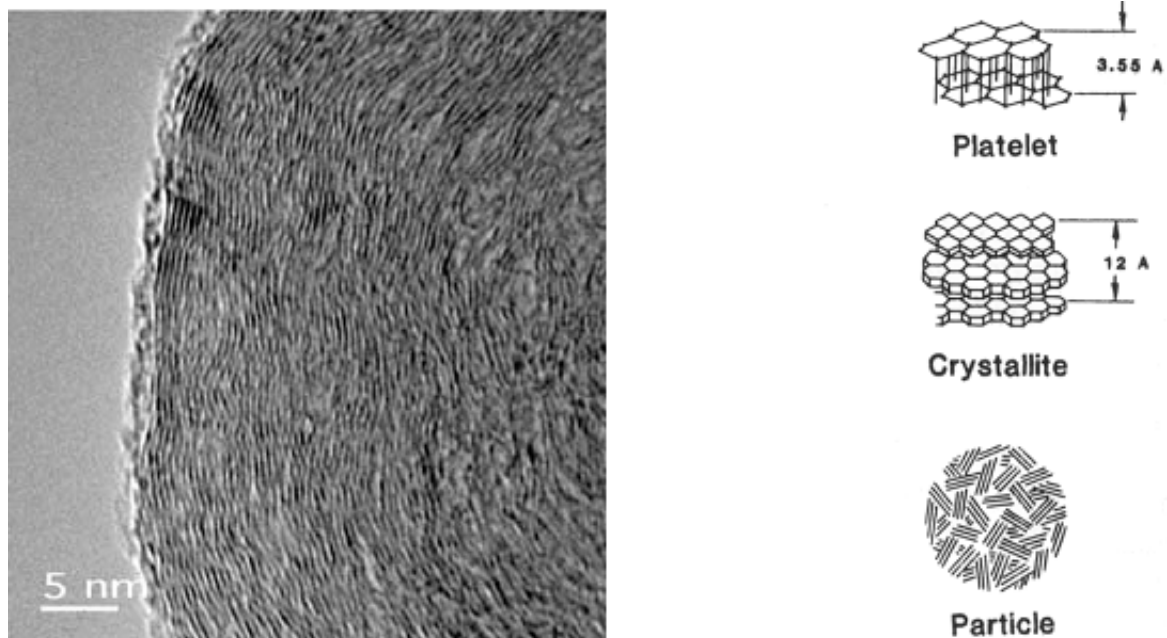


Figure 1-2 : Structure interne de particules primaires d'acétylène (d'après Vander-Wal, 2003 et Smith, 1981)

Ce relatif désordre dans la particule primaire explique en partie la masse volumique des particules primaires inférieure à celle du graphite ($2,2 \text{ g/cm}^3$) et comprise entre $1,1$ et $1,9 \text{ g/cm}^3$ (Newman et Steciak, 1987, Dobbins *et al.*, 1994). On retrouve de plus sur la [Figure 1-2](#), un modèle de structure interne (Smith, 1981) faisant intervenir des plaquettes (platelet) s'ordonnant en groupe de 2 à 5 pour former des cristallites (Crystallite), une particule primaire comportant ainsi environ un millier de ces cristallites. La structure interne des particules primaires de suie dépend essentiellement de la nature du combustible et du mode de formation dans la flamme.

1.3 MORPHOLOGIE ET GRANULOMETRIE DES PARTICULES DE SUIE

1.3.1 PRESENTATION GENERALE DES PARTICULES DE SUIE

Le processus de formation des particules de suie est à l'origine de la morphologie complexe qui apparaît sur les clichés de microscopie électronique à transmission. Nous présentons sur la [Figure 1-3](#), deux clichés réalisés au cours de cette étude, à l'aide d'un microscope à transmission électronique d'agrégats issus de la combustion d'acétylène. Les suies sont composées de particules primaires sphériques généralement considérées de même taille puisque résultant des mêmes processus de formation. La morphologie de tels agrégats, soulignée à travers la [Figure 1-3](#), ne pouvant être approchée par des sphères a nécessité de nombreuses études, à la fois théorique (Jullien et Botet, 1987, Brasil *et al.*, 1999, 2000 et 2001) et à la fois expérimentales (Medallia et Heckman, 1969, Dobbins et Megaridis, 1987, Megaridis et Dobbins, 1991, Köylü *et al.*, 1995a et b).

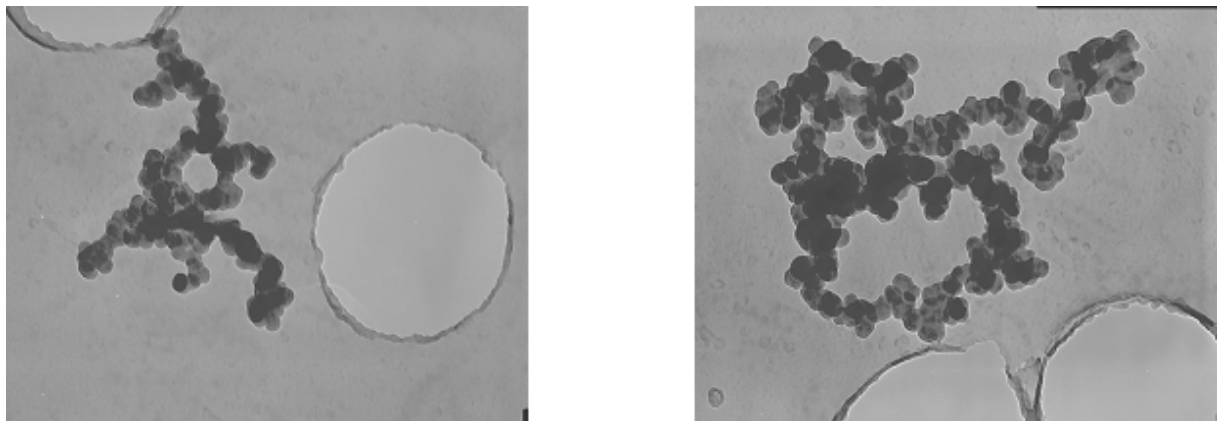


Figure 1-3 : Clichés de microscope électronique à transmission d'agrégats de suie d'acétylène

Différentes approches théoriques des phénomènes d'agglomération présents lors de la formation des particules de suie ont été proposées et nous retiendrons ici les deux principaux modèles rencontrés. Le premier, qualifié de modèle "particule-amas" (monomer-cluster MC), vise à faire grossir l'agrégat en ajoutant des particules primaires les unes après les autres. Le second modèle, dit "amas-amas" (cluster-cluster CC) se fonde sur le modèle "particule-amas" en considérant ensuite des agrégations entre amas. Si le premier modèle a tendance à donner lieu à des agrégats assez compacts le second, lui, produit des agrégats d'assez faible compacité. Tout d'abord assimilés à des sphères par commodité, il a fallu attendre l'application, par Jullien et Botet (1987), des travaux de Mandelbrot sur la théorie fractale pour décrire pleinement la morphologie de ces agrégats. La notion de morphologie fractale des agrégats s'est rapidement imposée mais il convient cependant de qualifier plutôt les agrégats d'objets "quasi-fractal". En effet par définition un objet fractal présente la même structure quelle que soit l'échelle d'observation. Dans notre cas les agrégats de suie n'ont évidemment pas cette particularité puisqu'il existe une limite inférieure : la particule primaire et une limite supérieure : l'agrégat. Cependant, afin de faciliter la lecture nous préférons le terme de fractal à celui de "quasi-fractal". Afin de décrire la morphologie des particules de suie il convient alors de définir les différents paramètres utiles à cette caractérisation.

1.3.2 MORPHOLOGIE DES AGREGATS

A la vue des précédents développements, la morphologie des particules de suie apparaît particulièrement complexe. Afin de les décrire nous allons tout d'abord introduire les paramètres décrivant la morphologie des agrégats puis nous détaillerons les informations granulométriques couramment employées.

Le diamètre des particules primaires D_{pp} :

La particule primaire étant le composant élémentaire de l'agrégat, la connaissance de sa dimension est nécessaire à la description de l'agrégat. Il est généralement admis que la loi de distribution de taille est de type gaussien. De nombreux travaux ont été menés sur cette distribution, ainsi Köylü et Faeth (1992), et récemment Wentzel *et al.* (2003) ont établi la distribution en taille des particules primaires pour différents agrégats de suie (Figure 1-4). Dans ces deux résultats et pour des particules primaires issues de combustibles différents on retrouve une faible dispersion en taille de ces particules.

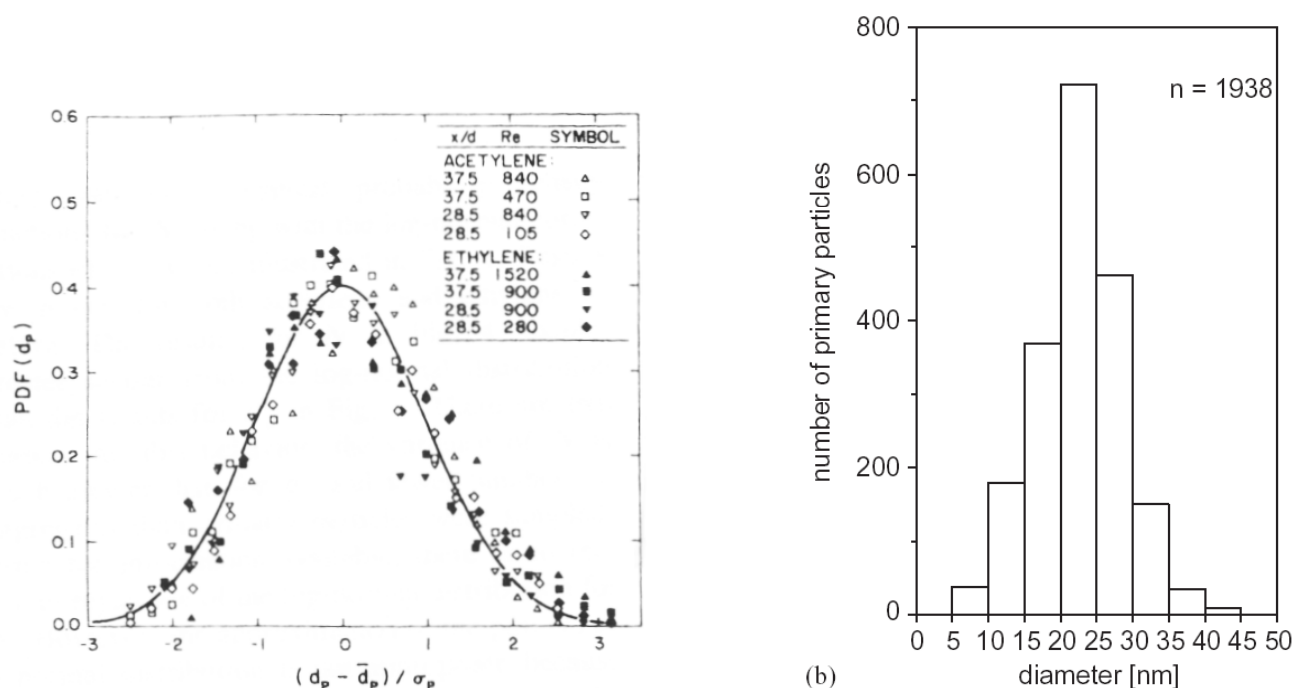


Figure 1-4 : Fonction de densité de diamètre et distribution granulométrique de particules primaires (Köylü et Faeth, 1992, Wentzel *et al.*, 2003)

Ce résultat permet une simplification au niveau de l'analyse de la morphologie des agrégats en assimilant le diamètre des particules à leur valeur moyenne. Cette approximation est une des hypothèses de base de la méthode d'analyse des clichés MET utilisées dans cette étude (cf. paragraphe 2.7) ainsi que pour la modélisation de la diffusion de la lumière à l'aide de l'approche RDG-FA (cf. paragraphe 5.2.2). De nombreuses études ont été menées sur l'établissement de la taille de ces particules primaires et nous résumons dans le Tableau 1-1 les différentes valeurs rencontrées. On voit, à travers ce tableau, que les diamètres sont compris entre 10 et 50 nm et qu'ils dépendent de la nature du combustible.

Le diamètre de giration D_g :

En parallèle du diamètre des particules primaires nous présentons le diamètre de giration D_g . Ce paramètre est particulièrement intéressant puisqu'il donne une estimation de la répartition massique des agrégats. Ce diamètre D_g correspond à la moyenne des carrés des distances (d_i) entre les particules primaires et le centre de masse de l'agrégat :

$$D_g^2 = \frac{4}{N_p} \cdot \sum_i d_i^2 \quad \text{Équation 1-1}$$

Ce diamètre, intervenant dans la relation fractale est généralement déterminé par analyse de clichés de microscopie électronique et nous reviendrons sur ce point dans la partie 2.7. Des valeurs du rayon de giration R_g sont présentées dans le [Tableau 1-1](#).

Le nombre de particules primaires présentes dans l'agrégat N_p :

Ce nombre, variant entre 10 et 1000 selon le combustible, dépend bien évidemment du processus d'agrégation présent au cours de la formation des particules de suie. Ainsi la disparité entre les résultats présentés dans le [Tableau 1-1](#) peut s'expliquer par les différentes positions d'étude : dans et hors de la flamme. Ainsi les travaux de Hu et Köylü (2003), se situant dans les zones réactives de la flamme, présentent des nombres assez faibles de particules primaires par agrégat (environ 50), à l'inverse, pour le même combustible, mais pour des mesures effectuées en dehors de la flamme, Köylü et Faeth (1992) trouvent des nombres de particules primaires de l'ordre de 500. Le [Tableau 1-1](#) donne une synthèse des données bibliographiques portant sur les paramètres caractérisant un agrégat.

Tableau 1-1 : Tableau récapitulatif des caractéristiques morphologiques d'agrégats rencontrées dans la littérature (g : gaz, l : liquide, s : solide), * : d'après Megaridis et Dobbins (1990)

Auteurs	Combustible	Type de flamme	Dpp (nm)	Np	Rg (nm)
Lee <i>et al.</i> (1962)* (g)	Hydrocarbures	Flamme laminaire	20 - 40	-	-
Prado <i>et al.</i> (1981)* (g)	Propane/oxygène	Flamme prémélangée	15 - 26	-	-
Harris et Weiner (1984)* (g)	Toluène\éthylène	Flamme prémélangée	20 - 25	-	-
Samson <i>et al.</i> (1987) (g)	Acétylène	Petite flamme fumante	20 - 30	-	-
Zhang <i>et al.</i> (1988)* (g)	Methane/oxygène	Flamme prémélangée	20	-	-
Megaridis et Dobbins (1989) (g)	Ethylène	Flamme de diffusion laminaire	30 - 37	-	-
Koylu et Faeth (1991b) (g)	Acétylène	Flamme de diffusion turbulente	47	417	472
Koylu et Faeth (1991b) (g)	Propylène	Flamme de diffusion turbulente	41	460	518
Koylu et Faeth (1991b) (g)	Ethylène	Flamme de diffusion turbulente	32	467	452
Koylu et Faeth (1991b) (g)	Propane	Flamme de diffusion turbulente	30	364	366
Koylu <i>et al.</i> (1997) (g)	Ethylène/air	Flamme de diffusion laminaire	18 - 31	5 - 190	-
Krishnan <i>et al.</i> (2000) (g)	Butadiène	Flamme de diffusion turbulente	42	-	-
Hu <i>et al.</i> (2003) (g)	Ethylène	Flamme de diffusion turbulente	19 - 35	20 - 50	20 - 60
Hu <i>et al.</i> (2003) (g)	Acétylène	Flamme de diffusion turbulente	17 - 34	50 - 180	-
Prado <i>et al.</i> (1977)* (l)	Kerozène	Flamme de diffusion turbulente	19 - 30	-	-
Roessler (1982)* (l)	Diesel	Moteur diesel	autour de 30	-	-
Wey <i>et al.</i> (1984)* (l)	Toluène	Flamme de diffusion turbulente	14 - 20	-	-
Evans <i>et al.</i> (1986)* (l)	Pétrole	Flamme de diffusion turbulente	autour de 45	-	-
Koylu et Faeth (1991a) (l)	Toluène	Flamme de diffusion turbulente	51	526	807
Koylu et Faeth (1991a) (l)	Benzène	Flamme de diffusion turbulente	50	552	824
Koylu et Faeth (1991a) (l)	n-Heptane	Flamme de diffusion turbulente	35	260	359
Koylu et Faeth (1991a) (l)	Isopropanol	Flamme de diffusion turbulente	31	255	330
Krishnan <i>et al.</i> (2000) (l)	Cyclohexane	Flamme de diffusion turbulente	42	-	-
Jagoda <i>et al.</i> (1980)* (s)	Polymer	Flamme de diffusion	13 - 43	-	-

Relation fractale caractérisant l'agrégat :

L'analyse fractale des agrégats passe par l'établissement des trois paramètres précédemment cités : D_{pp} , D_g et N_p . On peut à l'aide de ces trois paramètres établir une relation caractéristique de l'agrégat. Cette relation, dite relation fractale, fait intervenir deux grandeurs fractales : la dimension fractale D_f et le préfacteur k_f :

$$N_p = k_f \cdot \left(\frac{D_g}{D_{pp}} \right)^{D_f} \quad \text{Équation 1-2}$$

La dimension fractale D_f et le préfacteur k_f :

La dimension fractale permet de quantifier la compacité d'un objet. Ainsi une dimension fractale proche de 2 représente une surface assez aérée tandis qu'une dimension fractale de 3 représente un volume assez compact. Pour les agrégats de suie issus de la combustion d'hydrocarbures la dimension fractale est généralement inférieure à 2. Cette dimension fractale reflète le mode de formation des agrégats, ainsi lorsque la dimension fractale est inférieure à 2, nous sommes plutôt en présence de processus d'agrégation de type "amas-amas". Ce processus faisant intervenir des amas déjà formés, la collision et l'adhésion de ces amas donnent lieu à des agrégats aérés et peu compact. C'est ce processus qui prédomine dans le cas des flammes. Pour des dimensions fractales supérieures à 2 le processus "particule-amas" devient de plus en plus prédominant et pour des dimensions fractales supérieures à 2,5 le processus majoritaire est nécessairement de type "particule-amas". La [Figure 1-5](#) présente ces différentes possibilités ainsi que les agrégats correspondants.

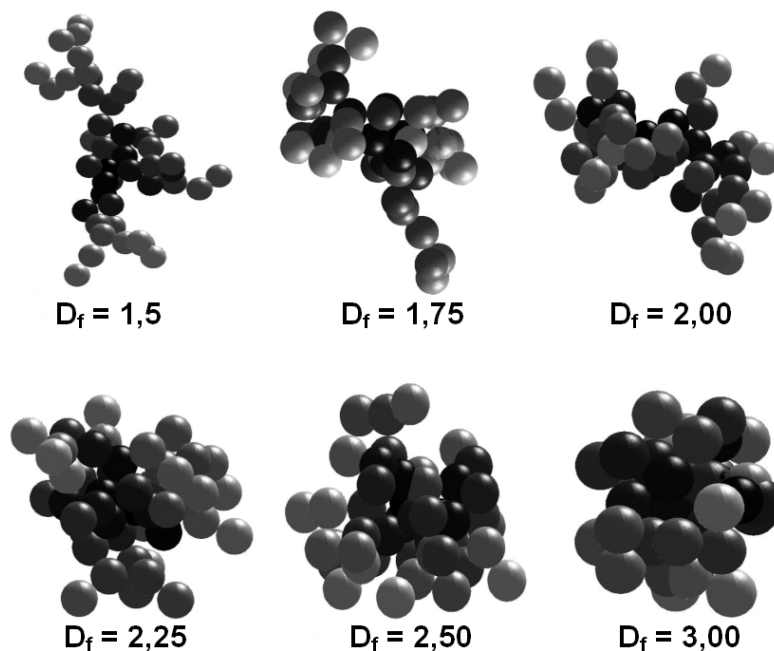


Figure 1-5 : Morphologie d'agrégats de dimensions fractales différentes

La détermination de cette dimension peut être réalisée à l'aide de différentes méthodes. On pourra noter des techniques optiques basées sur la mesure de la diffusion de la lumière pour deux angles différents (Angular Light Scattering, Köylü *et al.*, 1995b), l'analyse aérodynamique (Wu *et al.*, 1994) ou plus couramment par analyse de clichés obtenus à l'aide d'un microscope électronique à transmission (MET). C'est cette

dernière méthode que nous avons utilisée dans cette étude et de plus amples renseignements peuvent être trouvés dans le paragraphe 2.7. On établit la relation liant $\ln(N_p)$ et $\ln(R_g/R_{pp})$ qui s'ordonne selon une droite dont la pente est la dimension fractale D_f et l'ordonnée à l'origine $\ln(k_f)$.

Le préfacteur k_f est généralement considéré comme un paramètre secondaire. Si la dimension fractale est généralement proche pour des agrégats issus de différents combustibles, le préfacteur est sensible à la nature du combustible. Un échantillon des préfacteurs issus de la littérature est présenté dans le Tableau 1-2.

Tableau 1-2 : Grandeurs fractales issues de la littérature (g : gaz, l : liquide, s : solide)

ALS : Angular Light Scattering SEM : Scanning Electron Microscopy TEM : Transmission Electron Microscopy

Auteurs	Methode	Point de mesure	Combustible	Type de flamme	Dr	kr
Kim et Choi (2003) (g)	ALS/TEM	Flamme	Méthane/air	Flamme laminaire de prémélange	1,8 - 1,95	-
Koylu et al. (1995a) (g)	ALS	Flamme	Hydrocarbures	Flamme de diffusion turbulente	1,86	2,25
Koylu et al. (1995a) (g)	ALS	Flamme	Acétylène - Ethylène	Flamme de diffusion laminaire	1,75	2,78
Sorensen et al. (1992) (g)	Light scattering		Méthane/oxygène		1,73	-
Sorensen et al. (1992) (g)	Light scattering		Butane		1,96 +/- 0,10	-
Colbeck et al (1997) (g)	SEM	Fumées	Butane	Flamme de diffusion	1,97	-
Cai et al. (1995) (g)	2D TEM		Méthane	Flamme de prémélange	1,74	2,45
Hu et al. (2003) (g)	2D TEM	Flamme	Ethylène	Flamme nonprémélangée turbulente	1,74 +/- 0,11	2,2 +/- 0,4
Hu et al. (2003) (g)	2D TEM	Flamme	Acétylène	Flamme nonprémélangée turbulente	1,82 +/- 0,06	1,9 +/- 0,3
Koylu et Faeth (1992) (g)	2D TEM	Fumées	Acétylène	Flamme de diffusion turbulente	1,79	-
Koylu et Faeth (1992) (g)	2D TEM	Fumées	Propylène	Flamme de diffusion turbulente	1,75	-
Koylu et Faeth (1992) (g)	2D TEM	Fumées	Ethylène	Flamme de diffusion turbulente	1,73	-
Koylu et Faeth (1992) (g)	2D TEM	Fumées	Propane	Flamme de diffusion turbulente	1,74	-
Koylu et Faeth (1992) (g)	2D TEM	Flamme	Hydrocarbures	Flamme de diffusion turbulente	1,67	2,33
Koylu et Faeth (1992) (g)	2D TEM	Flamme	Acétylène - Ethylène	Flamme de diffusion laminaire	1,66	2,35
Koylu et al. (1995b) (g)	2D TEM	Flamme	Acétylène	Flamme de diffusion turbulente	1,82	2,41
Koylu et al. (1997) (g)	2D TEM	Flamme	Ethylène	Flamme laminaire de prémélange	1,72	2,8
Matti Maricq et al. (2004) (g)	DMA-ELPI	Flamme	Ethylène	Flamme de prémélange riche	2,15 +/- 0,1	-
Sorensen et Føke (1996) (g)	2D TEM	Flamme	Acétylène	Flamme de diffusion laminaire	1,8	1,7
Colbeck et al. (1997) (l)	SEM	Fumées	Diesel	Flamme de diffusion	2,04	-
Colbeck et al. (1997) (l)	SEM	Fumées	Fuel oil	Flamme de diffusion	1,88	-
Koylu et Faeth (1992) (l)	2D TEM	Fumées	Toluène	Flamme de diffusion turbulente	1,73	-
Koylu et Faeth (1992) (l)	2D TEM	Fumées	n-Heptane	Flamme de diffusion turbulente	1,73	-
Koylu et Faeth (1992) (l)	2D TEM	Fumées	Isopropanol	Flamme de diffusion turbulente	1,7	-
Matti Maricq et al. (2004) (l)	DMA-ELPI	Sortie moteur	Diesel	Moteur diesel	2,3 +/- 0,1	-
Wentzel et al. (2003) (l)	2D TEM	-	Diesel	-	1,70 +/- 0,13	-
Colbeck et al. (1997) (s)	SEM	Fumées	Bois	Flamme de diffusion	2,35	-

1.3.3 GRANULOMETRIE ET DIAMETRES EQUIVALENTS DES AGREGATS

Les dispositifs de métrologie des aérosols sont nombreux, cependant peu sont spécifiquement développés pour l'étude des particules de suie. Ainsi, des granulomètres basés sur la mesure du diamètre de mobilité électrique ou du diamètre aérodynamique, sont utilisés pour étudier les suies mais sans prendre en considération la morphologie fractale de ces particules. Dans cette partie nous présentons les distributions granulométriques généralement rencontrées dans la littérature pour les suies et nous introduisons les différents diamètres équivalents employés afin de caractériser ces agrégats.

1.3.3.1 Distribution granulométrique des agrégats de suie

Si les suies émises par les moteurs automobiles et tout particulièrement les moteurs Diesel font l'objet de nombreuses études, très peu de données sont disponibles pour les agrégats de suie prélevés hors de flammes d'hydrocarbures. Cette relative pauvreté s'explique essentiellement par la difficulté inhérente au prélèvement des agrégats de suie dans et hors d'une flamme (cf. partie 2.4). Van Hulle et al. (2003), afin de déterminer l'indice de réfraction des particules de suie dans des flammes d'hydrocarbures, a établi les distributions granulométriques de particules de suie issues de flammes méthane-air et méthane-oxygène. Elles sont représentées sur la Figure 1-6.

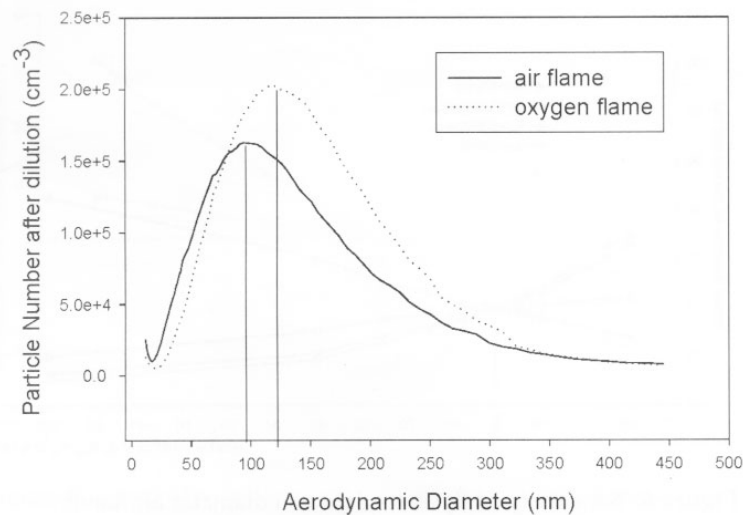


Figure 1-6 : Distribution granulométrique d'agrégats de suie de méthane (Van Hulle *et al.*, 2003)

On retrouve bien la forme d'une distribution log-normale couramment rencontrée ainsi qu'une répartition largement sub-micronique des agrégats dans la flamme. Barakat *et al.* (1997) de son côté a établi par microscopie électronique la distribution granulométrique d'agrégat dans le panache de fumée d'une flamme de diffusion turbulente de fioul domestique. L'auteur indique qu'une fonction de distribution de type log-normal représente de manière raisonnable les données expérimentales.

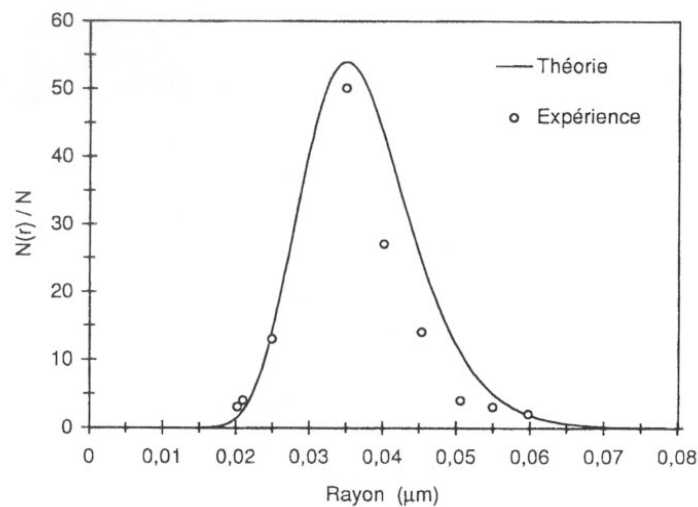


Figure 1-7 : Distribution granulométrique d'agrégat de suie de fioul (Barakat *et al.*, 1997)

De nombreux essais ont de plus été menés au sein de l'IRSN et du CEA sur la distribution granulométrique des particules de suie émises lors de la combustion, en milieu sur-ventilé (rapport air/combustible très supérieur à 1), de mélange de solvants (TBP-TPH), de câbles électriques et de matières plastiques (PMMA, PVC). Les résultats obtenus sur diverses installations à l'aide d'impacteur ANDERSEN ont systématiquement montré une très forte polydispersion ($\sigma_g > 3$) et une grande variabilité pour un même combustible. La variabilité des données expérimentales recueillies au sein de l'IRSN et du CEA et la disparité des informations disponibles sont à l'origine de ce travail sur la caractérisation hors de la flamme des particules émises lors d'un incendie.

1.3.3.2 Informations couramment utilisées pour caractériser un aérosol

Nous décrivons dans cette partie les diamètres et paramètres généralement utilisés en métrologie des aérosols (Baron et Willeke, 2001). Les dispositifs expérimentaux utilisés pour la détermination de ces diamètres étant présentés dans la partie 2 nous ne nous attarderons pas particulièrement sur les principes de mesure mais plutôt sur la définition des informations déterminées. En métrologie des aérosols les deux diamètres les plus couramment utilisés sont le diamètre aérodynamique et le diamètre de mobilité électrique. Si le premier rend compte du comportement aérodynamique de l'aérosol le second représente son comportement au sein d'un champ électrique.

- **Diamètre équivalent en volume D_{ev}**

Le diamètre équivalent en volume d'une particule, aussi appelé diamètre d'enveloppe équivalente, représente le diamètre d'une particule sphérique ayant le même volume que la particule considérée si toute la matière était regroupée. Dans le cas de particules non-sphériques, le diamètre équivalent en volume correspond au diamètre de la particule sphérique en conservant les vides internes. Ces espaces internes sont définis comme étant des régions vides à l'intérieur de la particule et qui sont isolées du gaz environnant. Le diamètre équivalent en volume peut-être défini à partir du nombre de particules primaires et du diamètre de celles-ci. Ce diamètre équivalent en volume s'avère utile lorsque l'on souhaite déterminer la masse des agrégats. Par définition nous avons :

$$D_{ev} = N_p^{1/3} \cdot D_{pp} \quad \text{Équation 1-3}$$

La masse de l'agrégat m_a étant alors telle que :

$$m_a = \frac{\pi}{6} \cdot \rho_{pp} \cdot D_{ev}^3 \quad \text{Équation 1-4}$$

où ρ_{pp} est la masse volumique des particules primaires (kg/m^3).

- **Diamètre équivalent en masse D_{em}**

Ce second diamètre équivalent est, très proche du diamètre équivalent en volume à la différence qu'il n'intègre pas les vides internes de la particule. Pour une particule ne présentant aucun vide interne le diamètre équivalent en masse est alors égal au diamètre équivalent en volume, en revanche pour une particule présentant de tels vides le diamètre de volume équivalent est alors supérieur au diamètre équivalent en masse.

- **Volume de matière de la particule V_m**

Le volume de matière de la particule V_m est le volume occupé par la totalité du matériau, solide ou liquide, composant la particule. On relie généralement ce volume au diamètre équivalent en masse de la particule, il vient alors :

$$V_m = \frac{\pi}{6} \cdot D_{em}^3 \quad \text{Équation 1-5}$$

- **Volume de la particule V_p**

Ce volume correspond au volume occupé à la fois par le matériau (V_m) et par les vides internes de la particule (V_{vides}). On le relie au diamètre équivalent en volume à partir de la relation suivante :

$$V_p = \frac{\pi}{6} \cdot D_{ev}^3 = V_m + V_{vides} \quad \text{Équation 1-6}$$

- **Masse volumique du matériau ρ_m**

La masse volumique du matériau est la masse volumique moyenne des matériaux solides et liquides composant la particule. Cette masse volumique est alors définie à partir de la masse de la particule (m_p) et du volume de matière (V_m), on a alors :

$$\rho_m = \frac{m_p}{V_m} = \frac{m_p}{\frac{\pi}{6} \cdot D_{em}^3} \quad \text{Équation 1-7}$$

Dans le cas de particules de suie, cette masse volumique correspond à la masse volumique des particules primaires ρ_{pp} .

- **Masse volumique de la particule ρ_p**

La masse volumique de la particule présente le même type de définition que la masse volumique du matériau sauf qu'elle intègre les vides internes de la particule. On la définit alors à partir du volume de la particule et donc du diamètre équivalent en volume :

$$\rho_p = \frac{m_p}{V_p} = \frac{m_p}{\frac{\pi}{6} \cdot D_{ev}^3} \quad \text{Équation 1-8}$$

Pour des particules présentant des vides internes, on a évidemment $\rho_p < \rho_m$ tandis que pour des particules sans vide interne l'égalité entre ces deux masses volumiques est vérifiée.

- **Force de traînée d'une particule**

Pour une particule de diamètre en volume équivalent D_{ev} , évoluant à la vitesse v dans un gaz de viscosité μ on définit la force de traînée $F_{traînée}$ par :

$$F_{traînée} = \frac{3 \cdot \pi \cdot \mu \cdot v \cdot D_{ev}}{C_c(D_{ev})} \quad \text{Équation 1-9}$$

On voit apparaître dans cette définition un facteur de correction, le facteur de correction de Cunningham $C_c(D_{ev})$ qui permet de prendre en considération le régime d'écoulement présent autour de la particule considérée.

- **Régime d'écoulement**

Nous venons de voir que la forme d'une particule peut être définie à partir de la force de traînée de celle-ci. Il convient alors de définir les régimes d'écoulement en présence qui dépendent du diamètre de la particule considérée et de son nombre de Knudsen associé.

- Nombre de Knudsen K_n

Le régime d'écoulement du gaz autour d'une particule est déterminé par le rapport du libre parcours moyen de ce gaz sur le rayon de la particule. Ce rapport, nommé nombre de Knudsen, permet de définir le régime d'écoulement en présence :

$$K_n = \frac{2\lambda}{d_p} \quad \text{Équation 1-10}$$

Avec :

$$\lambda = \lambda_R \left(\frac{101,3}{P} \right) \left(\frac{T}{293,15} \right) \left(\frac{1 + \frac{110}{293,15}}{1 + \frac{110}{T}} \right) : \text{libre parcours moyen} \quad \text{Équation 1-11}$$

λ_R : libre parcours dans les conditions normales de température et pression (293,15 K et 101,3 kPa)

P : pression en kPa

T : température en K

d_p : diamètre géométrique de la particule

Le *régime continu* est défini pour des $K_n \ll 1$, on peut alors considérer le gaz entourant les particules comme un fluide continu. A l'inverse pour $K_n \gg 1$ on parle de *régime moléculaire libre*, le régime d'écoulement est alors décrit comme étant une succession de collision entre le gaz environnant et les particules. Pour le régime intermédiaire de valeurs de K_n ($0,1 < K_n < 10$), on parle de *régime de transition*. A partir de ce nombre de Knudsen on peut alors définir le facteur de correction de Cunningham C_c .

- Facteur de correction de Cunningham C_c

Le facteur de correction de Cunningham fait l'objet de nombreuses études et il est généralement défini par la relation suivante :

$$C_c = 1 + K_n \left(\alpha + \beta \exp\left(-\frac{\gamma}{K_n}\right) \right) \quad \text{Équation 1-12}$$

Les paramètres α , β et γ étant des constantes empiriques nous présentons ici les valeurs issues de Baron et Willeke (2001) :

$$C_c = 1 + K_n \left(1,142 + 0,558 \exp\left(-\frac{0,999}{K_n}\right) \right) \quad \text{Équation 1-13}$$

Selon le régime d'écoulement considéré (continu, transition ou moléculaire libre) on peut simplifier plus ou moins ce facteur de correction et par la même occasion simplifier l'expression de la force de traînée des particules (cf. Tableau 1-3).

Tableau 1-3 : Synthèse des nombres de Knudsen, du facteur de Cunningham et de la force de traînée

Régime	Continu	Transition	Moléculaire
d_p vs 2λ	$d_p \gg 2\lambda$	$d_p \approx 2\lambda$	$d_p \ll 2\lambda$
K_n	$K_n \ll 1$	$K_n \approx 1$	$K_n \gg 1$
C_c	1	$C_c = 1 + K_n \left(1,142 + 0,558 \exp\left(-\frac{0,999}{K_n}\right) \right)$	$1 + K_n(1,142 + 0,558)$
$F_{\text{traînée}}$	$3 \cdot \pi \cdot \mu \cdot v \cdot D_{ev}$	$\frac{3 \cdot \pi \cdot \mu \cdot v \cdot D_{ev}}{C_c(D_{ev})}$	$\frac{3 \cdot \pi \cdot \mu \cdot v \cdot D_{ev}}{1 + K_n(1,142 + 0,558)}$

- **Facteur de forme dynamique χ**

Le dernier paramètre couramment employé pour définir la forme d'une particule est le facteur de forme dynamique χ . Ce paramètre permet de représenter l'effet de la forme d'une particule sur la traînée de celle-ci. Ce facteur de forme est défini comme étant le rapport entre la force de résistance $F_{\text{traînée}}^P$ (la force de traînée) sur la particule non-sphérique considérée et la force de résistance $F_{\text{traînée}}^{ev}$ exercée sur la particule sphérique de volume équivalent, lorsque les deux se déplacent à la même vitesse relative par rapport au gaz :

$$\chi = \frac{F_{trainée}^p}{F_{trainée}^{ev}} \quad \text{Équation 1-14}$$

Pour des particules de forme irrégulière le facteur de forme est supérieur à 1 et pour des particules sphériques il est logiquement de 1.

1.3.3.3 Diamètre de mobilité électrique équivalent

Afin de définir le diamètre de mobilité électrique D_m il convient d'introduire la mobilité électrique. La mobilité électrique correspond à la vitesse qu'acquiert une particule de charge $N.e$ dans un champ électrique E . Ainsi la mobilité électrique Z_p correspond à :

$$Z_p = \frac{v_{TE}}{E} = NeB = \frac{NeC_c}{3\pi\mu D_m} \quad \text{Équation 1-15}$$

Avec :

- v_{TE} : vitesse terminale électrostatique
- E : champ électrique
- N : nombre de charges élémentaires sur la particule
- e : charge élémentaire ($1,6 \cdot 10^{-19}$ C)
- μ : viscosité du gaz
- B : mobilité dynamique
- C_c : facteur de correction de Cunningham
- D_m : diamètre de mobilité électrique

Le diamètre de mobilité électrique équivalent D_m est alors défini comme étant le diamètre d'une particule sphérique ayant la même mobilité électrique Z_p que la particule considérée. Nous voyons apparaître dans la relation (1-15), la mobilité dynamique B qui caractérise les forces exercées par le gaz porteur sur la particule en mouvement :

$$D_m = \frac{C_c}{3\pi\mu B} \quad \text{Équation 1-16}$$

1.3.3.4 Diamètre aérodynamique équivalent

Le second diamètre couramment utilisé en métrologie des aérosols est le diamètre aérodynamique. Il est déterminé généralement à l'aide d'un impacteur et dans notre étude un impacteur électrique à basse pression (cf. paragraphe 2.6.2) a été utilisé. Dans un impacteur les particules sont classées selon leur temps de relaxation τ qui est tel que :

$$\tau = m_p \cdot B \quad \text{Équation 1-17}$$

Avec :

- m_p : masse de la particule
- B : mobilité dynamique précédemment définie

Le diamètre aérodynamique correspond alors au diamètre d'une particule sphérique, de masse volumique unitaire $\rho_0 = 1 \text{ g/cm}^3$ et ayant la même vitesse de chute que la particule considérée. Pour une particule sphérique de masse volumique ρ_0 , le diamètre aérodynamique D_a est alors tel que :

$$D_a = \sqrt{\frac{18 \cdot \mu \cdot \tau}{\rho_0 \cdot C_c}}$$

Équation 1-18

1.3.3.5 Synthèse des diamètres utilisés pour caractériser un agrégat de suie

Afin de saisir les subtilités rencontrées lors de l'étude des particules de suie nous effectuons dans ce paragraphe une synthèse des diamètres présentés précédemment afin de caractériser un agrégat. La Figure 1-8 présente un agrégat ainsi que les diamètres le définissant, le diamètre de particule primaire D_{pp} , le diamètre aérodynamique équivalent D_a , le diamètre équivalent en volume D_{ev} , le diamètre de mobilité électrique équivalent D_m , le diamètre de giration D_g et le diamètre de l'agrégat $D_{agrégat}$ (qui correspond au diamètre de la sphère enveloppant l'agrégat). La détermination des diamètres aérodynamique, de mobilité électrique et de l'agrégat repose sur les travaux de Rogak et Flagan (1990) qui lient ces différentes grandeurs au diamètre de giration. Ces relations représentent un point crucial de notre méthode d'inversion des données pour la détermination de l'indice de réfraction ; nous reviendrons sur cet élément dans le paragraphe 5.6.

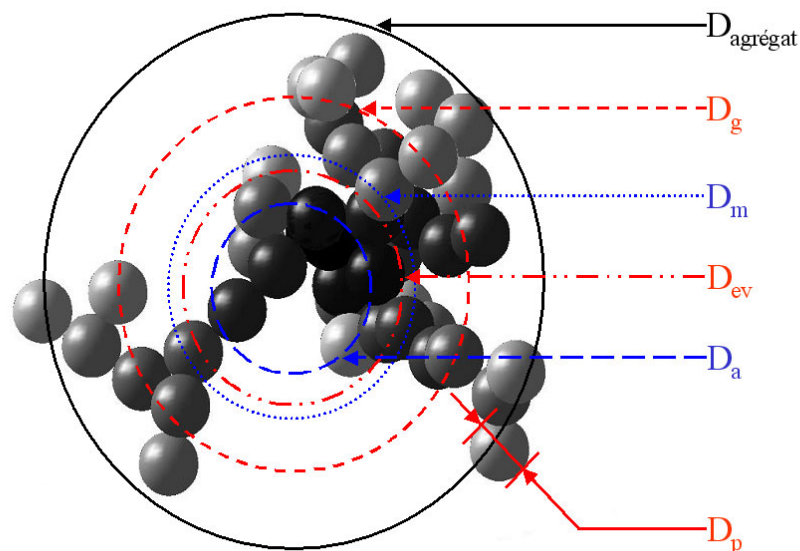


Figure 1-8 : Diamètres caractéristiques d'un agrégat ($D_p < D_{ev} < D_a < D_m < D_g < D_{agrégat}$)

On voit à travers cette figure la difficulté de comparer les diamètres équivalents d'un tel type d'agrégat et la nécessité de considérer la nature fractale particulière des agrégats de suie lors de l'analyse des informations apportées par les différents dispositifs granulométriques employés.

2 DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL

2.1 INTRODUCTION

Dans cette partie, sont présentées les sources de production et l'instrumentation utilisée afin de caractériser les particules de suie. Nous présenterons tout d'abord les combustibles et les dispositifs utilisés pour les générer. Les dispositifs de prélèvement et d'analyse seront ensuite décrits. Il s'agit principalement du système de dilution FPS (Fine Particle Sampler), des granulomètres SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) et ELPI (Electrical Low Pressure Impactor), du TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) et du protocole de détermination de la concentration massique par pesée. Le dernier point portera sur le dispositif utilisé pour effectuer les prélèvements pour l'analyse d'images de particules obtenues par microscopie électronique (MET) et sur la méthode de détermination des caractéristiques fractales (dimension fractale et préfacteur) à partir de ces clichés.

2.2 LA VEINE AERAIQUE

Afin de reproduire des conditions réelles d'incendie dans un espace confiné, un banc expérimental a été développé et mis en place au cours de cette thèse. Ce banc, dénommé BANCO pour BANc de COlmatage, est issu d'une installation antérieure dédiée à l'étude du comportement en condition d'incendie des éléments de filtration à très haute efficacité (THE). Cette installation, utilisée tout au long de cette étude, est représentée sur la [Figure 2-1](#). Elle se compose d'un foyer d'environ 1 m³ surmonté d'une conduite de ventilation calorifugée. L'air entre naturellement par le bas du foyer et la conduite surmontant le foyer comporte en fin de ligne des filtres THE qui limitent les rejets de particules de suie et dont le comportement est étudié au cours de l'essai. Le débit de ventilation dans l'installation est imposé à l'aide d'un système d'extraction et un jeu de vannes permet d'ajuster ce débit sur une gamme allant de 50 à 500 m³/h. Le débit présent dans les lignes de ventilation est déterminé en mesurant la perte de charge générée par deux diaphragmes correspondant à deux gammes de débit. La ligne de ventilation est maintenue en température à l'aide d'un réseau de cordons chauffants. La température en différents points de l'installation est mesurée à l'aide d'un réseau de thermocouples. Pour les essais concernant des liquides et des solides, une balance de précision (METTLER TOLEDO) est placée dans le foyer et permet de mesurer en temps réel la perte de masse du combustible utilisé. Des analyseurs de CO, de CO₂, d'O₂ et un capteur d'humidité sont également utilisés sur l'installation afin de caractériser les émissions des différents combustibles. L'ensemble des informations expérimentales (température, humidité, concentrations en CO, CO₂, O₂, perte de masse, débit de ventilation) est contrôlé et enregistré à l'aide d'un logiciel développé sous un environnement LABVIEW. Nous représentons de plus sur cette figure le dispositif EXSCA (EXTinction-SCAttering) qui nous permet d'établir les propriétés optiques (coefficient d'extinction et de diffusion vertical-vertical) des particules de suie. De plus amples informations sur ce dispositif et sur son principe peuvent être trouvées dans le chapitre 5.

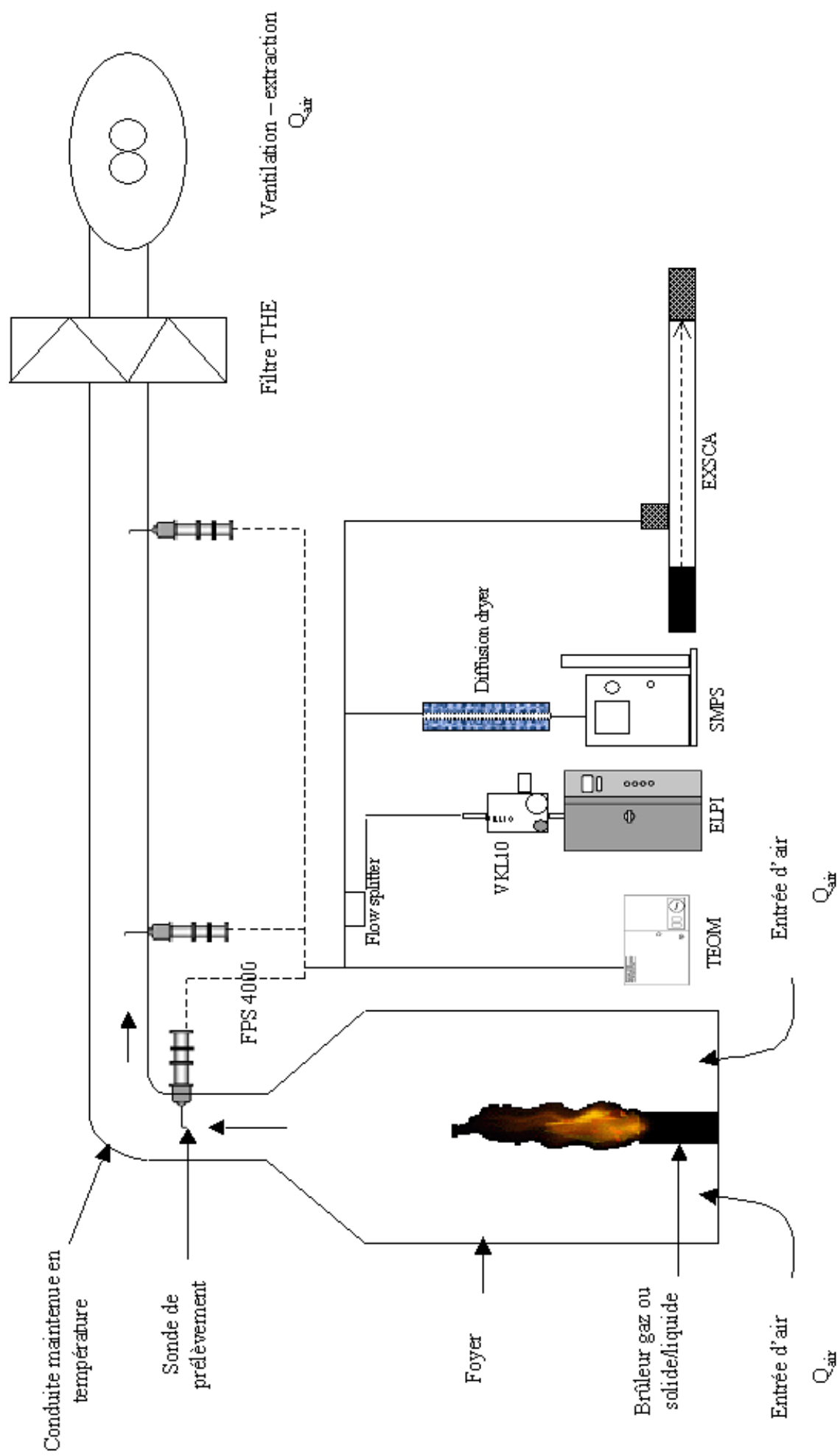


Figure 2-1 : Schéma descriptif du dispositif expérimental de caractérisation de l'aérosol d'incendie : installation BANCO (BANC de COImatage)

2.3 LES FLAMMES ETUDIÉES

Notre travail a tout d'abord porté sur une flamme d'acétylène dite de "référence". Elle nous a permis de valider notre installation car elle a été largement étudiée (Köylü *et al.*, 1991b, 1992, 1994), certaines de ses propriétés sont donc déjà connues. Ensuite notre étude s'est portée sur des combustibles et des configurations plus proches de situations réelles d'incendie. Nous avons ainsi étudié les particules produites par la combustion d'un liquide (le toluène) et par un solide représentatif de la famille des plastiques (PMMA : PolyMethyl MethAcrylate).

2.3.1 RAPPEL SUR LES FLAMMES DE DIFFUSION DANS LES INCENDIES

Les flammes rencontrées lors des situations d'incendie sont des flammes de diffusion. La position du front de flamme est, à l'inverse des flammes de prémélange, déterminée principalement par les phénomènes d'inter-diffusion du combustible et du comburant, qui ne se trouvent pas mélangés au préalable. Sur la [Figure 2-2](#) sont représentées une flamme jet, par exemple celle qui est générée par un briquet et une flamme de nappe liquide. La flamme jet est composée d'un jet de gaz qui possède une vitesse initiale forte et qui entraîne autour de lui une certaine quantité d'air environnant. Après allumage on obtient entre ce gaz et cet air une flamme de diffusion. Dans le cas d'un feu de liquide et de solide, on parle encore une fois de flamme de diffusion mais cette fois-ci c'est une partie de la chaleur dégagée par la combustion (rayonnement + convection) qui vaporise le combustible. Celui-ci est émis sans vitesse initiale, et l'entraînement des gaz de combustion est dû aux forces de gravité du fait de la température élevée des gaz. Dans notre étude nous avons donc cherché à étudier les deux situations : 1- la flamme de diffusion générée par un jet de gaz dans l'air. Elle nous a permis de valider notre installation. 2- la combustion d'un liquide ou d'un solide.

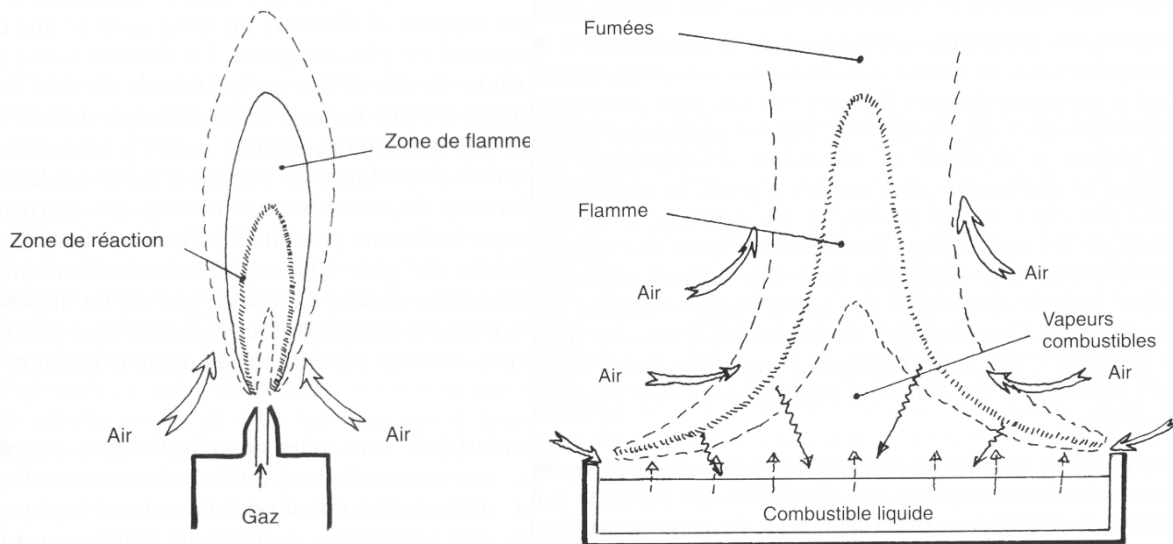


Figure 2-2 : Schéma descriptif d'une flamme de briquet et d'un feu de nappe

2.3.2 COMBUSTIBLES ET BRULEURS ETUDIES

2.3.2.1 Le brûleur gaz de référence

La flamme de référence utilisée dans cette étude correspond au cas étudié par Köylü *et al.* (1991b). C'est une flamme jet de diffusion turbulente, influencée par les effets de gravité car la vitesse de sortie du gaz est faible. Le brûleur associé à cette flamme de référence est représenté sur la Figure 2-3. Le combustible passe tout d'abord à travers un nid d'abeille afin d'uniformiser le flux puis à travers deux étages successifs de billes d'acier (de 5 puis de 3 mm de diamètres) afin de supprimer les perturbations éventuelles. La flamme s'attache alors à la sortie du brûleur en utilisant l'air environnant comme comburant. Les flammes présentées sur la Figure 2-3 correspondent à différentes conditions de ventilation (de 100 m³/h à 450 m³/h). Une étude menée sur la hauteur de flamme a montré que celle-ci était faiblement influencée par la ventilation. En effet si les débits de ventilation sont importants ils sont établis dans un volume (le foyer) lui aussi important (environ 1 m³). Les vitesses d'entraînement d'air ne sont donc pas imposées par ce débit de ventilation mais bien par la flamme elle-même. Le débit de combustible appliqué dans notre étude est de 5,6 L/min d'acétylène. Ce débit impose une vitesse de sortie du gaz faible (0,05 m/s) et un nombre de Reynolds lui aussi faible (250). Malgré ce nombre de Reynolds très inférieur à celui d'une flamme turbulente les photographies de cette flamme, présentées sur la Figure 2-3, soulignent son aspect turbulent. Cette nature turbulente s'explique par le fait que la combustion modifie les fluctuations turbulentes de la vitesse, le dégagement de chaleur provoque une expansion des gaz, qui elle-même entraîne une augmentation de la vitesse de ceux-ci. La structure de la flamme est très influencée par les effets de gravité.

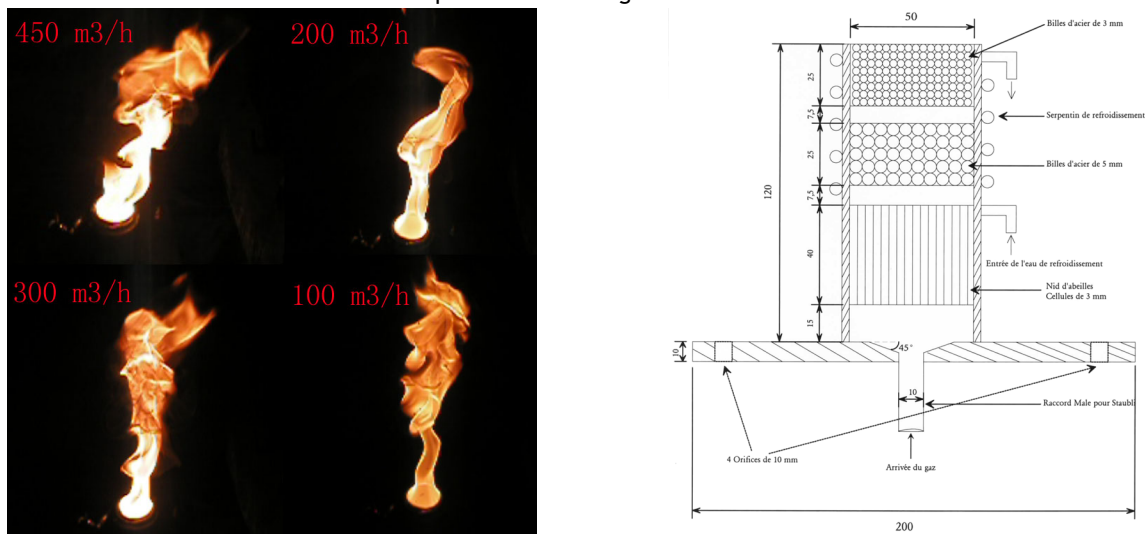


Figure 2-3 : Flammes d'acétylène dans différentes configurations et schéma descriptif du brûleur

2.3.2.2 Les combustibles et les brûleurs utilisés pour générer un feu de liquide ou de solide

Outre le gaz de référence (acétylène), nous avons utilisé deux autres combustibles : le toluène et le PMMA. Le premier combustible s'est imposé comme combustible de référence. Le toluène a été choisi d'une part pour sa littérature conséquente mais aussi afin de permettre une transition entre la flamme d'acétylène de type jet et celle de PMMA typique d'un incendie. Le choix du PMMA a été dicté par la représentativité de ce

combustible vis à vis d'une installation nucléaire. En effet dans les installations nucléaires, et tout particulièrement les laboratoires et usines, le PMMA est le composant majoritaire des boîtes à gants.

Pour le toluène, combustible liquide, la combustion s'est opérée dans un récipient cylindrique de 15 cm de diamètre et 30 cm de haut pouvant contenir un litre de combustible. Ce récipient en acier inoxydable est placé sur une balance afin de mesurer en temps réel la perte de masse de combustible. Pour le combustible solide, le PMMA employé sous forme de granulés cubique d'environ 2 mm d'arêtes, un récipient carré de 30 cm de coté pour 15 cm de haut a été utilisé. Nous présentons sur la [Figure 2-4](#) les deux flammes produites par ces deux combustibles : à gauche le toluène et à droite le PMMA pour différentes conditions de ventilation. Tout comme pour l'acétylène, une étude préliminaire a montré que ces flammes étaient peu sensibles aux conditions de ventilation imposées dans le foyer.

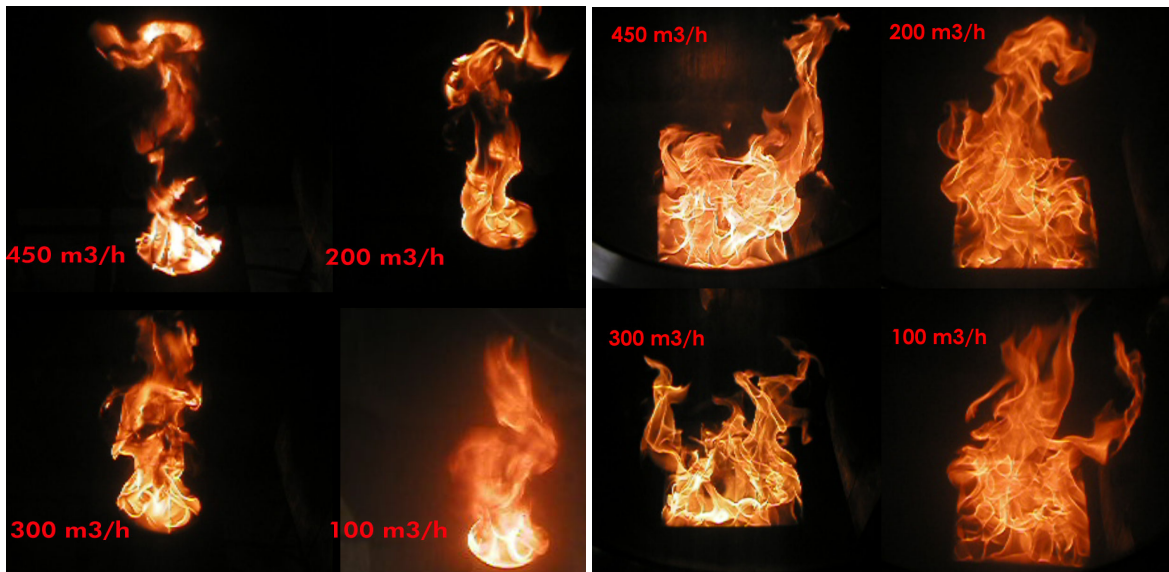


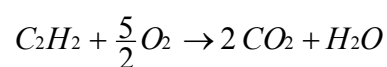
Figure 2-4 : Flammes de toluène (à gauche) et flammes de PMMA (à droite) pour différentes configurations

2.3.2.3 Calcul de la richesse globale du milieu étudié et caractéristiques des flammes des différents combustibles

Nous présentons ici les grandeurs caractéristiques des différentes flammes (longueur de flamme, temps de résidence, nombre de Froude et richesse globale). Un paramètre fondamental régissant la combustion est la richesse. Il est défini par :

$$\Phi = \frac{\left(\frac{m_{\text{combustible}}}{m_{\text{air}}}\right)_{\text{expérience}}}{\left(\frac{m_{\text{combustible}}}{m_{\text{air}}}\right)_{\text{stoechio}}} = S \cdot \left(\frac{m_{\text{combustible}}}{m_{\text{air}}}\right)_{\text{expérience}} \quad \text{Équation 2-1}$$

Pour exemple nous allons étudier le cas de l'acétylène. Si on considère la réaction de combustion idéale de l'acétylène (produisant donc exclusivement du dioxyde de carbone et de l'eau) nous avons l'équation - bilan suivante :



On introduit le rapport stœchiométrique massique S qui est tel que :

$$S = \left(\frac{m_{air}}{m_{combustible}} \right)_{stoechio} \quad \text{Équation 2-2}$$

ou encore exprimé en nombre de moles et à partir de l'oxygène présent dans l'air il vient :

$$S = \left(\frac{\frac{n_{O_2} \cdot M_{air}}{\% O_2 \text{ dans l'air}}}{n_{combustible} \cdot M_{combustible}} \right)_{stoechio} \quad \text{Équation 2-3}$$

Où n et M désignent respectivement le nombre de moles et la masse molaire, pour l'acétylène nous avons :

$$M_{combustible} = 26 \text{ g/mol}$$

$$n_{combustible} = 1 \text{ mole}$$

$$n_{O_2} = 5/2 \text{ moles, } M_{air} = 28,8 \text{ g/mol et } \% O_2 \text{ dans l'air} = 21 \%$$

Ainsi d'après son équation-bilan de combustion nous avons pour l'acétylène :

$$S = 13,19 \quad \text{Équation 2-4}$$

On parle alors de mélange riche en combustible lorsque la richesse est supérieure à 1 et d'un mélange pauvre en combustible lorsque la richesse est inférieure à 1. Cette richesse globale permet de prédire la ventilation des feux dans un milieu confiné et est donc ici particulièrement utile. Dans notre étude la richesse est donc calculée à l'aide de deux paramètres mesurés expérimentalement ; le débit d'air de ventilation qui nous donne la masse d'air en présence et le débit ou la perte de masse de combustible qui nous apporte la masse de combustible mise en jeu au cours de l'essai considéré. Nous présentons dans le Tableau 2-1 les caractéristiques des combustibles utiles à la suite de l'étude. Les calculs des données morphologiques des différentes flammes (longueur de flamme, taux de dégagement de chaleur et temps de résidence) sont effectués à partir des approches présentées dans l'annexe 1.

Tableau 2-1 : Caractéristiques physiques des flammes et des combustibles employés dans l'étude (a : approche de Zukoski, b : approche de Delichatsios, cf. annexe 1)

Combustible (nature)	Formule chimique	Masse molaire (g/mol)	\dot{m}_f (mg/s)	Diamètre brûleur (mm)	ΔH_c (kJ/g)	\dot{Q}_f (kW)	Richesse ϕ	Longueur de flamme L_f (m)	Temps de résidence t_r (ms)
Acétylène (gaz)	C ₂ H ₂	26	110	50	50	5,6	0,01 - 0,07	0,411 ^a 0,399 ^b	321
Toluène (liquide)	C ₇ H ₈	92	160	150	42	6,8	0,01 - 0,15	0,340 ^a 0,390 ^b	292
PMMA (solide)	C ₅ H ₈ O ₂	100	1000	340	26	26	0,04 - 0,4	0,560 ^a 0,480 ^b	301

2.4 PRELEVEMENT ET DILUTION DE L'AEROSOL

La principale difficulté d'un prélèvement est la représentativité de l'échantillon. Cette interrogation est tout particulièrement justifiée pour les gaz et les particules qui sont prélevés dans les flammes ou dans leur panache. En effet dans ce cas les gaz, ou les particules, sont produits dans des conditions de température, d'humidité et parfois de pression très différentes des conditions ambiantes. Les dispositifs métrologiques employés afin de caractériser les particules de suie étant essentiellement développés pour l'analyse d'échantillons à température et pression ambiantes, on conçoit toute la nécessité de diluer le prélèvement. Il convient de plus, à l'aide de ce dispositif, de stopper ou rapidement réduire les phénomènes de condensation et/ou de coagulation susceptibles de transformer les particules lorsqu'elles passent des conditions de flamme aux conditions ambiantes. La dilution est alors un moyen efficace de remédier à ces différentes difficultés et afin d'appréhender l'influence d'un tel dispositif de prélèvement sur les particules de suie, nous allons dans cette partie en donner la description détaillée.

2.4.1 DIFFICULTES POSEES LORS DU PRELEVEMENT DES SUIES

Depuis une quinzaine d'années de nombreuses études ont été menées sur la caractérisation des particules émises en sortie des lignes d'échappement automobiles mais aussi dans des flammes d'hydrocarbures. Dans de nombreux cas le système de prélèvement et de dilution n'est pas toujours clairement défini et peut donner lieu à une interprétation erronée des résultats car les concentrations des particules ultrafines ($D_p < 100\text{nm}$) et des nanoparticules ($D_p < 50\text{ nm}$) sont très sensibles à la méthode de prélèvement et de dilution. Abdul-Khalek *et al.* (1999), Mikkanen *et al.* (2001) et Lyrranen *et al.* (2004) ont souligné la nécessité de diluer les prélèvements de particules de suie mais aussi les difficultés inhérentes au prélèvement et à la dilution d'un aérosol fortement concentré, sous haute température et dans un milieu saturé en humidité et en vapeurs d'imbrûlés. Pour la dilution, trois paramètres fondamentaux sont à maîtriser (Abdul-Khalek *et al.*, 1999) : le temps de résidence, le facteur de dilution et la température de dilution.

L'influence du temps de résidence, si elle est prédominante, dépend des conditions de prélèvement de l'aérosol. En effet ce temps de résidence agit comme un temps d'attente favorisant la condensation, dépendant elle-même de la quantité d'espèces imbrûlées, d'acide sulfurique et d'eau disponible, quantité dépendant elle aussi du facteur de dilution. La température et le facteur de dilution sont aussi des paramètres très influents pour les phénomènes de nucléation, celle-ci est d'autant plus importante que les taux et la température de dilution sont faibles.

Une autre difficulté intervient lors du prélèvement d'un aérosol en forte concentration et concerne les phénomènes de coagulation dans les lignes de prélèvement. En effet lorsque la concentration (en particules par unité de volume) est importante, le nombre et la distribution granulométrique des particules peuvent évoluer par coagulation. Le Tableau 2-2, d'après Renoux et Boulaud (1998), montre une évolution caractéristique du nombre et du diamètre d'un aérosol monodispersé en fonction de la concentration initiale lorsque seule la coagulation intervient.

Tableau 2-2 : Evolution par coagulation au cours du temps d'un aérosol monodispersé (d'après Renoux et Boulaud, 1998)

Concentration initiale n_0 (p.cm ⁻³)	Temps au bout duquel le diamètre a doublé	Temps au bout duquel la concentration a diminué de moitié
10^{14}	140 μ s	20 μ s
10^{12}	$1,4 \times 10^{-2}$ s	2×10^{-3} s
10^{10}	1,4 s	0,2 s
10^8	140 s	20 s
10^6	4 h	33 min
10^4	16 jours	55 h
10^2	4 ans	231 jours

On voit clairement à travers ce tableau que, dans notre cas, les phénomènes de coagulation peuvent être présents dans la ligne de prélèvement pour des concentrations en particules supérieures à 10^{10} p.cm⁻³. En effet, si on imagine que le temps de transit de l'échantillon dans la sonde est de l'ordre de la seconde ou la dizaine de seconde, alors il ne faut pas que la concentration initiale soit supérieure à 10^{10} p.cm⁻³.

Cette concentration, si elle semble importante, est cependant couramment atteinte dans les flammes et peut être atteinte dans les lignes de ventilation telle que celle présente sur notre installation. Un soin tout particulier a donc été apporté au choix du système de dilution et à la méthode de prélèvement des particules de suie émises dans notre installation. Nous présentons dans les paragraphes suivants le système de dilution sélectionné et sa validation expérimentale.

2.4.2 PRINCIPE DU SYSTEME DE DILUTION DEKATI FPS 4000

Le dispositif choisi est le Fine Particle Sampler 4000 développé par la société DEKATI. Il est constitué de deux étages de dilution et son principe de fonctionnement est représenté sur la [Figure 2-5](#).

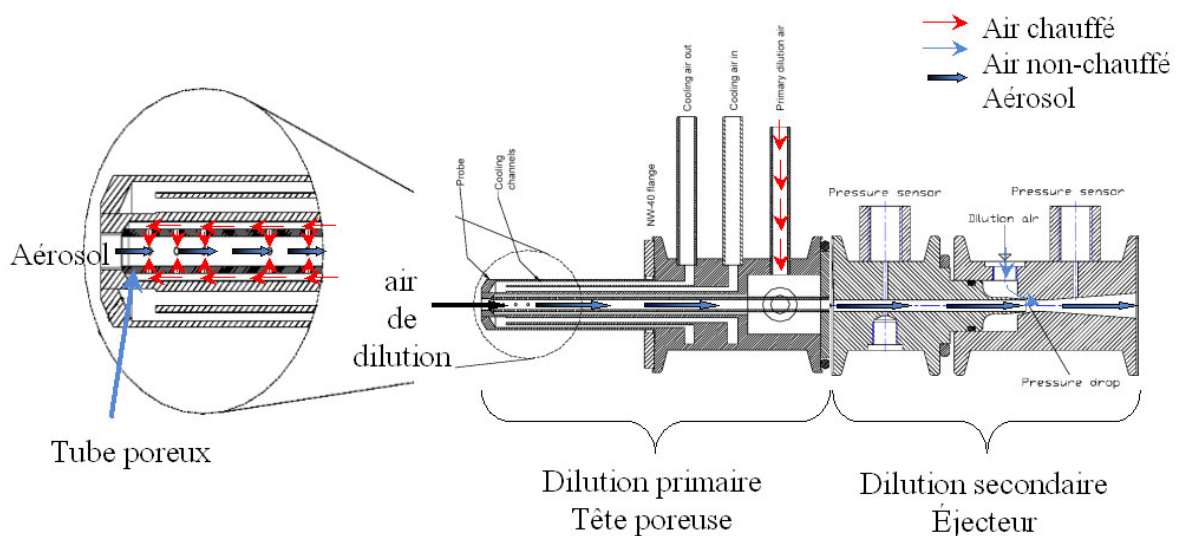


Figure 2-5 : Schéma de principe du système de dilution FPS 4000 - DEKATI

La première dilution effectuée à l'aide d'un tube poreux est une dilution à chaud. L'air préalablement chauffé est mélangé à l'aérosol à travers les orifices du tube poreux. Cette dilution primaire est indispensable car elle permet de "dé-saturer" le prélèvement et évite la condensation de la vapeur d'eau au cours de la dilution secondaire. Elle permet de plus de figer chimiquement l'aérosol. La seconde dilution repose sur un système de dilution de type éjecteur et impose le débit de prélèvement du dispositif. Cette aspiration est possible à l'aide d'un venturi, l'air injecté en amont du venturi génère une différence de pression entre l'entrée et la sortie. L'air injecté n'est pas chauffé et permet d'amener l'aérosol à une température proche de la température ambiante. Ces deux dilutions successives fournissent un facteur de dilution (Dilution Ratio) compris entre 10 et 100 et adapté à des températures de prélèvement pouvant atteindre 300°C.

2.4.3 VALIDATION DU SYSTEME DE DILUTION

Le système de dilution étant le point de départ de notre étude nous avons jugé indispensable de valider ce dispositif de prélèvement. Dans un premier temps, une étude préliminaire, à l'aide d'un gaz (hélium) et d'un aérosol étalon (DiOctyl Sebacate DOS), a porté sur la validité des valeurs calculées du facteur de dilution. Ensuite l'étude de l'influence de la dilution sur les caractéristiques des échantillons a été menée sur un aérosol d'agrégats de suie d'acétylène.

En premier lieu nous avons étudié le comportement du système de dilution pour un gaz et pour un aérosol de référence. Cette première étape nous a permis de valider le calcul du facteur de dilution. Le gaz sélectionné pour cette étude est l'hélium et l'aérosol étalon est composé de gouttes de DOS. Les concentrations amont et aval de la dilution sont déterminées à l'aide d'un spectromètre de masse pour le gaz et à l'aide d'un compteur de particules (CNC 3022A TSI) pour l'aérosol. Les facteurs de dilution calculés en comparant les concentrations mesurées avant et après dilution sont alors comparés aux facteurs de dilution estimés par le système de dilution. Les résultats de cette étude sont présentés sur la [Figure 2-6](#).

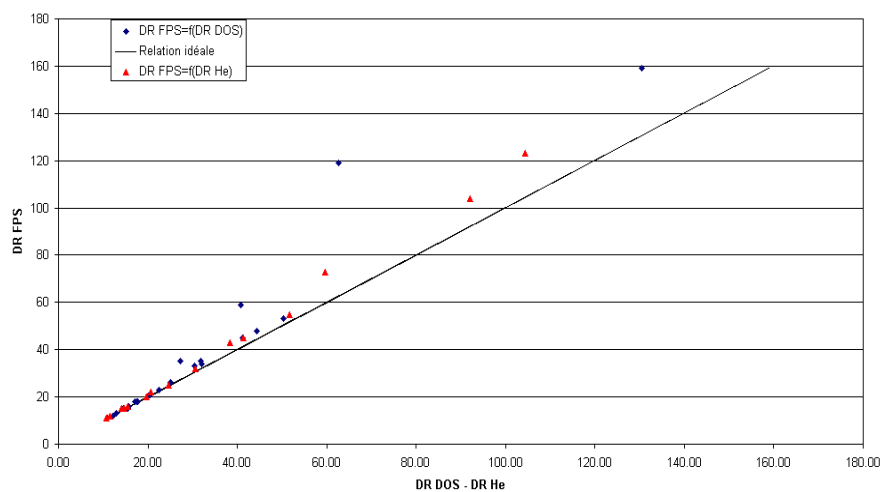


Figure 2-6 : Validation expérimentale du dispositif de dilution FPS 4000 (DR FPS : facteur de dilution calculé par le dispositif FPS, DR DOS -DR He : facteur de dilution mesuré expérimentalement)

On observe une bonne cohérence entre les facteurs de dilution calculés par le dispositif et les facteurs de dilution déterminés expérimentalement. Cette cohérence se confirme tout particulièrement pour des facteurs de dilution inférieurs à 50. Au-delà, les débits injectés sont plus difficilement maîtrisables et les

débites de prélèvement en entrée du dispositif étant très faibles il semble difficile de les maîtriser. Suite à cette validation nous avons étudié l'influence de cette dilution sur la distribution granulométrique d'un aérosol d'agrégats de suie. Pour cela nous avons déterminé la distribution granulométrique de l'aérosol d'agrégats de suie issus de la combustion d'acétylène à l'aide d'un granulomètre pour différents facteurs de dilution (Figure 2-7).

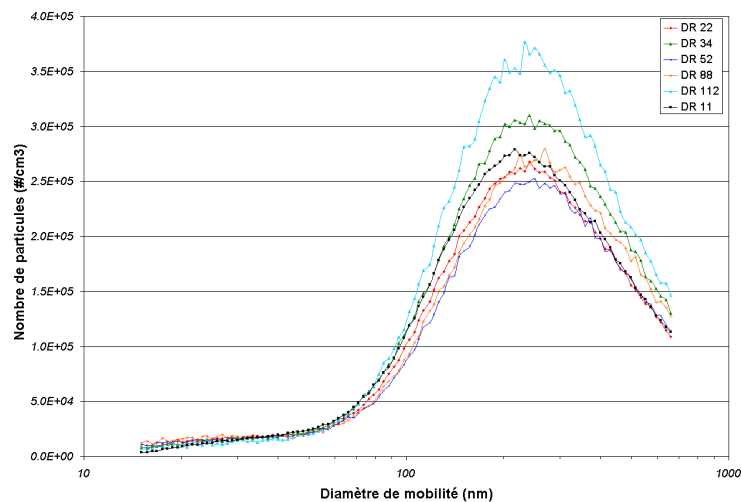


Figure 2-7 : Influence de la dilution sur la distribution granulométrique d'un aérosol de suie (la légende contient les différents facteurs de dilution appliqués)

On voit sur la Figure 2-7 que la dilution n'induit pas de modification fondamentale de ces distributions. L'écart-type ainsi que le mode de ces distributions ne sont pas particulièrement sensibles au facteur de dilution. La Figure 2-8 présente ensuite l'évolution de la concentration numérique, mesurée à l'aide du compteur de particules (CNC 3022A TSI), en fonction du facteur de dilution. Nous présentons également sur cette figure une fonction idéale de dilution déterminée à partir de la concentration mesurée pour le plus faible facteur de dilution (DR=11) qui est alors divisée par la valeur calculée du facteur de dilution considéré. L'incertitude sur le facteur de dilution présentée sur la Figure 2-8 est une "donnée constructeur" et est de l'ordre de 10 %. Le très bon accord entre les valeurs observées et calculées montre qu'il n'y a pas de pertes importantes de particules dans la ligne de prélèvement.

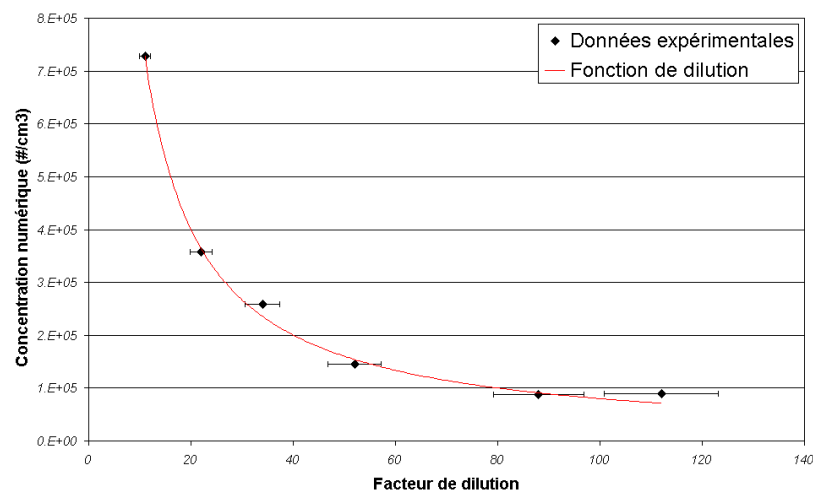


Figure 2-8 : Evolution de la concentration de suie en fonction du facteur de dilution (la fonction de dilution est la valeur de la concentration la plus importante pondérée par les valeurs du taux de dilution)

2.5 ANALYSE PONDERALE DE L'AEROSOL DE COMBUSTION

2.5.1 INTERET DE L'ANALYSE PONDERALE DES PARTICULES DE SUIE

Une grandeur particulièrement utile est la concentration massique. L'intérêt majeur de sa mesure directe est d'apporter une information sur la masse volumique des particules de suie. En effet les dispositifs granulométriques, qui seront présentés dans la partie 2.6, permettent eux aussi de déterminer la concentration massique. Cette détermination n'est cependant pas directe et passe par une conversion du nombre de particules en concentration massique grâce à la connaissance de la masse volumique. Celle-ci, si elle est bien connue et prévisible pour des particules sphériques, est dans le cas d'agrégats moins évidente à déterminer. La mesure directe de la concentration massique par pesée permet alors de vérifier la validité des valeurs de masse volumique employées dans les granulomètres. L'avantage des dispositifs d'analyse pondérale des particules de suie est donc qu'il n'est pas nécessaire de connaître la forme des agrégats de suie. Nous présentons dans ce paragraphe les différentes informations apportées par l'analyse pondérale et les grandeurs définissables et utilisables comme informations de référence. La concentration massique de suie peut être déterminée dans la ligne, soit à l'aide de pesée sur filtres soit avec un TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) dont le fonctionnement sera donné ultérieurement. On peut alors définir deux grandeurs caractéristiques, le facteur d'émission de suie ϵ et la fraction volumique f_v . Le facteur d'émission correspond à la masse de particules de suie émise par masse de combustible consommé :

$$\eta_{suies} = \frac{m_{suies}}{m_{Combustible\ consommé}} = \frac{\text{Concentration massique de suie} \cdot \text{débit de ventilation}}{\text{Perte de masse de combustible}} \quad \text{Équation 2-5}$$

La fraction volumique quant à elle est définie comme étant le volume de particules de suie par unité de volume de l'échantillon gazeux. On la définit à l'aide de la concentration massique de suie C_s et de la masse volumique ρ_{pp} des particules primaires :

$$f_v = \frac{m_{suies}}{\rho_{pp}} \quad \text{Équation 2-6}$$

Cette fraction volumique est particulièrement utile puisqu'elle permet une comparaison avec les fractions volumiques déterminées optiquement à l'aide du banc expérimental EXSCA. On pourra donc, après avoir déterminé la masse volumique des particules primaires de suie établir la fraction volumique en suie.

2.5.2 ANALYSE PONDERALE EN TEMPS REEL : LE TEOM

Le principe du TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) est similaire à celui des microbalances de laboratoire. Dans ces dispositifs la masse mesurée par le capteur résulte du changement d'un paramètre (dans notre cas, la fréquence d'oscillation) qui est directement couplé à la variation de masse. Le cœur de la microbalance TEOM est un élément oscillant, en réalité un tube creux dont une extrémité est fixe et l'autre peut osciller librement. A cette extrémité libre est placé un filtre interchangeable. Le flux prélevé passe à travers ce filtre et est conduit à travers l'élément oscillant creux. Le débit de prélèvement est quant à lui maintenu fixe à l'aide d'un régulateur de débit massique. Le schéma de principe de ce dispositif est présenté sur la [Figure 2-9](#).

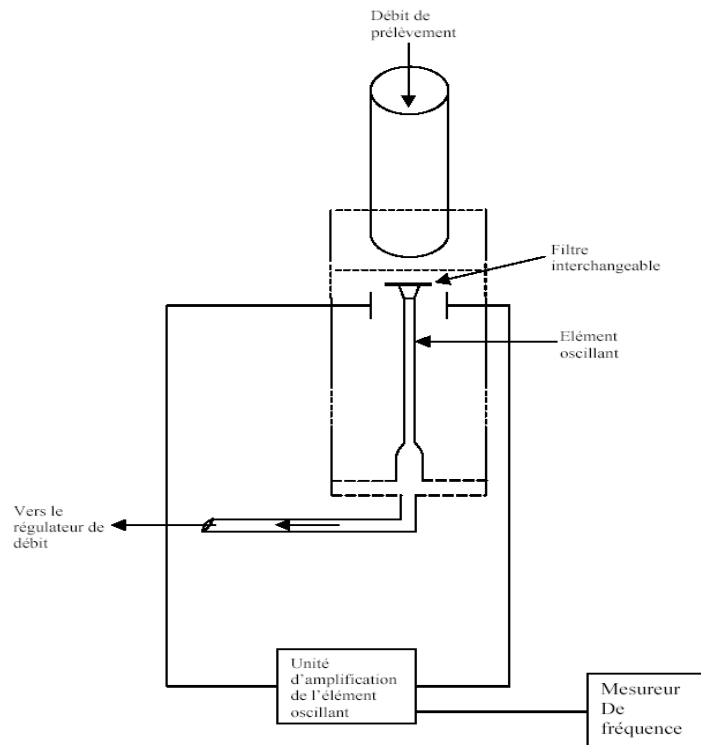


Figure 2-9 : Schéma décrivant le principe de la microbalance TEOM

Etant donné que l'élément oscillant est exposé à un écoulement contrôlé, celui-ci vibre à sa fréquence propre, tout comme la branche d'un diapason. Un circuit électronique entretient l'oscillation de cet élément. En parallèle, un dispositif électronique mesure la fréquence avec une période d'échantillonnage de 0,42 s. L'élément oscillant peut être considéré simplement comme un ressort caractérisé par sa masse M et sa raideur K . Comme tout système oscillant, lorsque la masse du système augmente, sa fréquence d'oscillation f diminue. On peut ainsi établir la relation suivante :

$$f = \sqrt{\frac{K}{M}} \quad \text{Équation 2-7}$$

On peut de plus établir une relation entre la variation de masse dm et la variation de fréquence :

$$dm = K_0 \left(\frac{1}{f_1^2 - f_0^2} \right) \quad \text{Équation 2-8}$$

Avec :

dm : variation de masse

K_0 : constante d'élasticité (constante spécifique incluant la conversion en masse)

f_0 : fréquence initiale (Hz)

f_1 : fréquence finale (Hz)

La constante de calibration de l'instrument K_0 peut être facilement déterminée à l'aide de cette relation. Il suffit en effet de mesurer la fréquence d'oscillation avec et sans un filtre de référence dont la masse est parfaitement connue. La fiabilité de la mesure dépendra ensuite de la qualité de cet étalonnage préalable.

2.5.3 PESEE SUR FILTRE

En parallèle du dispositif TEOM nous avons effectué des pesées sur filtre afin de valider l'utilisation de cette microbalance mais aussi afin de déterminer au cours de chaque essai un facteur réel de dilution. Le principe de détermination de la concentration massique est assez simple. On utilise pour cela des filtres Très Haute Efficacité (THE). Un schéma décrivant ce dispositif de prélèvement est présenté sur la [Figure 2-10](#).

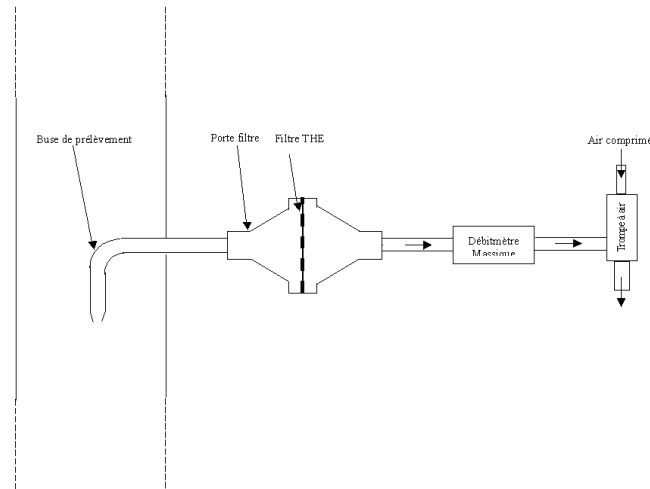


Figure 2-10 : Schéma de principe du prélèvement pour pesée sur filtre

Les filtres utilisés sont en fibre de verre et ils sont pesés avant et après chaque prélèvement. Cette pesée à une importance toute particulière puisqu'elle conditionne la qualité de la mesure de concentration massique, elle est donc généralement effectuée trois fois de suite afin de prendre en compte sa variabilité. Les filtres étant particulièrement hydrophiles nous les étuvons à 130°C avant et après chaque pesée afin de supprimer l'humidité présente sur ces filtres. La masse de suie déterminée par pesée m_{suie} est ensuite utilisée pour calculer la concentration massique en suies. Le volume de prélèvement $V_{\text{pré}}$ est déterminé quant à lui à l'aide d'un débitmètre massique et le volume réel est recalculé à partir de la température mesurée T_p au point de prélèvement. La concentration massique C_s est alors telle que :

$$C_s = \frac{m_{\text{suie}} \cdot T_{\text{ref}}}{Q_{\text{pré}} \cdot \Delta t \cdot T_{\text{pré}}} \quad \text{Équation 2-9}$$

Avec :

C_s : concentration massique en suie (mg/m^3)

m_{suie} : masse de suie prélevée sur le filtre (mg)

$T_{\text{pré}}$: température au point de prélèvement (K)

$Q_{\text{pré}}$: débit de prélèvement mesuré par le débitmètre massique (m^3/s)

$$V_{\text{pré}} = Q_{\text{pré}} \cdot \Delta t \quad \text{Équation 2-10}$$

Δt : durée du prélèvement (s)

T_{ref} : température de référence du débitmètre massique (K)

Cette concentration déterminée par pesée a été utilisée à la fois pour déterminer la concentration massique au point de prélèvement mais aussi pour recalculer au cours des essais le facteur de dilution en mesurant la concentration en amont et en aval du système de dilution. Ce dispositif a de plus été utilisé afin d'effectuer les prélèvements pour réaliser des clichés de microscopie électronique permettant l'analyse morphologique des particules de suie.

2.5.4 ETUDE COMPARATIVE DES DONNEES DU TEOM ET DES FILTRES

Une étude comparative des concentrations massiques a été menée pour les suies produites par les différents combustibles. Pour cela des prélèvements ont été effectués après la dilution à la fois sur filtres et à la fois à l'aide du TEOM. Nous représentons les données comparées sur la [Figure 2-11](#) ainsi que deux fonctions de régression linéaire, une première supposant une ordonnée à l'origine nulle l'autre non. La relation idéale ($y=x$) est également représentée afin de souligner les écarts existants entre le TEOM et les pesées sur filtres.

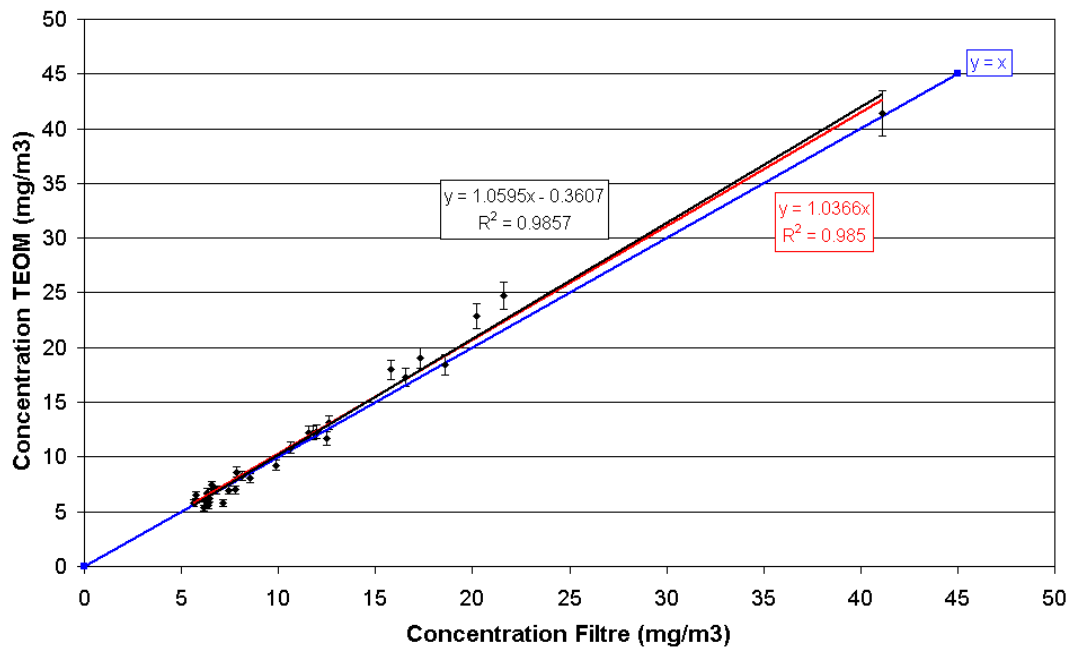


Figure 2-11 : Relation entre concentration TEOM et concentration filtres

La principale conclusion de cette étude comparative est la très bonne concordance des données issues du TEOM et des pesées sur filtre.

2.6 DISPOSITIFS GRANULOMETRIQUES

2.6.1 GRANULOMETRE A MOBILITE ELECTRIQUE : LE SMPS

Le granulomètre SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) est basé sur l'analyse de la mobilité électrique des particules. Il permet de caractériser des particules de diamètres submicroniques. La mesure consiste tout d'abord à imposer une loi de charge à l'aérosol avant de sélectionner une bande de mobilité électrique précise à l'aide d'un classificateur et à compter les particules correspondantes à l'aide d'un compteur optique. La chaîne de mesure SMPS est composée d'un classificateur électrostatique (Differential Mobility Analyser DMA) et un compteur de particules (Condensation Nucleus Counter CNC). Un schéma d'ensemble de la chaîne de mesure SMPS est présenté sur la [Figure 2-12](#). Nous présentons dans les parties suivantes le principe de l'analyse de mobilité électrique et les divers éléments composant ce système.

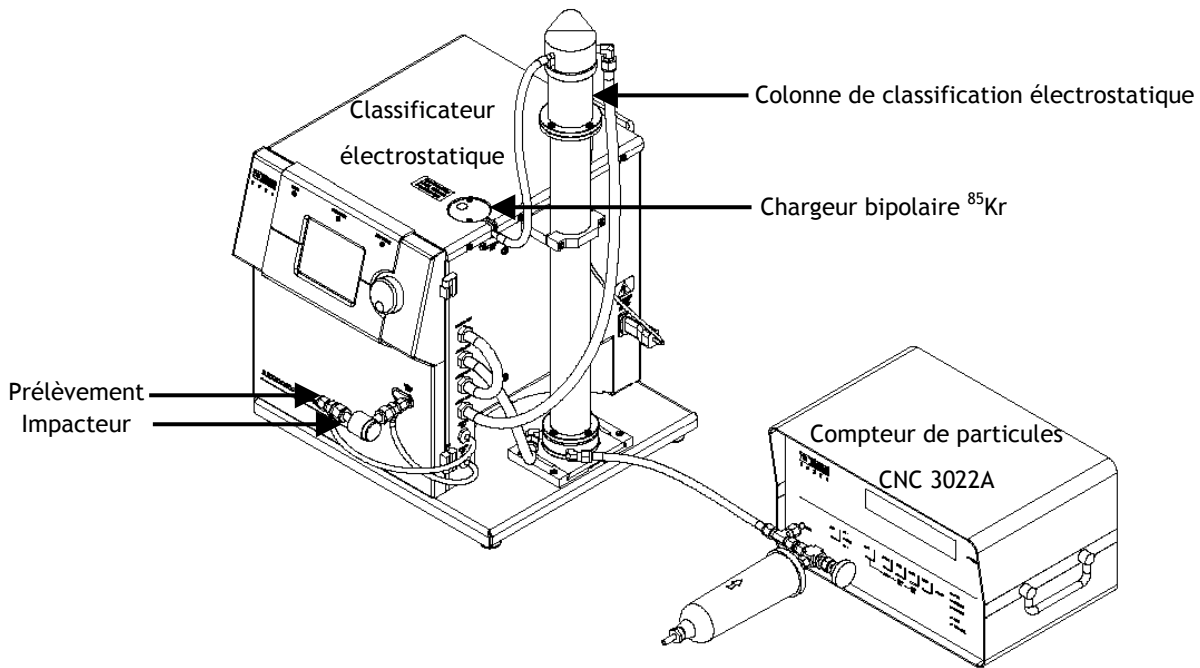


Figure 2-12 : Schéma descriptif du granulomètre SMPS

2.6.1.1 La notion de mobilité électrique

Considérons une particule de charge q évoluant dans un champ électrique de force E . Cette particule subit alors une force électrique F telle que :

$$F = q \cdot E \quad \text{Équation 2-11}$$

En considérant que la particule porte un faible nombre de charges, cette particule finit par atteindre une vitesse de migration limite pour laquelle la force de traînée et la force électrostatique sont en équilibre :

$$v_{TE} = NeBE = Z_p E \quad \text{Équation 2-12}$$

Avec :

- N Nombre de charges élémentaires portées par la particule
- e Charge élémentaire ($e = 1,609 \cdot 10^{-19}$ C)
- B Mobilité dynamique de la particule
- Z_p Mobilité électrique de la particule

La mobilité dynamique étant telle que :

$$B = \frac{Cc}{3\pi\mu D_m} \quad \text{Équation 2-13}$$

Avec :

- μ Viscosité dynamique du gaz ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$)
- D_m Diamètre de la particule (m)

La mobilité électrique Z_p est alors telle que :

$$Z_p = \frac{N.e.C_c}{3\pi\mu D_m} \quad \text{Équation 2-14}$$

Cette relation souligne bien le fait que la mobilité électrique est d'autant plus importante que le diamètre de la particule est faible, cette méthode est donc particulièrement adaptée aux particules submicroniques. Le granulomètre SMPS nous apporte une information sur la distribution granulométrique en terme de diamètre de mobilité électrique des particules étudiées. Pour une particule sphérique nous pouvons parler d'un réel diamètre de mobilité électrique en revanche, pour des particules dont la forme est plus complexe, des agrégats de suie par exemple, il convient plutôt de parler de diamètre équivalent de mobilité électrique. Ce diamètre correspond alors au diamètre de la sphère de mobilité électrique équivalente à la particule considérée. Ce terme équivalent alourdissant considérablement l'exposé nous utiliserons, par abus de langage, le terme de diamètre de mobilité électrique à la fois pour des sphères et à la fois pour des agrégats de suie.

2.6.1.2 Le classificateur et la sélection des particules

Nous venons de voir qu'une particule se déplaçait dans un champ électrique selon sa mobilité électrique Z_p qui est fonction du diamètre de la particule. On peut donc concevoir une sélection des particules selon cette mobilité électrique en les faisant passer dans une colonne (ou classificateur) où règne un champ électrique continu. On peut établir une relation directe entre le champ électrique imposé dans cette colonne et le diamètre des particules qui en sortiront :

$$\frac{D_m}{C_c} = \frac{2.N.e.\bar{V}.L_c}{3.\mu.q_{sh}.\ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)} \quad \text{Équation 2-15}$$

Avec :

\bar{V}	Potentiel électrique moyen sur le cylindre interne (V)
L_c	longueur du classificateur (m)
q_{sh}	Débit d'air d'entrée dans le classificateur ($m^3.s^{-1}$)
r_1	rayon intérieur de l'espace annulaire (m)
r_2	rayon extérieur de l'espace annulaire (m)

La [Figure 2-13](#) présente le fonctionnement du classificateur et le circuit des flux d'air ce qui permet de mieux comprendre l'ensemble des étapes qui permettent la classification des particules. Les particules sont tout d'abord chargées sous l'influence d'un champ d'ions générés par une source radioactive de ^{85}Kr . L'aérosol à la sortie du chargeur est globalement neutre et il est ensuite introduit dans la colonne où est appliqué un champ électrique. La classe de particules sélectionnée dépend de la tension appliquée dans la colonne (équation 2-15). La trajectoire des particules de cette classe dans la colonne est régie par la compétition entre les forces de traînée et les forces électrostatique dans la colonne. L'aérosol ayant même mobilité à la sortie du DMA est envoyé dans un compteur de noyaux de condensation afin de déterminer sa concentration en nombre.

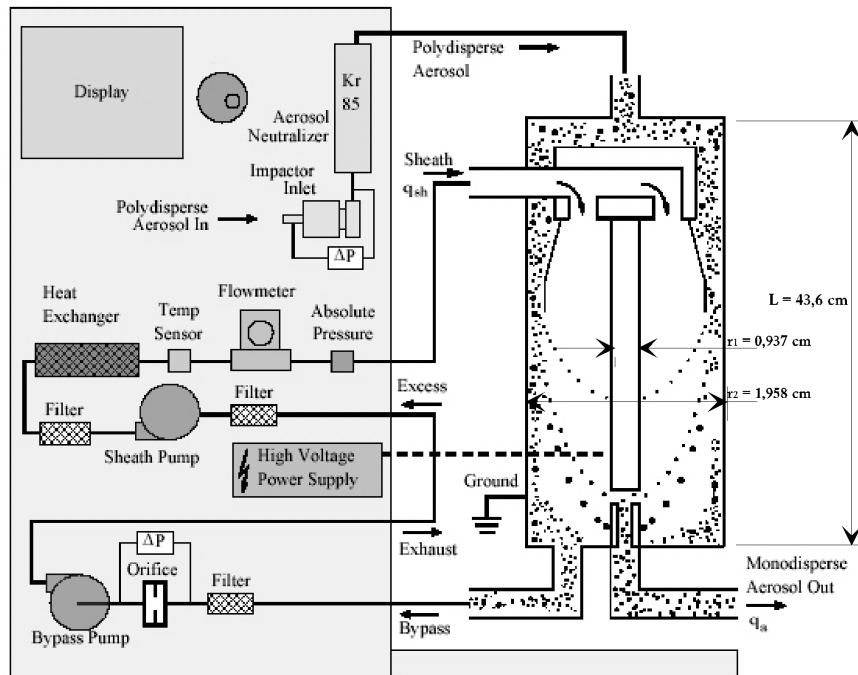


Figure 2-13 : Schéma descriptif de l'analyseur de mobilité électrique (TSI)

2.6.1.3 Le compteur à noyaux de condensation

Le comptage des particules sortant du classificateur est assuré par un compteur à noyaux de condensation. Le comptage s'effectue en analysant la lumière diffusée par les particules préalablement grossies par condensation de vapeurs de butanol. L'échantillon prélevé passe au-dessus d'une cuve chauffée et saturée en butanol. Les vapeurs se condensent autour de chaque particule en traversant un tube condenseur refroidi à 10°C. Le comptage est ensuite effectué optiquement sur ces gouttes de l'ordre de 10 µm, comptage indépendant de la taille initiale des particules et de leurs propriétés optiques. Le schéma présent sur la [Figure 2-14](#) permet d'appréhender le principe du compteur 3022A TSI utilisé.

MODEL 3022A CONDENSATION PARTICLE COUNTER

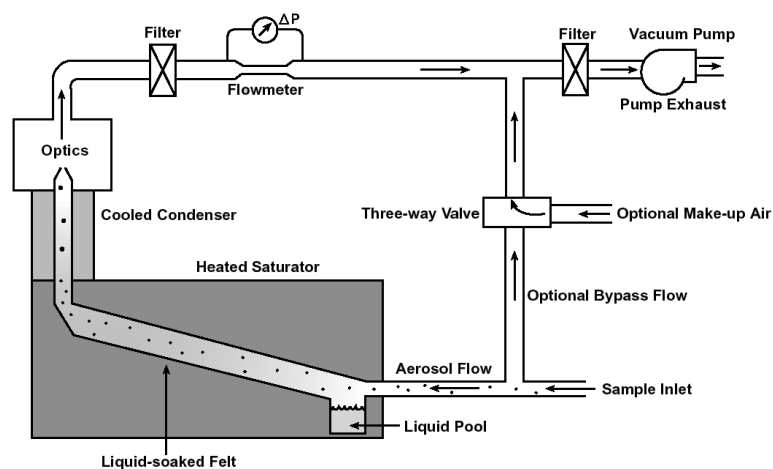


Figure 2-14 : Schéma descriptif du principe de fonctionnement d'un CNC

2.6.1.4 L'impacteur d'entrée du SMPS

L'impacteur d'entrée du SMPS stoppe les particules les plus grosses pouvant porter plusieurs charges et empêche leur présence dans la colonne de classification du SMPS. Nous présentons, sur la [Figure 2-15](#), une vue en coupe de cet impacteur afin d'appréhender le phénomène mis en jeu.

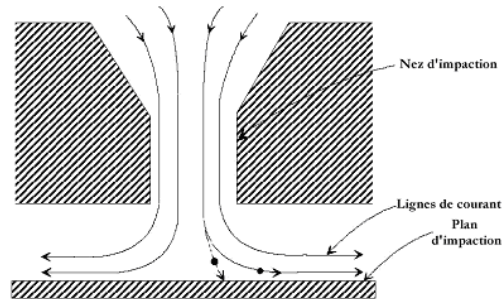


Figure 2-15 : Schéma descriptif d'un orifice et d'un plateau d'impaction

Les particules traversent le nez d'impaction et subissent ensuite un brusque changement de direction (90°). Les particules à plus forte inertie se dévient des lignes de courant et viennent s'impacter sur le plateau présent en sortie du nez d'impaction. Les particules dont l'inertie est plus faible, suivent les lignes de courant et ne sont donc pas stoppées. On peut établir un diamètre de coupure correspondant au diamètre pour lequel 50 % des particules sont arrêtées. Par définition le diamètre de coupure est fonction du diamètre du nez d'impaction, du débit dans l'impacteur et des propriétés du gaz :

$$D_{50} = \sqrt{\frac{9\pi Stk \cdot \mu W^3}{4 \cdot \rho_p \cdot C_c \cdot Q}} \quad \text{Équation 2-16}$$

Avec :

D_{50}	diamètre de coupure (m)	
Stk	Nombre de Stokes $\left(Stk = \frac{\rho_p \cdot d_p^2 \cdot V \cdot C_c}{9 \cdot \mu \cdot W} \right)$	Équation 2-17
V	Vitesse moyenne dans le nez d'impaction (m/s)	
μ	Viscosité du gaz (Pa.s)	
W	diamètre du nez d'impaction (m)	
ρ_p	Masse volumique de la particule (kg/m ³)	
C_c	Coefficient de Cunningham	
Q	Débit volumétrique (m ³ /s)	

Ce diamètre de coupure rend compte du comportement aérodynamique et l'on peut s'interroger sur l'utilisation d'un tel diamètre afin d'apporter une condition limite au SMPS qui délivre une information sur le diamètre de mobilité électrique. En effet, si pour des particules sphériques, le lien entre le diamètre aérodynamique et le diamètre de mobilité électrique réside dans la masse volumique de ces particules, qu'en est il pour des particules non sphériques ou des agrégats de suie ? On peut s'interroger sur la validité d'une telle hypothèse et nous reviendrons sur ce point dans la partie 3.

2.6.2 LE GRANULOMETRE AERODYNAMIQUE ELPI

Nous allons présenter dans cette partie le principe de fonctionnement de l'impacteur basse pression ELPI. Nous ne reviendrons pas dans cette partie sur la théorie de l'impaction développée précédemment lors de la description de l'impacteur d'entrée du SMPS (cf. 2.6.1.4). Cet impacteur est particulièrement intéressant car il couvre une large gamme spectrale de diamètre allant de 0,03 à 10 µm et surtout ce dispositif fournit la distribution granulométrique en un temps très court (de l'ordre de la seconde) ce qui permet un suivi de l'aérosol en temps réel dans de nombreuses applications. L'ELPI est un impacteur en cascade, il est composé de différents étages successifs d'impaction qui permettent de recueillir des particules dont les diamètres dépendent de la géométrie de ces étages et des débits utilisés. La particularité de cet impacteur par rapport aux impacteurs plus classiques de type ANDERSEN est que le prélèvement s'effectue en basse pression. En effet le nombre de Stokes dépendant du facteur de correction de Cunningham qui est lui-même proportionnel à la pression (cf. 1.3.3.2), la limite inférieure d'un tel impacteur est abaissée, on passe alors d'une limite inférieure de 300 nm avec un impacteur classique à 30 nm avec ce type d'impacteur. La Figure 2-16 permet d'appréhender le fonctionnement de ce dispositif.

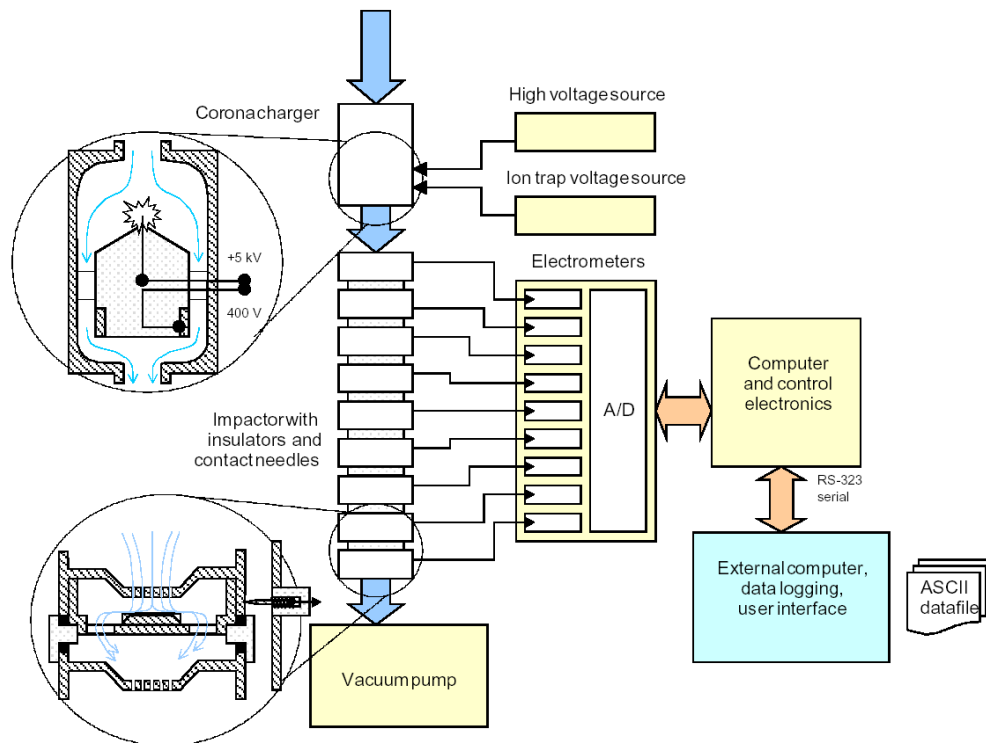


Figure 2-16 : Schéma descriptif du principe de fonctionnement d'un ELPI

L'aérosol passe tout d'abord dans un chargeur à effet couronne qui lui impose une loi globale de charge. Les particules sont ensuite collectées par impaction sur 13 plateaux successifs et des électromètres mesurent le courant induit sur chacun des plateaux par les particules chargées. La concentration particulière est alors déterminée à l'aide de l'équation suivante :

$$C = \frac{I}{PNeQ}$$

Équation 2-18

Avec :

- C Concentration particulaire ($\#/cm^3$)
- I Courant (A)
- P Pénétration dans le chargeur
- N Nombre moyen de charges par particules
- e Charge élémentaire ($e = 1,6 \cdot 10^{-19}$ C)
- Q Débit dans l'impacteur ($Q = 9,7$ L/min)

La conversion des courants mesurés I en concentration en nombre de particules C est fonction de l'efficacité du chargeur E_{ch} :

$$E_{ch} = PNeQ \quad \text{Équation 2-19}$$

Cette efficacité est déterminée expérimentalement en fonction du diamètre de mobilité électrique des particules, ainsi d'après *Marjamäki et al.* (2000) l'efficacité du chargeur peut se définir de la façon suivante :

$$E_{ch} = PNeQ = \begin{cases} 4,48 * D_p^{1,9087}, & D_p < 0,095 \mu\text{m} \\ 1,2930 * D_p^{1,3805}, & 0,095 < D_p < 1,196 \mu\text{m} \\ 1,3529 * D_p^{1,1308}, & 1,196 \mu\text{m} < D_p \end{cases}$$

Cette fonction a été déterminée à partir d'aérosol étalon de NaCl et d'huile DOS et nous présentons son évolution sur la [Figure 2-17](#) en fonction du diamètre de Stokes.

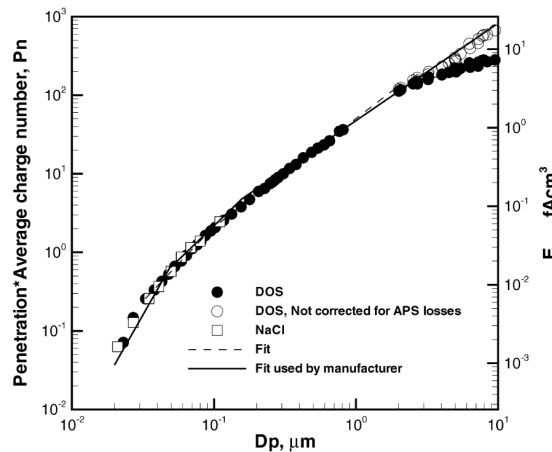


Figure 2-17 : Fonction de charge du chargeur à effet couronne du ELPI (d'après *Marjamäki et al.*, 2000)

L'ELPI est composé de treize plateaux d'impaction en cascade, ce qui donne accès à douze classes mesurées allant de 30 nm à 10 μm (le premier étage d'impaction n'est pas mesuré). En réalité, le nombre limité de classes implique que le diamètre fourni par classe représente un intervalle assez large donc la précision sur certaines classes est faible, en particulier pour les particules submicroniques. Cela est donc pénalisant pour la présente étude sur les aérosols de suie.

2.7 ANALYSE DES AGREGATS PAR MICROSCOPIE ELECTRONIQUE

La principale difficulté dans cette analyse est liée à la méthode de prélèvement de l'échantillon. Diverses méthodes ont été exploitées et nous présentons ici les principales qui ont été utilisées à la fois dans la zone de flamme et dans la zone de fumées.

2.7.1 ETAT DE L'ART DES DISPOSITIFS DE PRELEVEMENT

La première méthode repose sur le principe de la thermophorèse. Lorsque des particules sont dans un gaz où il existe un gradient thermique, elles sont soumises à une force qui les déplace des hautes vers les basses températures. Ce comportement a été utilisé dans plusieurs études (Megaridis et Dobbins, 1987, Köylü et Faeth, 1995b, Sorensen et Feke, 1996, Hu *et al.*, 2003) pour effectuer des prélèvements dans des flammes d'hydrocarbures. La sonde est composée d'une micro-grille de microscopie électronique qui est rapidement insérée dans la flamme à l'aide d'un dispositif à air comprimé (cf. Figure 2-18). La sonde portant la grille de microscopie reste dans la flamme quelques millisecondes et elle est ensuite rapidement retirée. Si cette méthode est couramment employée, on peut cependant se poser quelques questions sur sa réelle non-intrusivité et sur sa représentativité. En effet que se passe-t-il lors du retour de la sonde à l'extérieur de la flamme ? De plus, ce dispositif reposant sur la diffusion thermophorétique, on peut supposer que le prélèvement des particules de plus faibles diamètres est privilégié par rapport aux plus gros agrégats.

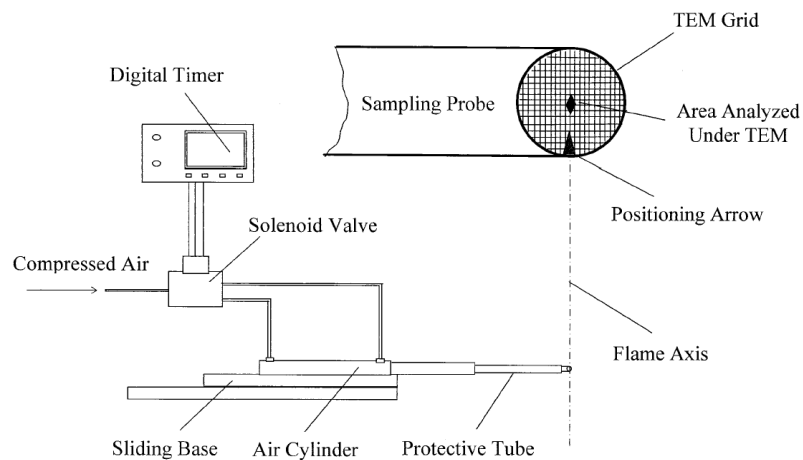


Figure 2-18 : Dispositif de prélèvement par thermophorèse (Hu *et al.*, 2003)

La seconde méthode de prélèvement repose sur le phénomène d'impaction. En effet si l'écoulement est à une température modérée, le phénomène de thermophorèse sera réduit et l'impaction sera plus importante. On insère donc directement une grille de microscope dans un flux de particules qui vont se déposer par impaction. Cette technique est plus généralement utilisée dans les zones de fumées ou bien après une dilution préalable mais ce principe peut présenter un inconvénient majeur. En effet on peut s'attendre à sélectionner préférentiellement les plus grosses particules au détriment des fines particules qui ont tendance à suivre les lignes de courant. Cette méthode a été utilisée par Sorensen et Feke (1996) et Van Hulle *et al.* (2002). La méthode employée dans cette étude repose sur le principe de cette technique d'impaction.

2.7.2 DISPOSITIF DE PRELEVEMENT UTILISE DANS CETTE ETUDE

Les particules de suie étudiées ici sont prélevées dans la zone de fumées dont la température est modérée, la collecte par thermophorèse a donc été écartée. Etant donné le nombre important de prélèvements effectués, le support employé dans le porte-filtre n'est pas une grille mais un filtre à orifices calibrés (NUCLEPore). La principale difficulté de cette méthode réside dans la durée de prélèvement. En effet même si ces prélèvements se déroulent après la dilution, la concentration en nombre de particules reste importante ($10^5 - 10^7$ p/cm³) et un temps de prélèvement trop important peut alors entraîner la formation d'agrégats non représentatifs sur le filtre. Cette difficulté est bien représentée par la [Figure 2-19](#) où apparaissent des clichés obtenus respectivement pour 2 s et 10 s de prélèvement.

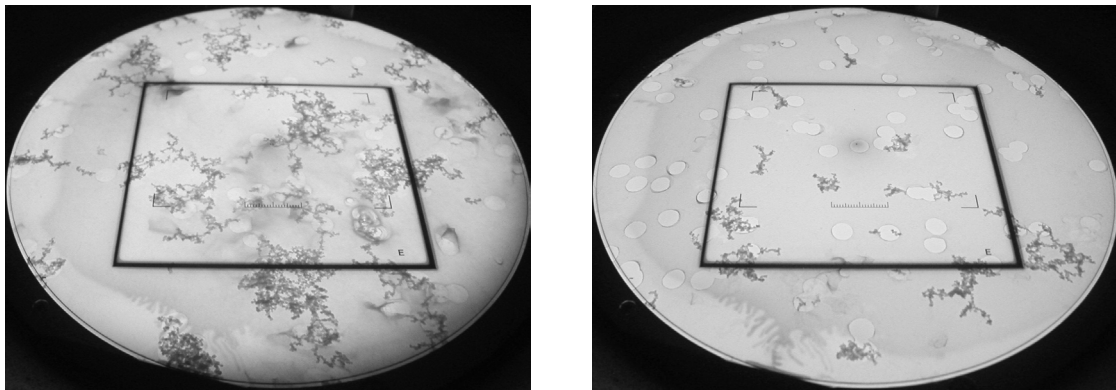


Figure 2-19 : Surface observée au MET d'un filtre après 10 s (à gauche) et 2 s (à droite) de prélèvement

On s'aperçoit qu'il existe des agrégats de plus grandes tailles sur l'échantillon effectué pendant 10 secondes comparé à celui qui a duré 2 secondes. Nous ne pouvons affirmer si cette différence est due à une agglomération sur le support ou si elle est due à une collecte plus efficace de l'ensemble des particules lorsque le temps de prélèvement augmente. Nous avons cependant préféré utiliser des temps de prélèvement courts, de 1 à 2 secondes, ce qui correspond à des débits dans le porte-filtre de l'ordre de 15 l/min. Les filtres NUCLEPore étant composés de polycarbonate, les prélèvements sont ensuite métallisés puis déposés sur des grilles de microscopie électronique. L'extraction du prélèvement est effectuée sous un flux de chloroforme, les filtres composés de polycarbonate sont alors dissous et on récupère un "gâteau" composé d'une épaisseur de graphite, des agrégats de suie et d'une fine couche de filtre. La nature de ce "gâteau" est particulièrement visible sur la [Figure 2-19](#) où les pores du filtre NUCLEPore (ici de 0,8 μ m) sont visibles.

2.7.3 TRAITEMENT DES CLICHES DE MICROSCOPIE ELECTRONIQUE

Le but de l'analyse des clichés obtenus par Microscopie Electronique par Transmission (MET) est d'obtenir des informations statistiques sur la morphologie des agrégats de suie. Afin de reproduire toute la population d'agrégats composant l'aérosol on effectue un nombre important de clichés (environ 50) et les clichés sont ensuite digitalisés afin d'isoler les agrégats du fond uniforme des filtres. Deux niveaux de couleurs sont alors disponibles, le noir correspondant à l'agrégat et le blanc au filtre. Les images sont ensuite analysées à l'aide d'un logiciel développé au cours de cette étude sous un environnement Matlab.

2.7.3.1 Détermination de R_{pp} , N_p et R_g

Comme indiqué dans la partie 1 la morphologie des agrégats de suie peut être décrite à l'aide d'une relation fractale (équation 1-4), celle-ci permet de calculer le nombre de particules primaires N_p en fonction du rapport du rayon de giration R_g sur le rayon des particules primaires R_{pp} . Ce dernier est déterminé directement sur les clichés et on considère alors que les particules primaires ont toutes le même rayon dans un agrégat. La détermination du nombre de particules N_p passe par le comptage des pixels composant les agrégats, connaissant le nombre de pixels constituant une particule primaire, le nombre de particules primaires composant l'agrégat est alors facilement accessible. Il convient cependant de remarquer que l'on détermine une information tridimensionnelle (N_p) à partir de clichés de transmission à deux dimensions et on utilise une relation empirique afin de lier ces informations :

$$N_p = k_a \cdot \left(\frac{S_a}{S_p} \right)^\alpha \quad \text{Équation 2-20}$$

Avec :

S_a et S_p : aires de projection de l'agrégat et d'une particule primaire (m^2)
 α et k_a étant des constantes

Cette relation s'appuie sur des travaux expérimentaux et numériques (Medalia et Heckman, 1969, Samson *et al.*, 1987, Megaridis et Dobbins, 1990, Köylü *et al.*, 1995a et b, Sorensen et Feke, 1996, Brasil *et al.*, 1999) qui ont permis la détermination des constantes α et k_a . Nous avons ainsi pour valeurs de ces deux constantes ; $\alpha = 1,09 - 1,10$ et $k_a = 1,15 - 1,16$. Suite aux travaux de Van Hulle (2002) nous avons finalement utilisé des valeurs de α et k_a respectivement de 1,095 et 1,155. La détermination de la surface projetée de l'agrégat S_a s'effectue par comptage des pixels composant l'agrégat et la surface projetée d'une particule primaire à l'aide du rayon des particules primaires déterminé sur les clichés. On peut définir la surface projetée de l'agrégat à partir de la valeur des pixels de l'image digitalisée. Si on définit $P_{res}(x,y)$ la valeur du pixel placé en (x,y) , l'image étant digitalisée cette variable peut prendre la valeur 0 (absence de suie) ou 1 (présence de suie). La surface de projection de l'agrégat correspond donc à la somme des valeurs des pixels composant le cliché :

$$S_a = \sum_{x,y} P_{res}(x,y) \quad \text{Équation 2-21}$$

Les coordonnées du centre de masse sont alors calculées à partir de la relation suivante :

$$\begin{pmatrix} x_B \\ y_B \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{S_a} \sum_{x,y} x \cdot P_{res}(x,y) \\ \frac{1}{S_a} \sum_{x,y} y \cdot P_{res}(x,y) \end{pmatrix} \quad \text{Équation 2-22}$$

Le rayon de giration est défini comme la moyenne des carrés des distances entre les particules primaires et le centre de masse de l'agrégat, on peut aisément le calculer. On peut calculer sa valeur $R_{g,2D}$ à partir de clichés à deux dimensions :

$$R_{g,2D}^2 = \frac{1}{S_a} \sum P_{res}(x,y) [(x-x_B)^2 + (y-y_B)^2] \quad \text{Équation 2-23}$$

Le rayon de giration réel 3D de l'agrégat est déterminé grâce à la relation suivante et issue de nombreuses études (Cai et al., 1993 et 1995, Sorensen et Feke, 1996) :

$$R_{g,3D} = \left(\frac{D_f + 2 \cdot \alpha}{D_f + 2} \right)^{1/2} \cdot R_{g,2D} \quad \text{Équation 2-24}$$

2.7.3.2 Détermination de D_f et k_f

Pour chaque agrégat, on connaît le nombre de particules N_p et le rayon de giration $R_{g,3D}$, on peut alors tracer la courbe $\text{Ln}(N_p) = f(\text{Ln}(R_g/R_{pp}))$. La Figure 2-20 est un exemple obtenu à partir de clichés de suies d'acétylène.

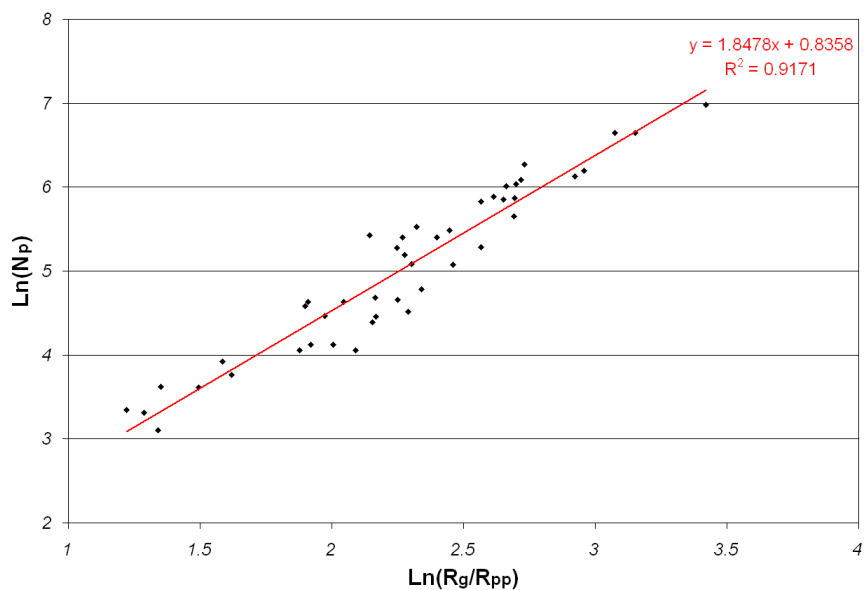


Figure 2-20 : Détermination de la loi fractale et de la morphologie de particules de suie d'acétylène

La bonne corrélation et la relation linéaire observées sur cette figure confirment la validité de la procédure permettant de déterminer N_p et R_g :

$$N_p = k_f \left(\frac{D_g}{D_{pp}} \right)^{D_f} \quad \text{Équation 2-25}$$

La détermination de la dimension fractale et du préfacteur est alors directe à partir des résultats tels que ceux illustrés sur la Figure 2-20. La pente de la régression linéaire est la dimension fractale D_f et l'ordonnée à l'origine le logarithme du préfacteur k_f . On retrouve sur la Figure 2-20 une valeur pour la dimension fractale $D_f = 1,85$ et une valeur de $k_f = 2,31$ pour le préfacteur.

2.7.3.3 Incertitude sur la détermination de D_f et k_f

La détermination expérimentale des paramètres morphologiques (D_f et k_f) passe par l'analyse d'une régression linéaire des couples de données expérimentales ($\ln(R_g/R_{pp})$; $\ln(N_p)$), les incertitudes associées à la dimension fractale et au préfacteur correspondent donc aux incertitudes inhérentes à la régression linéaire. On introduit, afin de déterminer ces incertitudes, le paramètre s :

$$s^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (\ln(N_p)_i - \ln(N_p \text{ fit})_i)^2}{n-2} \quad \text{Équation 2-26}$$

Avec :

n = nombre de données composant la série

N_p = nombre de particules composant l'agrégat

fit = valeur issue de la régression linéaire pour la donnée i de la série

L'incertitude sur la pente et l'ordonnée à l'origine qui correspondent respectivement à la dimension fractale et au préfacteur sont donc de la forme :

$$\text{Incertitude sur } D_f = \frac{s^2}{\sum_{i=1}^n (\ln(R_g/R_{pp})_i - \overline{\ln(R_g/R_{pp})})^2} \quad \text{Équation 2-27}$$

$$\text{Incertitude sur } \ln(k_f) = s^2 \cdot \left(\frac{1}{n} + \frac{\overline{\ln(R_g/R_{pp})}^2}{\sum_{i=1}^n (\ln(R_g/R_{pp})_i - \overline{\ln(R_g/R_{pp})})^2} \right) \quad \text{Équation 2-28}$$

Les incertitudes associées sont pour la dimension fractale inférieures à 10 % tandis que pour le préfacteur cette incertitude peut atteindre des valeurs supérieures à 50 %. La forte incertitude sur le préfacteur fractal explique en partie la disparité des valeurs rencontrées dans la littérature.

3 TRAITEMENT DES DONNEES ET RESULTATS EXPERIMENTAUX

3.1 INTRODUCTION

Deux dispositifs granulométriques (SMPS et ELPI) ont été utilisés et ont apporté des informations sur la distribution en taille des agrégats de suie. L'analyse des résultats fournis par ces dispositifs est simple si les particules ont une morphologie peu éloignée de la sphère mais, si l'on considère des agrégats, nécessite des précautions quant à l'interprétation. Concernant les suies, une réflexion a été menée sur la réponse de ces instruments pour les particules de type agrégat. Ce chapitre détaille deux axes de réflexion : le premier a porté sur la comparaison des informations apportées par ces deux dispositifs quand ils sont placés en série sur la ligne d'échantillonnage. Cette étude, initialement prévue afin de déterminer la dimension fractale par une méthode plus directe que l'analyse des clichés MET, nous a apporté des informations intéressantes sur la masse volumique effective des agrégats ainsi que sur le lien existant entre le diamètre de mobilité électrique et le diamètre aérodynamique des particules de suie. Le second axe s'est orienté sur l'analyse des données fournies par ces dispositifs quand ils sont mis en parallèle sur la ligne d'échantillonnage. Cela a entraîné une réflexion sur le phénomène de charges multiples dans le SMPS et sur le lien existant entre le diamètre aérodynamique et le diamètre de mobilité électrique pour l'ELPI. Les résultats de l'étude en série ont été utilisés dans la seconde partie de cette réflexion et ont permis une meilleure compréhension des difficultés rencontrées lors de l'étude des particules de suie.

3.2 ANALYSE EN SERIE DMA-ELPI

Nous avons vu dans la partie 2.7 une méthode de détermination expérimentale de la dimension fractale et du préfacteur fractal des agrégats de suie. Or les récents travaux de Van Gulijk *et al.* (2004) ont souligné la possibilité d'établir par une autre méthode la dimension fractale des particules de suie en effectuant la détermination en série des diamètres de mobilité électrique et aérodynamique de ces agrégats. Nous présentons dans cette partie la théorie de cette approche ainsi que les essais menés sur un aérosol de référence et des agrégats de suie.

3.2.1 RAPPEL DES NOTIONS DE BASE

3.2.1.1 Relations théoriques entre le diamètre de mobilité électrique et le diamètre aérodynamique de particules de morphologie fractale

Nous citons ici essentiellement les travaux de Hess *et al.* (1986), Kütz et Schmidt-Ott (1990), Schmidt-Ott *et al.* (1990) et Van Gulijk *et al.* (2004). Nous savons qu'il existe une relation entre le nombre de sphérules N_p et le diamètre de giration D_g de l'agrégat (chapitre 1). Schmidt-Ott *et al.* (1990) admettent qu'il existe un rapport constant entre le diamètre de mobilité électrique et celui de giration :

$$N_p \propto D_g^{D_f} \propto \left(\frac{D_m}{D_{pp}} \right)^{D_f}$$

Équation 3-1

Avec :

D_m : diamètre de mobilité équivalente

D_{pp} : diamètre des particules primaires

D_f : dimension fractale

A l'aide de cette relation, Van Gulijk *et al.* (2004) a établi une relation entre le diamètre de mobilité électrique et le nombre de particules primaires constituant un agrégat pour les différents régimes :

$$\frac{D_{m,molécule\ ire}}{D_{pp}} = A_1 N_p^{1/D_f}; 2 \leq D_f \leq 3 \quad \text{Équation 3-2}$$

$$\frac{D_{m,molécule\ ire}}{D_{pp}} = B_1 N_p^{1/2}; 1 \leq D_f \leq 2 \quad \text{Équation 3-3}$$

$$\frac{D_{m,continu}}{D_{pp}} = C_1 N_p^{1/D_f}; 1 \leq D_f \leq 3 \quad \text{Équation 3-4}$$

Le cas du régime moléculaire pour $D_f < 2$ est particulier. Les particules présentes au centre de l'agrégat ne sont pas "masquées" par d'autres particules. Chaque particule primaire contribue donc de manière équivalente à la force de traînée de l'agrégat et c'est pourquoi la dimension fractale n'intervient pas dans cette relation.

Dans un impacteur tel que l'ELPI, les particules sont classées selon leur temps de relaxation $\tau = m.B$, où m est la masse de la particule et B sa mobilité dynamique. Pour des particules sphériques de masse volumique $\rho_0 = 1000 \text{ kg/m}^3$ on définit le diamètre aérodynamique tel que $\tau = \rho_0 D_a^2 C_c / 18\mu$. Si la particule n'est pas sphérique ou possède une masse volumique différente, les particules peuvent alors être caractérisées par un diamètre aérodynamique équivalent : le diamètre d'une sphère de masse volumique unitaire ($\rho_0 = 1000 \text{ kg/m}^3$) possédant le même temps de relaxation τ que la particule non-sphérique. Le diamètre aérodynamique d'une particule représente donc le diamètre d'une sphère de masse volumique unitaire présentant le même comportement dans un impacteur, c'est à dire le même produit $m.B$. Ainsi, le diamètre associé au produit $m.B$ est appelé le diamètre aérodynamique. Nous avons ainsi la relation suivante :

$$m_{fr}.B_{fr} = m_a.B_a \quad \text{Équation 3-5}$$

Où l'indice 'fr' désigne l'agrégat fractal et l'indice 'a' désigne la sphère de masse volumique unitaire qui définit le diamètre aérodynamique équivalent. Pour cette sphère, la masse de la particule est telle que :

$$m_a = \rho_0 \cdot \frac{\pi}{6} \cdot D_a^3 \quad \text{Équation 3-6}$$

La masse de l'agrégat est définie à partir du diamètre D_{pp} , de la masse volumique ρ_{pp} et du nombre N_p de particules primaires de l'agrégat. Il vient ainsi :

$$m_{fr} = \rho_{pp} \cdot \frac{\pi}{6} \cdot D_{pp}^3 \cdot N_p \quad \text{Équation 3-7}$$

On peut de plus définir la mobilité dynamique d'une particule fractale à partir du diamètre de mobilité électrique de l'agrégat :

$$B_{fr} = \frac{C_c(D_m)}{3\pi\mu D_m} \quad \text{Équation 3-8}$$

Dans le cas d'une sphère de masse volumique unitaire le diamètre aérodynamique est équivalent au diamètre de mobilité électrique, ainsi nous avons $D_m = D_a$. La mobilité dynamique de cette sphère prend alors la forme suivante :

$$B_a = \frac{C_c(D_a)}{3\pi\mu D_a} \quad \text{Équation 3-9}$$

En utilisant les relations (3-6 à 3-9) dans la relation (3-5) nous obtenons une relation générale telle que :

$$\rho_{pp}.N_p.D_{pp}^3.\frac{C_c(D_m)}{D_m} = \rho_0.C_c(D_a).D_a^2 \quad \text{Équation 3-10}$$

En simplifiant le facteur de Cunningham pour les différents régimes d'écoulement (cf. partie 1.3.3.2) et en utilisant les relations (3-2 à 3-4) on peut alors établir diverses relations liant le diamètre aérodynamique au diamètre de mobilité électrique équivalente. On introduit tout d'abord pour cela les relations liant le diamètre aérodynamique aux paramètres morphologiques des agrégats :

$$\frac{D_{a,moléculaire}}{D_{pp}} = A_2.\frac{\rho_{pp}}{\rho_0}.N_p^{(D_f-2)/D_f} \quad ; 2 \leq D_f \leq 3 \quad \text{Équation 3-11}$$

$$\frac{D_{a,moléculaire}}{D_{pp}} = B_2.\frac{\rho_{pp}}{\rho_0} \quad ; 1 \leq D_f \leq 2 \quad \text{Équation 3-12}$$

$$\frac{D_{a,continu}}{D_{pp}} = C_2.\sqrt{\frac{\rho_{pp}}{\rho_0}}.N_p^{(D_f-1)/2D_f} \quad ; 1 \leq D_f \leq 3 \quad \text{Équation 3-13}$$

A partir de ces dernières relations nous pouvons de plus établir les relations entre le diamètre aérodynamique et le diamètre de mobilité électrique :

$$\frac{D_{a,moléculaire}}{D_{pp}} = A_3.\frac{\rho_{pp}}{\rho_0}.\left(\frac{D_m}{D_{pp}}\right)^{(D_f-2)} \quad ; 2 \leq D_f \leq 3 \quad \text{Équation 3-14}$$

$$\frac{D_{a,moléculaire}}{D_{pp}} = B_3.\frac{\rho_{pp}}{\rho_0} \quad ; 1 \leq D_f \leq 2 \quad \text{Équation 3-15}$$

$$\frac{D_{a,continu}}{D_{pp}} = C_3.\sqrt{\frac{\rho_{pp}}{\rho_0}}.\left(\frac{D_m}{D_{pp}}\right)^{(D_f-1)/2} \quad ; 1 \leq D_f \leq 3 \quad \text{Équation 3-16}$$

Il convient alors de discuter du régime de transition. Dans ce régime aucune simplification théorique du facteur de Cunningham n'est possible et afin de permettre l'établissement d'une relation directe entre le diamètre de mobilité électrique et le diamètre aérodynamique, on pose (Van Gulijk *et al.*, 2004) :

$$C_c = A_5.K_n^{\alpha-1} \quad \text{Équation 3-17}$$

A partir des mesures expérimentales du facteur de Cunningham effectué par Kim *et al.* (2005), on peut calculer la courbe théorique donnant le facteur de Cunningham en fonction du diamètre de mobilité électrique. On détermine ensuite le couple de paramètres A_5 et α spécifiques à notre étude en ajustant les valeurs fournies par la relation approchée (3-17) aux valeurs théoriques. Le résultat est présenté sur la [Figure 3-1](#).

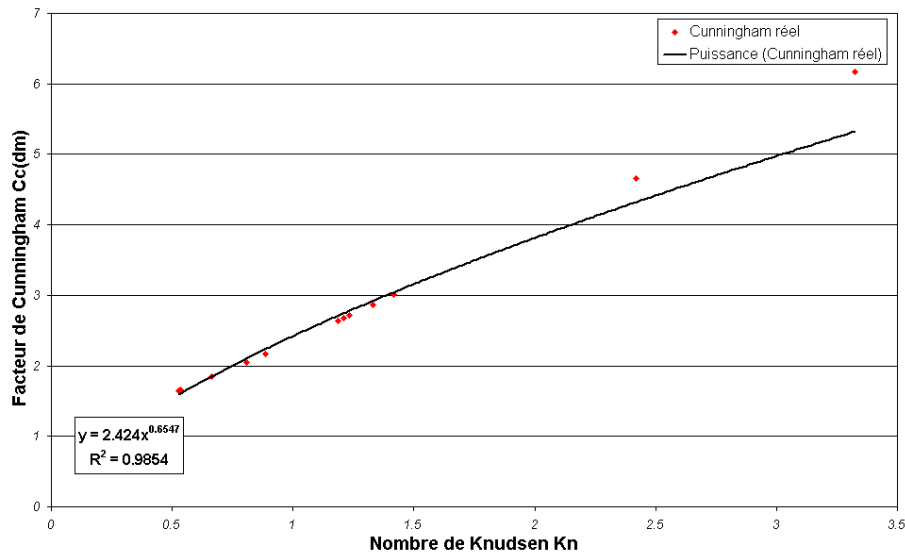


Figure 3-1: Valeur approchée du facteur de Cunningham dans le régime de transition, Puissance, pour la loi en puissance approchée, Cunningham réel, pour la relation expérimentale établie par Kim *et al.* (2005)

Suite à ce "lissage" nous pouvons exprimer la mobilité mécanique de l'agrégat et de la sphère dans le régime transitoire. Il vient ainsi :

$$B_{fr} = C_6 D_m^{-\alpha} \quad \text{Équation 3-18}$$

et

$$B_a = C_6 D_a^{-\alpha} \quad \text{Équation 3-19}$$

On applique au régime de transition la relation (3-1) afin d'introduire le diamètre de mobilité électrique :

$$\frac{D_{m,transitoire}}{D_{pp}} = C_7 N_p^{1/D_f} \quad \text{Équation 3-20}$$

Cette relation nous permet alors de relier le diamètre de mobilité électrique au diamètre aérodynamique :

$$\frac{D_a}{D_{pp}} \propto \left(\frac{D_m}{D_{pp}} \right)^{\frac{(D_f - \alpha)}{(3 - \alpha)}} \quad \text{Équation 3-21}$$

L'établissement expérimental de la relation existant entre $\log(D_a)$ et $\log(D_m)$ nous permet alors de déterminer la dimension fractale des agrégats. En utilisant cette approche, Van Gulijk *et al.* (2004) ont déterminé la dimension fractale de particules de suie diesel cohérentes avec les informations issues de la littérature.

3.2.1.2 Détermination de la masse volumique effective par analyse en série DMA-ELPI, application à la détermination de la relation fractale

L'approche introduite par Van Gulijk *et al.* (2004) pour déterminer la dimension fractale nécessite un "lissage" préalable du facteur de correction de Cunningham dans le régime de transition. Nous proposons ici une méthode de détermination de la dimension fractale exclusivement fondée sur la détermination de la masse volumique effective des particules de suie et ne nécessitant pas ce "lissage" intermédiaire. Cette masse volumique effective, si elle est indépendante de la taille des particules pour un aérosol de particules sphériques non-poreuses, évolue en fonction du diamètre dans le cas d'agrégats de morphologie fractale. On

comprend aisément que l'hypothèse d'une masse volumique uniforme est particulièrement inadaptée et que l'établissement de la fonction d'évolution de la masse volumique en fonction du diamètre de l'agrégat est nécessaire afin de caractériser la masse des particules. En effet la masse volumique effective permet, par définition, de déterminer la masse d'un agrégat m_{fr} à partir de son diamètre de mobilité électrique :

$$m_{fr} = \frac{\pi}{6} \cdot \rho_e \cdot D_m^3 \quad \text{Équation 3-22}$$

D'après Skillas *et al.* (1998, 1999) on peut de plus lier la masse d'un agrégat au diamètre de mobilité électrique à l'aide de la dimension fractale :

$$m_{fr} \propto D_m^{D_f} \quad \text{Équation 3-23}$$

En intégrant la relation (3-23) à la relation (3-22) on peut supposer une relation de type puissance entre la masse volumique effective ρ_e et le diamètre de mobilité électrique D_m des agrégats (Matti Maricq et Xu, 2004, Virtanen *et al.*, 2002 et 2004) :

$$\rho_e \propto D_m^{D_f-3} \quad \text{Équation 3-24}$$

Une mesure directe de la masse des agrégats de diamètre de mobilité électrique D_m sélectionné étant difficile à mettre en œuvre (Ehara *et al.*, 1996, Mc Murry *et al.*, 2002, Park *et al.*, 2004) nous avons décidé d'utiliser à nouveau les relations liant le diamètre de mobilité électrique D_m et le diamètre aérodynamique D_a .

On introduit le diamètre équivalent en masse D_{em} comme étant le diamètre d'une sphère de même masse que la particule non-sphérique de facteur de forme χ . En combinant les relations 1-9 et 1-14 on a alors une relation entre le diamètre équivalent en masse et le diamètre de mobilité électrique sélectionné :

$$D_m = \chi \cdot \frac{D_{em} \cdot C_c(D_m)}{C_c(D_{em})} \quad \text{Équation 3-25}$$

Le diamètre aérodynamique représentant le diamètre d'une sphère de masse volumique unitaire ($\rho_0 = 1000 \text{ kg/m}^3$) de même vitesse de chute que la particule réelle de masse volumique ρ_{pp} , on peut le définir aussi en fonction du diamètre de masse équivalente D_{em} :

$$D_a^2 \cdot C_c(D_a) \cdot \rho_0 = \frac{D_{em}^2 \cdot C_c(D_{em}) \cdot \rho_{pp}}{\chi} \quad \text{Équation 3-26}$$

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

$$D_a^2 \cdot C_c(D_a) \cdot \rho_0 = D_m^2 \cdot C_c(D_m) \cdot \frac{[C_c(D_{em})]^3 \cdot \rho_{pp}}{[C_c(D_m)]^3 \cdot \chi^3} = \rho_e \cdot C_c(D_m) \cdot D_m^2 \quad \text{Équation 3-27}$$

La masse volumique effective ρ_e est donc définie telle que :

$$\rho_e = \frac{[C_c(D_{em})]^3 \cdot \rho_{pp}}{[C_c(D_m)]^3 \cdot \chi^3} \quad \text{Équation 3-28}$$

Cette masse volumique effective permet alors, à partir de la relation (3-22), de calculer la masse d'un agrégat à l'aide de son diamètre de mobilité électrique. Elle a été obtenue pour la première fois par Kelly et McMurry (1992). On peut donc, connaissant le couple (D_a , D_m) pour chaque classe de particule, déterminer la masse volumique effective des particules à partir de la relation (3-27). Connaissant cette masse volumique effective on peut de plus estimer la masse réelle m_{fr} d'agrégats de différents diamètres de mobilité électrique.

En déterminant le diamètre D_{pp} et la masse volumique ρ_{pp} des particules primaires (cf. Annexe 4) on calcule la masse d'une particule primaire m_{pp} , et on peut alors estimer le nombre de particules primaires associé à un agrégat de diamètre de mobilité D_m :

$$N_p = \frac{m_{fr}}{m_{pp}} = \frac{\rho_e(D_m) \cdot D_m^3}{\rho_{pp} \cdot D_{pp}^3} \quad \text{Équation 3-29}$$

On peut ensuite établir la relation fractale liant ce nombre de particules primaires au rapport du diamètre de mobilité électrique sur le diamètre des particules primaires :

$$N_p = k_f \cdot \left(\frac{D_m}{D_{pp}} \right)^{D_f} \quad \text{Équation 3-30}$$

3.2.2 VALIDATION EXPERIMENTALE DU PROTOCOLE DE DETERMINATION DE LA MASSE VOLUMIQUE EFFECTIVE

Afin de valider le protocole et la théorie permettant de déterminer la masse volumique effective et la dimension fractale nous avons étudié des particules sphériques de masse volumique connue. L'aérosol est composé de gouttes de DOS (DiOctyl Sébacate). Comme le montre la [Figure 3-2](#) il est généré à l'aide d'un atomiseur (Atomizer TSI 3076). Les gouttes ainsi produites sont ensuite séchées dans un dessiccateur, introduites dans un analyseur de mobilité électrique (DMA TSI 3080) et ensuite dans un impacteur électrique à basse pression (ELPI DEKATI). Le volume de stabilisation agit comme une zone de coagulation et permet, à partir de concentration assez faible en DOS, de former des particules de diamètre de mobilité électrique allant de 50 à 250 nm. L'impacteur ELPI fonctionnant à un débit de prélèvement de 10 litres par minute (LPM), une partie de ce prélèvement est effectuée à travers le DMA (0,7 LPM) tandis que la majeure partie du prélèvement est effectuée à travers un filtre à Très Haute Efficacité. Des essais préliminaires ont été menés sur cette dilution afin de s'assurer de l'étanchéité de notre système de prélèvement et afin d'éviter l'échantillonnage de l'aérosol ambiant pouvant introduire des incertitudes dans nos mesures.

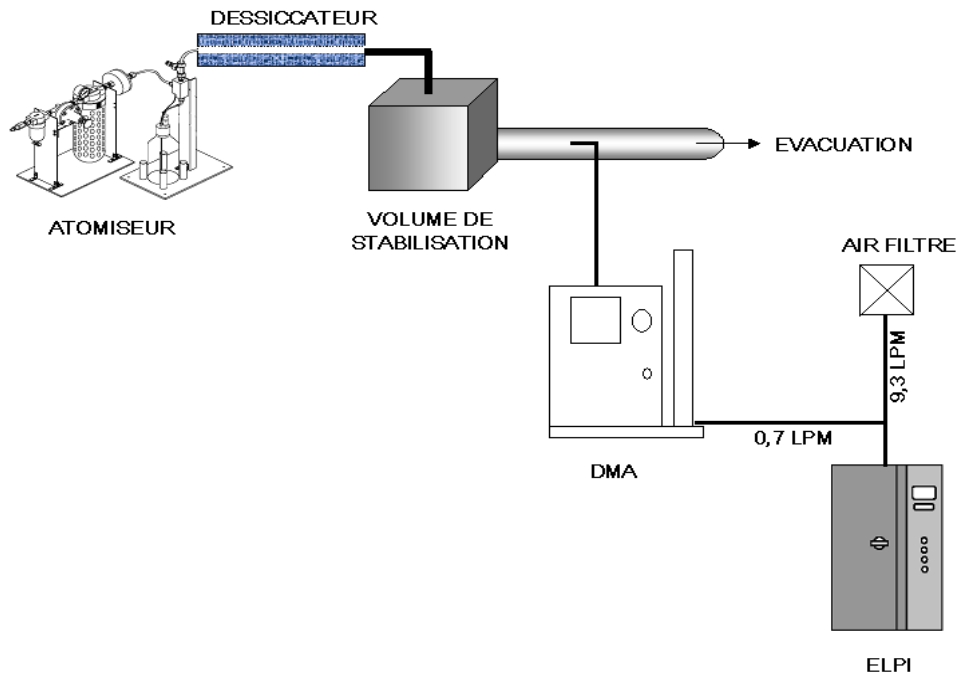


Figure 3-2: Dispositif expérimental employé pour valider la méthode de détermination de la masse volumique effective et la dimension fractale des agrégats de suie

Nous présentons sur la [Figure 3-3](#) les relations expérimentales liant le diamètre aérodynamique au diamètre de mobilité électrique ainsi que les valeurs de masse volumique effective obtenues pour différents diamètres de mobilité électrique. Au cours de chacun des essais, 5 diamètres de mobilité électrique s'étalant de 50 à 250 nm ont été sélectionnés à l'aide du DMA et le diamètre aérodynamique a ensuite été déterminé à l'aide de l'impacteur ELPI. On cherche alors à démontrer, pour des particules sphériques, la relation 3-28 liant la masse volumique effective ρ_e et la masse volumique des particules primaires ρ_{pp} , qui devient alors : $\rho_e = \rho_{pp}$.

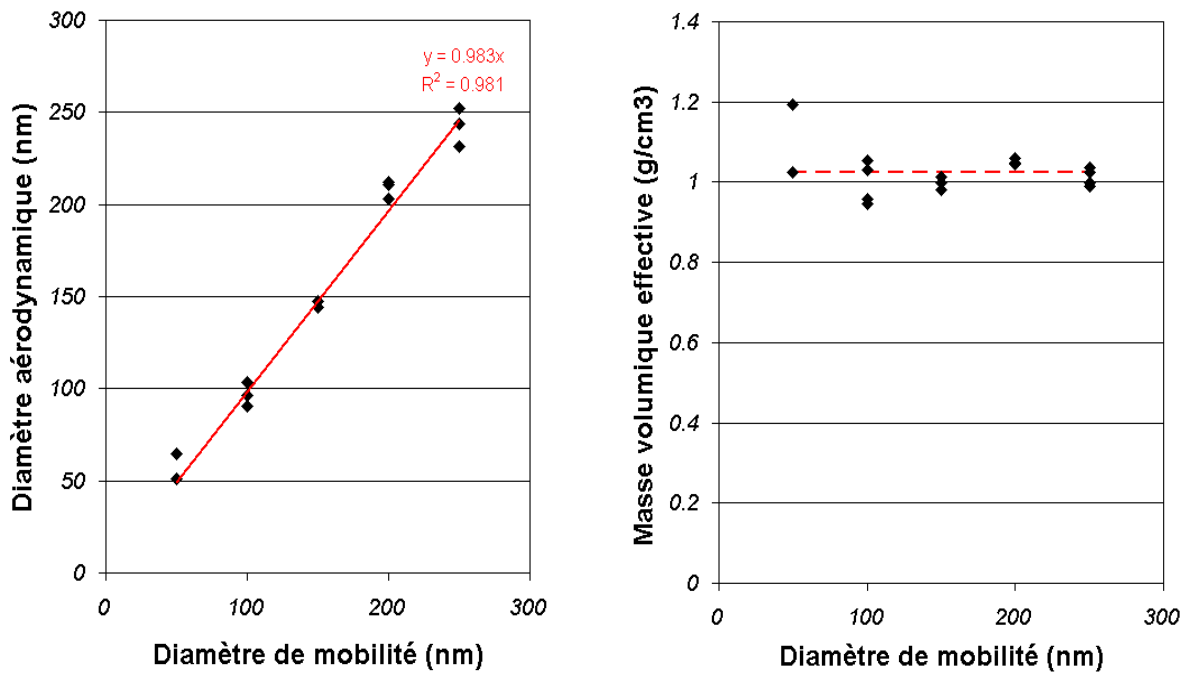


Figure 3-3 : Evolution expérimentale du diamètre aérodynamique et de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique pour des particules sphériques de DOS

Dans cette phase de validation, les particules étant supposées sphériques et non-poreuses, la masse volumique effective doit être identique à la masse volumique du DOS qui est de l'ordre de $0,92 \text{ g/cm}^3$ et doit de plus être indépendante de la taille des particules. La relation liant le diamètre aérodynamique au diamètre de mobilité présentée sur la [Figure 3-3](#) souligne la sphéricité des particules étudiées mais aussi le fait que la masse volumique soit très proche de 1 g/cm^3 . On voit ainsi clairement que la masse volumique est bien indépendante de la taille des particules pour ce type d'aérosol en revanche, on souligne aussi le fait que la masse volumique ainsi déterminée est supérieure à celle attendue puisqu'elle est ici de l'ordre de $1,02 \text{ g/cm}^3$. On obtient ainsi une masse volumique 10 % supérieure à la masse volumique supposée de $0,92 \text{ g/cm}^3$. Cette différence peut être attribuée à l'incertitude sur les diamètres sélectionnés par le DMA et déterminés à partir des distributions granulométriques de l'ELPI. A titre de comparaison nous pouvons citer les travaux de Matti Maricq et Xu (2004) qui, pour des gouttes d'huiles de PAO (poly α -olefin) obtiennent à partir de cette approche des valeurs comprises entre $0,85$ et $0,91 \text{ g/cm}^3$ pour une masse volumique supposée de $0,82 \text{ g/cm}^3$ (10% également).

3.2.3 APPLICATION DE LA METHODE A DES AGREGATS DE SUIE

3.2.3.1 Dispositif expérimental et paramètres utilisés pour l'analyse des données

Nous présentons sur la Figure 3-4 le dispositif expérimental employé pour la production et la caractérisation des particules de suie. On retrouve le dispositif d'analyse en série DMA-ELPI qui nous permet l'établissement de la dimension fractale et de la masse volumique effective des agrégats. Nous avons appliqué le protocole validé dans le paragraphe précédent à des particules de suie produites par la combustion de l'acétylène, du toluène et du PMMA.

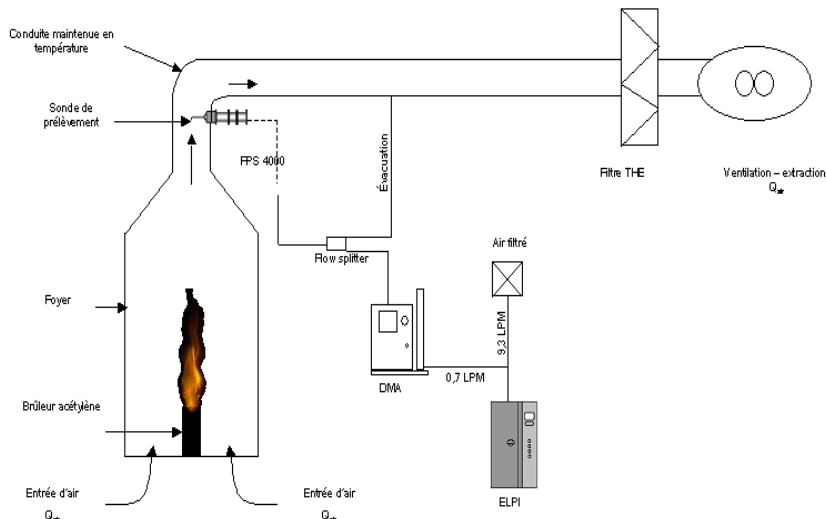


Figure 3-4 : Dispositif expérimental pour l'étude des particules de suie

Le nombre de particules sélectionnées à la sortie du DMA représentant environ 10 % du nombre total présent à l'entrée de ce dispositif, l'étude a été menée avec la plus faible ventilation, produisant les plus forts niveaux de concentration. Les essais ont donc été réalisés avec un débit de ventilation de 100 m³/h et un facteur de dilution de 10. Le protocole expérimental est identique à celui de la phase de validation en revanche un plus grand nombre de diamètres de mobilité électrique a été étudié. Nous donnons dans le Tableau 3-1 les paramètres utiles pour l'analyse des données : le diamètre des particules primaires, le préfacteur et la dimension fractale déterminés par microscopie électronique à transmission ainsi que les paramètres A₅ et α correspondant au "lissage" du facteur de Cunningham dans la gamme de diamètres étudiée. Pour le toluène et le PMMA il convient de préciser que deux gammes de "lissage" ont été employées afin de minimiser l'impact de cette étape sur la suite de l'analyse.

Tableau 3-1 : Paramètres utilisés pour l'analyse des données de l'étude en série DMA-ELPI

Combustible	D _{pp} (nm)	P _{pp} (g/cm ³)	D _f	k _f	Gamme diamètres		Gamme diamètres	
					A ₅	α	A ₅	α
Acétylène	64	1,72	1,93	1,68	60 - 100 nm		100 - 500 nm	
								2,33
Toluène	70	1,46	1,81	2,62	60 - 100 nm		150 - 540 nm	
								2,27
PMMA	53	1,52	1,72	2,97	60 - 100 nm		150 - 540 nm	
								2,27

3.2.3.2 Comparaison expérimentale du diamètre aérodynamique et du diamètre de mobilité électrique pour des agrégats de suie

La Figure 3-5 donne la relation expérimentale existante entre le diamètre aérodynamique et le diamètre de mobilité électrique pour les trois combustibles. En guise de comparaison nous avons de plus représenté sur cette figure l'évolution expérimentale moyenne constatée pour des gouttes sphériques de DOS.

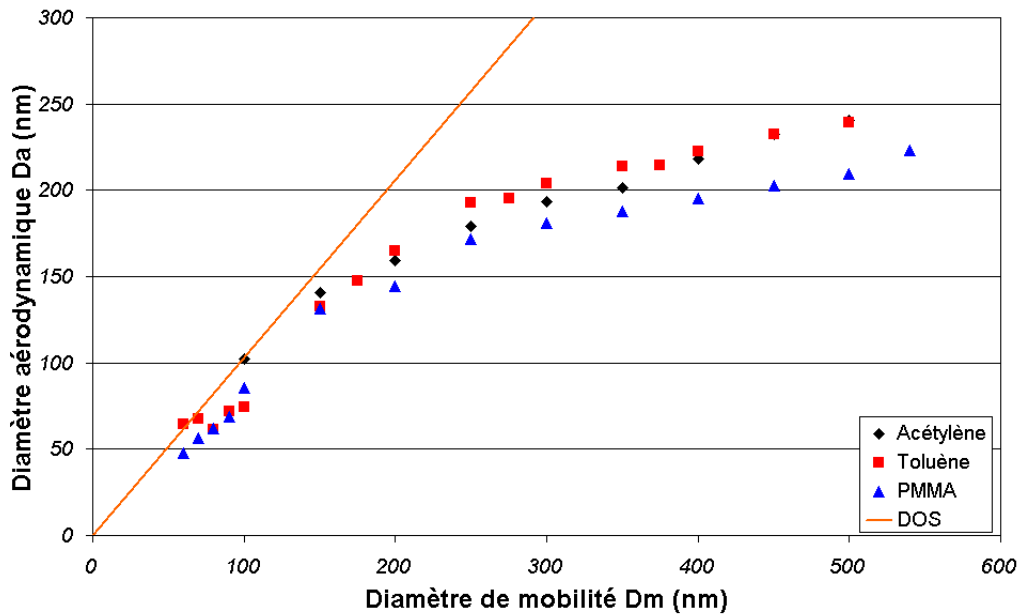


Figure 3-5 : Evolution expérimentale du diamètre aérodynamique en fonction du diamètre de mobilité électrique pour des agrégats de suie issus de la combustion de l'acétylène, du toluène et du PMMA

On voit tout d'abord sur cette figure que pour des particules dont le diamètre de mobilité électrique est inférieur à 100 nm l'évolution expérimentale suit assez bien l'évolution observée pour des sphères de DOS. Au-delà de cette limite, on observe une évolution non plus linéaire entre ces deux diamètres mais bien de type puissance comme attendu par la théorie fractale. On souligne par la même occasion toute la difficulté inhérente à la comparaison de ces deux diamètres quand on étudie des agrégats. On a ainsi pour un diamètre de mobilité électrique de 400 nm un diamètre aérodynamique équivalent de l'ordre de 200 nm. A partir de ces données initiales brutes nous pouvons emprunter deux voies distinctes afin de déterminer la dimension fractale de ces particules, soit à partir de l'approche de Schmidt-Ott *et al.* (1990) et Van Gulijk *et al.* (2004), soit en déterminant la masse volumique effective tout comme le décrit Kelly et McMurry (1992).

3.2.3.3 Détermination de la dimension fractale à partir de l'approche de Van Gulijk

La détermination de la dimension fractale selon l'approche de Van Gulijk *et al.* (2004) repose sur la relation suivante qui a été introduite dans le paragraphe 3.2.1.1 :

$$\frac{D_a}{D_{pp}} \propto \left(\frac{D_m}{D_{pp}} \right)^{\frac{(D_f - \alpha)}{(3 - \alpha)}} \quad \text{Équation 3-31}$$

Le paramètre α est empirique et il résulte du lissage du facteur de Cunningham théorique, il est fourni pour les trois combustibles dans le Tableau 3-1. Nous représentons sur la Figure 3-6 la relation expérimentale existant entre les logarithmes du diamètre aérodynamique et du diamètre de mobilité électrique. Cette représentation permet une détermination directe de la dimension fractale car la pente de la régression linéaire des données expérimentales correspond alors à :

$$pente = \frac{D_f - \alpha}{3 - \alpha} \quad \text{Équation 3-32}$$

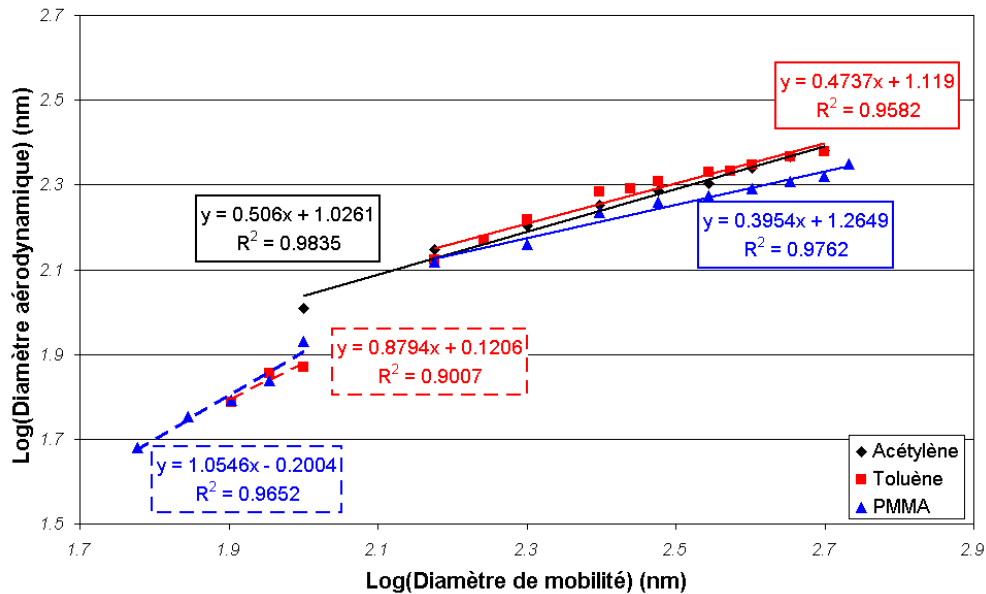


Figure 3-6 : Détermination de la dimension fractale des particules de suie à l'aide de l'analyse DMA-ELPI en série

On remarque que pour le toluène et le PMMA deux régressions linéaires peuvent être appliquées et qui correspondent à deux classes de diamètres distinctes. Les valeurs de dimensions fractales déterminées à partir de ces régressions sont comparées aux valeurs issues de l'analyse de clichés de microscopie électronique dans le Tableau 3-2. Ce tableau intègre aussi les rapports existant entre les dimensions fractales déterminées au cours de cette étude et les valeurs obtenues par analyse MET.

Tableau 3-2 : Synthèse des valeurs de dimension fractale déterminées par l'analyse en série DMA-ELPI

Combustible	D _f MET	Gamme de diamètres (nm)		Gamme de diamètres (nm)	
		D _f Van Guljik	D _f Van Guljik	D _f Van Guljik/D _f MET	D _f Van Guljik/D _f MET
Acétylène	1,93	100 - 500 nm		100 - 500 nm	
		2,25		1,17	
Toluène	1,81	60 - 100 nm	150 - 540 nm	60 - 100 nm	150 - 540 nm
		2,86	2,16	1,58	1,19
PMMA	1,72	60 - 100 nm	150 - 540 nm	60 - 100 nm	150 - 540 nm
		3,07	2,04	1,78	1,19

Pour les particules dont le diamètre de mobilité électrique est inférieur à 100 nm, la dimension fractale proche de 3, souligne une morphologie très compacte. A l'inverse si on considère les agrégats de diamètre de mobilité électrique supérieur à 100 nm, on retrouve des dimensions fractales comprises entre 2 et 2,3, dimensions fractales systématiquement supérieures à celles déterminées par analyse MET et une discussion sur ce point sera effectuée dans le paragraphe 3.2.4.

3.2.3.4 Détermination de la masse volumique effective et de la dimension fractale

A partir de la relation expérimentale $D_a=f(D_m)$ présentée sur la Figure 3-5 et à l'aide de la relation (3-27) introduite dans le paragraphe 3.2.1.2, nous pouvons établir la fonction d'évolution de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique et du diamètre aérodynamique. Nous n'avons représenté que les diamètres supérieurs à 150 nm qui correspondent à des agrégats dont la morphologie est réellement fractale.

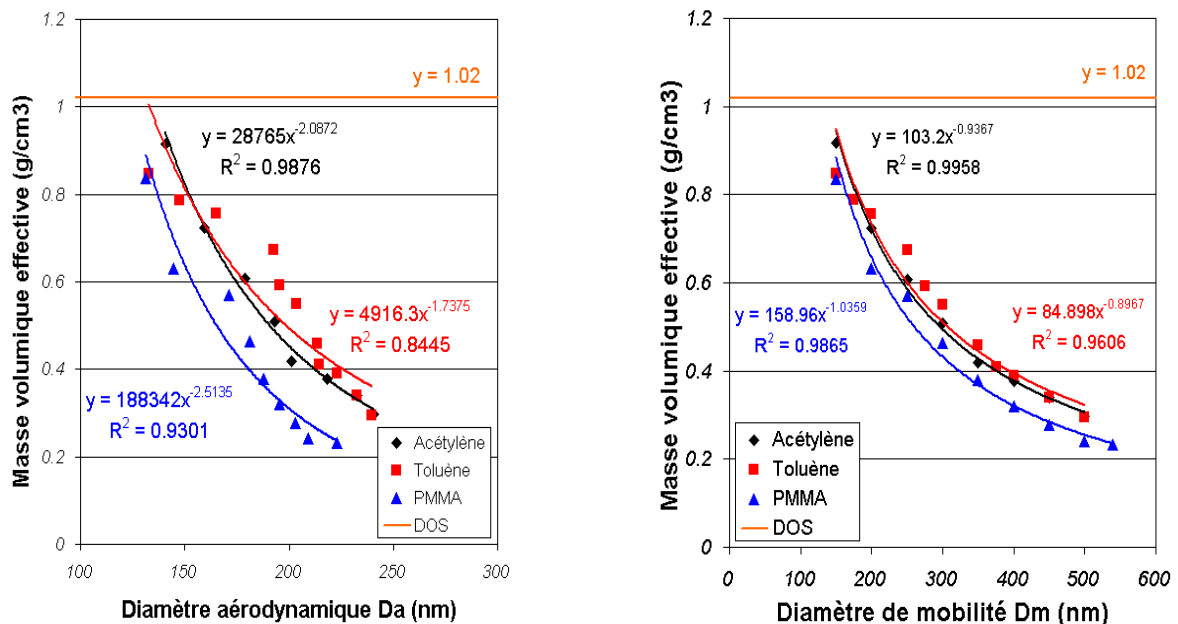


Figure 3-7 : Masse volumique effective en fonction du diamètre aérodynamique et de mobilité électrique

Pour le diamètre aérodynamique et pour le diamètre de mobilité électrique, la masse volumique effective semble évoluer en fonction de ces grandeurs selon une fonction puissance. On retrouve l'évolution théorique attendue entre la masse volumique effective et le diamètre de mobilité électrique :

$$\rho_e \propto D_m^{D_f - 3} \quad \text{Équation 3-33}$$

A partir de la connaissance de la masse volumique effective on s'intéresse à la détermination de la dimension fractale. On utilise l'approche détaillée dans le paragraphe 3.2.1.2 qui permet d'estimer le nombre de particules primaires N_p composant un agrégat de diamètre de mobilité électrique D_m . On détermine alors la dimension fractale de la même manière que pour l'analyse des clichés MET, on représente l'évolution du nombre de particules primaires en fonction du rapport du diamètre de mobilité électrique sur le diamètre des particules primaires. En représentation logarithmique la pente de la régression linéaire associée correspond à la dimension fractale. On retrouve sur la Figure 3-8 les résultats obtenus pour les trois combustibles.

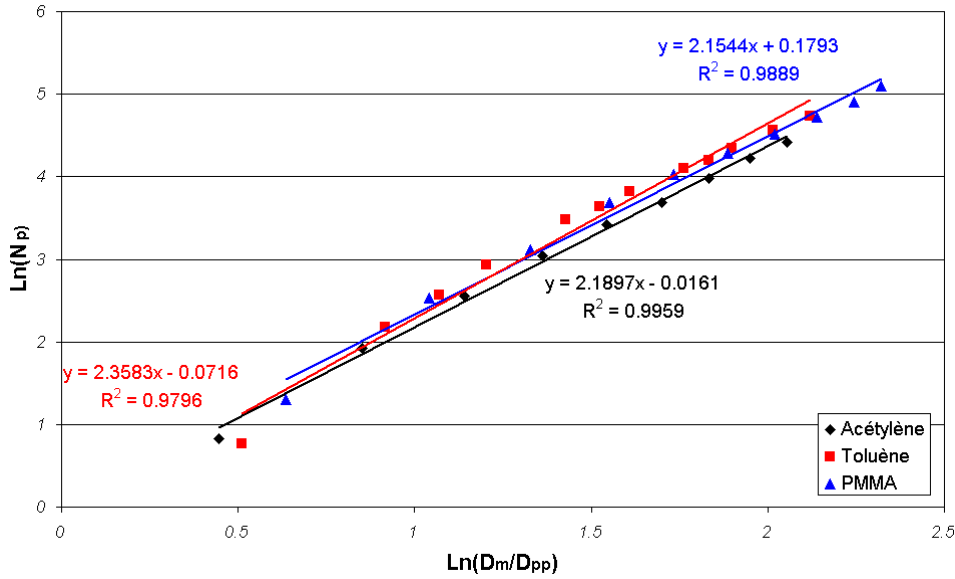


Figure 3-8 : Evolution du nombre de particules primaires en fonction du rapport D_m/D_{pp}

Tout comme pour l'analyse basée sur les travaux de Van Gulijk *et al.* (2004) on retrouve, dans le Tableau 3-3, des dimensions fractales sensiblement supérieures aux dimensions fractales issues de l'analyse MET.

Tableau 3-3 : Synthèse des dimensions fractales obtenues à partir de la masse volumique effective

Combustible	$D_{f\text{MET}}$	$D_{f\text{masse volumique}}$	$D_{f\text{masse volumique}}/D_{f\text{MET}}$
Acétylène	1,93	2,19	1,13
Toluène	1,81	2,36	1,30
PMMA	1,72	2,15	1,25

3.2.4 DISCUSSION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

L'analyse en série du diamètre de mobilité électrique et du diamètre aérodynamique permet donc de déterminer la masse volumique effective et la dimension fractale de particules de suie. On peut cependant souligner le fait qu'avec cette méthode les dimensions fractales sont systématiquement supérieures aux dimensions fractales déterminées par microscopie électronique. Nous remarquons que l'approche qui utilise les résultats obtenus avec le DMA en série avec l'ELPI repose sur une relation de proportionnalité existant entre le diamètre de giration et le diamètre de mobilité électrique. En effet on a écrit précédemment :

$$N_p \propto \left(\frac{D_g}{D_{pp}}\right)^{D_f} \propto \left(\frac{D_m}{D_{pp}}\right)^{D_f} \quad \text{Équation 3-34}$$

Cette hypothèse de base (équation 3-1) peut être remise en question dans le cadre de notre étude. Pour cela nous avons souhaité déterminer les valeurs du rapport β qui est tel que :

$$\beta = \frac{D_g}{D_m} \quad \text{Équation 3-35}$$

3.2.4.1 Détermination expérimentale de la fonction d'évolution du rapport β

Le nombre de particules primaires composant un agrégat est tel que (formule 3-29, paragraphe 3.2.1.2) :

$$N_p = \frac{\rho_e \cdot D_m^3}{\rho_{pp} \cdot D_{pp}^3} \quad \text{Équation 3-36}$$

A partir du nombre N_p et en utilisant la relation fractale (1-4) on calcule le diamètre de giration associé au diamètre de mobilité :

$$N_p = k_{f\ MET} \cdot \left(\frac{D_g}{D_{pp}} \right)^{D_f\ MET} \quad \text{Équation 3-37}$$

Cette relation nécessite de connaître la dimension fractale D_f et le préfacteur fractal k_f , on utilise pour cela les valeurs de ces paramètres issues de l'analyse MET et on peut alors calculer le rapport β . Nous représentons sur la [Figure 3-9](#) les valeurs de ce rapport obtenues pour les trois combustibles en fonction du diamètre de mobilité électrique D_m et du nombre de particules primaires N_p . Sur cette figure on peut remarquer que le rapport β évolue assez fortement pour des agrégats dont le diamètre est inférieur à 250 nm (environ 40 particules primaires) puis devient constant au-delà de cette limite. Ceci a déjà été constaté dans les travaux théoriques de Rogak et Flagan (1990).

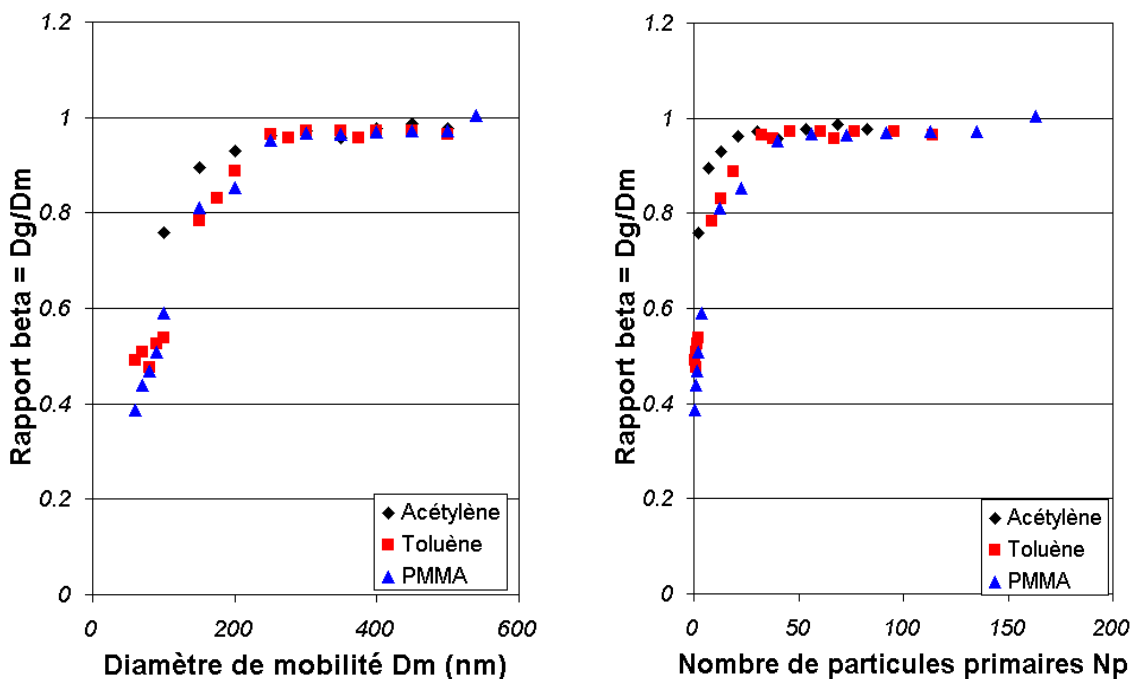


Figure 3-9 : Evolution du rapport β en fonction du diamètre de mobilité et du nombre de particules primaires

Ces résultats, particulièrement utiles afin de corriger les informations fournies par l'analyse en série du diamètre aérodynamique et du diamètre de mobilité électrique présentent cependant des valeurs limites du rapport β inférieures à 1, qui ne sont alors pas cohérentes avec les résultats présentés par Rogak et Flagan (1990). En effet celui-ci présente, pour des agrégats de dimension fractale de l'ordre de 1,79, des valeurs du rapport β comprises entre 1 et 1,5. Notre méthode de détermination de cette grandeur dépendant fortement des valeurs de dimension fractale D_f et préfacteur fractal k_f issues de l'analyse de clichés de microscopie

électronique, nous présentons sur la [Figure 3-10](#), l'évolution du rapport β en fonction du diamètre de mobilité électrique pour différentes valeurs de dimension fractale et de préfacteur fractal. Afin de ne pas alourdir cette figure nous ne détaillons que l'évolution de ce paramètre pour le cas de particules de suie d'acétylène pour un débit de ventilation de $100 \text{ m}^3/\text{h}$ ($D_f = 1,93$, $k_f = 1,68$).

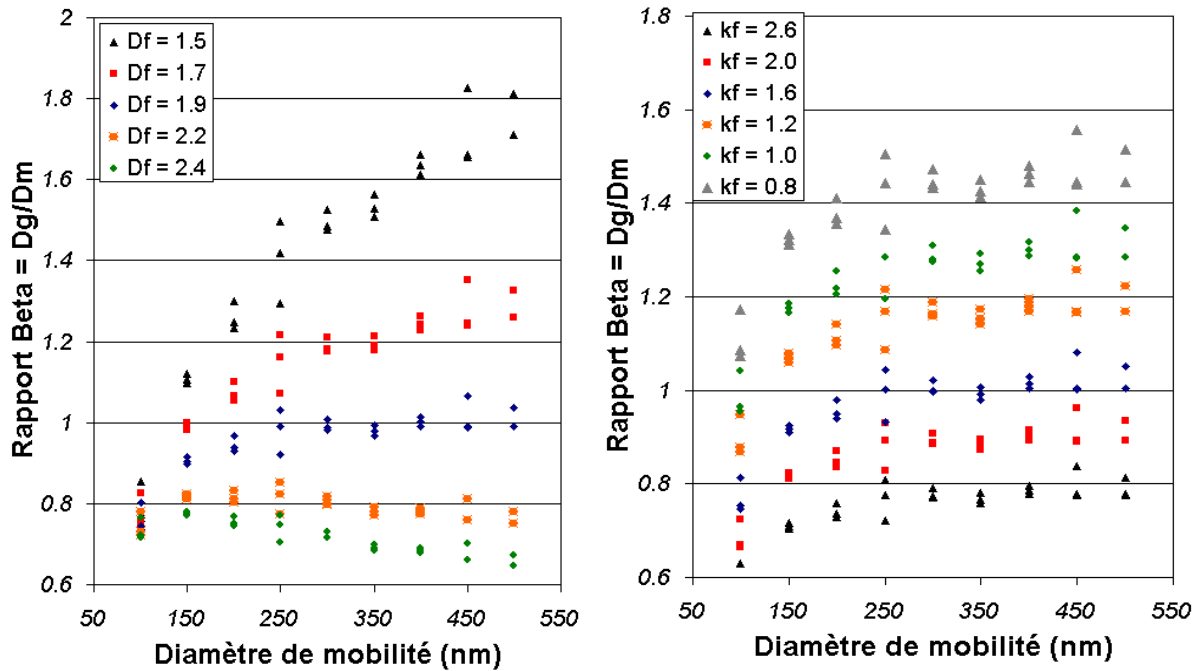


Figure 3-10 : Evolution du rapport β en fonction du diamètre de mobilité électrique pour différentes valeurs de D_f et de k_f , cas de particules de suie issues de la combustion de l'acétylène ($D_f = 1,93$, $k_f = 1,68$)

Ce rapport β est donc particulièrement sensible aux valeurs d'entrées de la dimension fractale D_f et du préfacteur fractal k_f . On retrouve alors des valeurs asymptotiques de ce rapport comprises entre 0,8 et 1,8 selon que l'on considère des dimensions fractales comprises entre 1,5 et 2,4 et des préfacteurs compris entre 0,8 et 2,6. Cette forte sensibilité du rapport β aux caractéristiques morphologiques explique donc en partie la valeur assez peu cohérente de la valeur limite apportée par cette technique. Afin de s'affranchir de cette incertitude liée à ces paramètres il conviendrait alors d'établir cette fonction d'évolution du rapport β sans utiliser les caractéristiques morphologiques (détermination du rayon de giration R_g par analyse MET de particules de suie en sortie d'un DMA par exemple). Cette valeur limite étant de plus fondamentale dans notre méthode d'inversion des propriétés optiques des particules de suie (voir paragraphe 5.6) nous présenterons une seconde méthode d'établissement de ce paramètre dans le paragraphe 5.6.2. Notre détermination de la dimension fractale à partir des données DMA-ELPI reposant essentiellement sur l'hypothèse d'un rapport β constant, nous avons refait notre analyse précédente (paragraphe 3.2.3) en ne prenant en compte que les diamètres de mobilité électrique supérieurs à 250 nm où le rapport β est alors constant.

3.2.4.2 Détermination de la dimension fractale pour des agrégats présentant un rapport β constant

La Figure 3-11 représente les résultats des deux approches précédemment détaillées mais cette fois-ci en n'intégrant que les agrégats de diamètre de mobilité électrique supérieur à 250 nm.

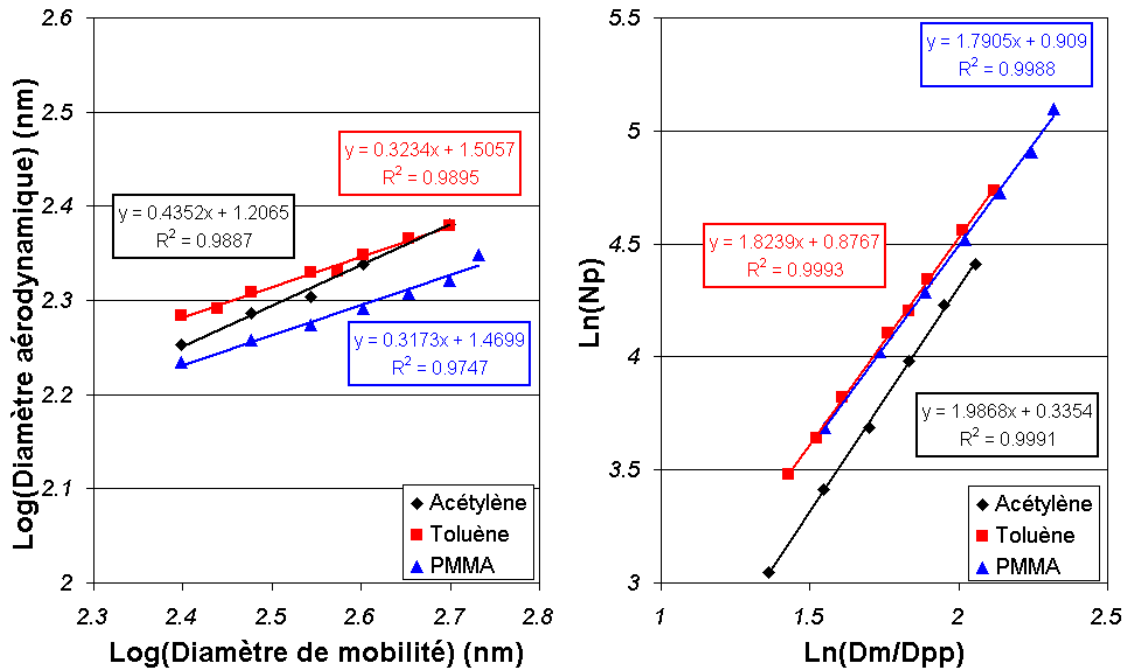


Figure 3-11 : Détermination de la dimension fractale par analyse en série DMA-ELPI pour des agrégats dont le diamètre de mobilité est supérieur à 250 nm, c'est à dire avec un rapport β constant

Les valeurs des dimensions fractales ainsi obtenues sont données dans le [Tableau 3-4](#). On retrouve cette fois-ci des valeurs de dimensions fractales particulièrement cohérentes entre elles, l'écart entre ces valeurs étant de l'ordre de l'incertitude constatée pour la dimension fractale à partir de l'analyse des clichés obtenus par microscopie électronique (voir paragraphe 2.7.3.3). Il convient cependant de souligner que cette approche utilise la dimension fractale MET qui est inférieure à 2 afin d'estimer la gamme de validité de l'hypothèse de constance du rapport β . On peut cependant se reporter à la [Figure 3-10](#) pour souligner le fait que le diamètre limite de mobilité électrique à partir duquel le rapport β est constant ne dépend pas de la valeur de la dimension fractale MET.

Tableau 3-4 : Synthèse des valeurs de dimensions fractales de l'analyse DMA-ELPI en série, sous l'hypothèse d'un rapport $\beta = D_g/D_m$ constant

Combustible	$D_{f\text{ MET}}$	$D_{f\text{ masse volumique}}$	$D_{f\text{ Van Gulijk}}$
Acétylène	1,93	1,99	2,05
Toluene	1,81	1,82	1,87
PMMA	1,72	1,79	1,85

3.2.5 CONCLUSIONS SUR L'ANALYSE EN SERIE DMA-ELPI

Le premier intérêt de cette étude en série a été la comparaison du diamètre aérodynamique avec le diamètre de mobilité électrique. Ceci nous a permis de considérer sous un autre angle les informations apportées par les dispositifs granulométriques SMPS et ELPI. La dimension fractale est un paramètre indispensable si l'on souhaite caractériser précisément des agrégats de suie. Sa détermination avec l'analyse des clichés de microscopie électronique est un processus assez délicat et nécessite une phase de post-traitement longue.

En parallèle nous avons montré que la détermination de cette grandeur était possible à partir de la comparaison du diamètre aérodynamique et du diamètre de mobilité électrique mais nécessitait cependant tout de même les informations issues de l'analyse de clichés par microscopie électronique. En effet il convient de considérer avec précaution les hypothèses de base de cette approche et tout particulièrement d'étudier des agrégats se situant dans la zone où le rapport β est constant. Ainsi si on considère tous les diamètres on obtient des dimensions fractales supérieures à 2 qui ne sont pas alors cohérentes avec celles obtenues par analyse de clichés de microscopie électronique. Cette étude nous a permis d'isoler l'origine de cette disparité qui est essentiellement l'hypothèse de proportionnalité entre le diamètre de giration et le diamètre de mobilité électrique. Ainsi, si l'on intègre dans la comparaison en série du diamètre de mobilité électrique et du diamètre aérodynamique, les particules de trop petits diamètres, le rapport β n'est plus constant et fausse la valeur ainsi établie de la dimension fractale. La connaissance, possible à partir de l'analyse de clichés de microscopie électronique, du diamètre des particules primaires et des caractéristiques fractales des agrégats est alors utile afin de situer le diamètre limite à partir duquel le rapport β est constant. Il serait donc intéressant d'établir pour différentes dimensions fractales et diamètres de particules primaires, le diamètre limite à partir duquel le rapport β peut être considéré constant. La méthode en série, couplée à l'analyse MET nous a permis d'établir la fonction d'évolution du rapport β en fonction du diamètre de mobilité électrique. Cette fonction est de plus utile pour la détermination de l'indice de réfraction des particules de suie.

Le troisième intérêt de cette étude comparative est la connaissance de la fonction d'évolution de la masse volumique effective en fonction du diamètre de mobilité électrique ou aérodynamique. En effet, la masse volumique effective est théoriquement constante pour des particules sphériques, mais pour des agrégats de morphologie fractale, on observe une évolution décroissante qui dépend de la dimension fractale. Les résultats obtenus expérimentalement se sont alors montrés très cohérents avec les fonctions théoriques attendues. La connaissance de la masse volumique effective permet d'estimer une distribution en masse à partir d'une distribution en nombre déterminée à l'aide d'un SMPS ou d'un ELPI. Ceci est intéressant, car cette transformation théorique du nombre en masse de particule est souvent très utile mais est toujours délicate à réaliser.

3.3 DISCUSSION SUR LE TRAITEMENT DES DONNEES DU SMPS

3.3.1 LE PHENOMENE DE CHARGES MULTIPLES DANS LE SMPS

Nous présentons dans ce paragraphe une réflexion menée sur le traitement des informations apportées par le granulomètre SMPS. Le principe de fonctionnement du SMPS a été décrit dans le paragraphe 2.6.1 (voir Figure 2-12). Le diamètre de mobilité électrique est donné par la formule 2-15 (paragraphe 2.6.1), que nous rappelons ici :

$$\frac{D_m}{C_c} = \frac{2 \cdot N \cdot e \cdot \bar{V} \cdot L_c}{3 \cdot \mu \cdot q_{sh} \cdot \ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)} \quad \text{Équation 3-38}$$

On voit intervenir dans cette relation l'état de charge N des particules qui est fourni avant l'entrée dans la colonne de l'analyseur grâce à un chargeur bipolaire de Krypton 85. La principale difficulté lors du traitement des données du SMPS réside dans la prise en compte de l'effet de charges multiples. En effet la relation (3-38) donne le lien entre le diamètre de mobilité électrique et la tension appliquée dans la colonne, mais il dépend du nombre N de charges portées par la particule. Le nombre de charges potentiellement portées par une particule dépend de son diamètre, ainsi la probabilité qu'une particule porte plus d'une charge sera d'autant plus grande que le diamètre de cette particule est important. La fonction de charge $\phi_N(D_p)$ d'une particule représente la probabilité que cette particule, de diamètre D_p , porte N charges. Cette fonction de charge a fait l'objet de nombreuses études et les fonctions employées dans le logiciel de traitement du SMPS sont basées sur les travaux de Wiedensohler *et al.* (1986 et 1988) et Fuchs (1963). On distingue alors deux fonctions de charge selon le nombre de charges considéré (Wiedensohler, 1988). La première relation est relative à des particules portant au plus N=2 charges et elle est valable pour des particules comprises entre 1 et 1000 nm :

$$1 \text{ nm} \leq D_p \leq 1000 \text{ nm pour } N = -1, 0, 1$$

$$20 \text{ nm} \leq D_p \leq 1000 \text{ nm pour } N = -2, 2$$

$$D_p = 20 \text{ nm pour } N = 1$$

$$\phi_N(D_p) = 10^{\left[\sum_{i=0}^5 a_i(N) \cdot (\log D_p)^i \right]} \quad \text{Équation 3-39}$$

Les coefficients $a_i(N)$ sont présentés dans le [Tableau 3-5](#) :

Tableau 3-5 : Constantes utilisées dans la relation (3-39)

$a_i(N)$	N=-2	N=-1	N=0	N=1	N=2
a_0	-26.3328	-2.3197	-0.0003	-2.3484	-44.4756
a_1	35.9044	0.6175	-0.1014	0.6044	79.3772
a_2	-21.4608	0.6201	0.3073	0.4800	-62.8900
a_3	7.0867	-0.1105	-0.3372	0.0013	26.4492
a_4	-1.3088	-0.1260	0.1023	-0.1553	-5.7480
a_5	0.1051	0.0297	-0.0105	0.0320	0.5049

Pour la fraction de particules portant 3 ou plus de charges :

$$\phi_N(D_p) = \frac{e}{\sqrt{4\pi^2 \cdot \epsilon_0 \cdot D_p \cdot k \cdot T}} \cdot \exp \left[- \frac{\left[N - \frac{2\pi \cdot \epsilon_0 \cdot D_p \cdot k \cdot T}{e^2} \cdot \ln \left(\frac{Z_{i+}}{Z_{i-}} \right) \right]^2}{2 \cdot \frac{2\pi \cdot \epsilon_0 \cdot D_p \cdot k \cdot T}{e^2}} \right] \quad \text{Équation 3-40}$$

Avec :

e = charge élémentaire : $1,6 \cdot 10^{-19}$ C

ϵ_0 = constante diélectrique : $8,85 \cdot 10^{-12}$ farad/m

k = constante de Boltzmann : $1,38 \cdot 10^{-23}$ J/K

T = température K

Z_{i+}/Z_{i-} = rapport des mobilités des ions : 0,875 (Wiedensohler *et al.*, 1986)

Nous représentons sur la Figure 3-12 les fonctions de charge $\phi_N(D_p)$ (pour $N = +1, +2, +3, +4$) d'une particule de diamètre D_p et l'évolution de la mobilité électrique en fonction du rapport du diamètre des particules portant 1, 2, 3 ou 4 charges sur le facteur de correction de Cunningham correspondant.

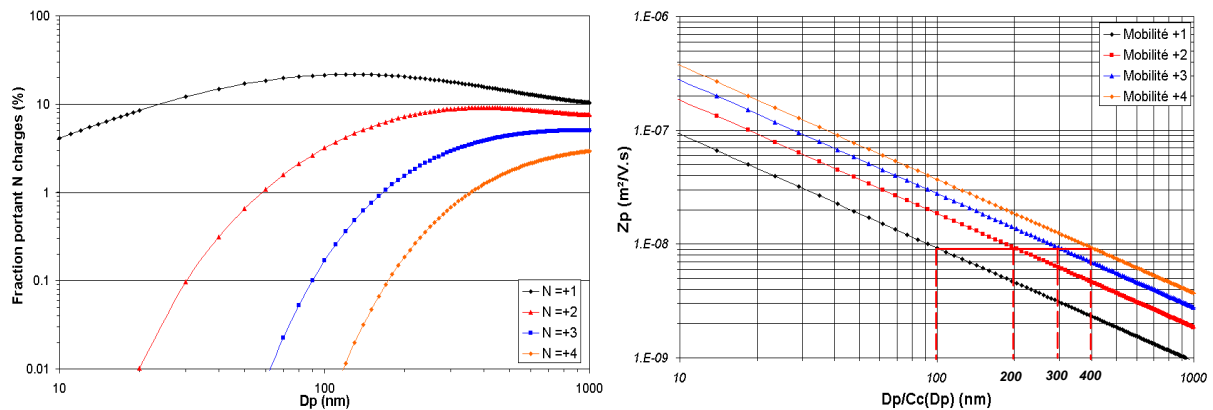


Figure 3-12 : Fraction de particules portant N charges en fonction de leur diamètre (à gauche) et évolution de la mobilité électrique pour N charges en fonction du rapport diamètre des particules sur facteur de correction de Cunningham correspondant (à droite)

On voit ainsi qu'à chaque mobilité électrique, correspond quatre particules de diamètres de mobilité électrique différents et portant respectivement 1, 2, 3 et 4 charges. Lors de l'analyse d'un échantillon de particules de tailles différentes, l'influence de cet artéfact sera fonction de la distribution des diamètres. S'il existe peu de grosses particules dans l'échantillon, il n'est pas nécessaire de faire une correction de charges multiples. Mais dans le cas présent, les fumées d'incendie contiennent beaucoup d'aérosols dont la taille peut être de l'ordre du micromètre et plus. C'est pourquoi cette correction doit être effectuée avec précision. Cette correction consiste à supprimer dans le comptage de chaque classe de mobilité électrique les particules portant plus d'une charge. Nous présentons ici la méthode de traitement utilisée dans le logiciel commercial du SMPS.

3.3.2 LA METHODE ACTUELLE POUR CORRIGER LES DONNEES SMPS

La difficulté majeure est donc de relier le diamètre de mobilité électrique d'une particule portant une charge aux diamètres de mobilité électrique des particules portant 2, 3 ou 4 charges mais ayant même mobilité électrique. Cette difficulté, dans le cas du SMPS, est contournée en sélectionnant judicieusement les classes balayées de diamètre de mobilité électrique. Pour le SMPS employé dans cette étude nous avons ainsi la relation suivante entre les diamètres de différentes classes qui ont la même mobilité électrique :

$$Z_{p1}(D_i) = Z_{p2}(D_{i+10}) = Z_{p3}(D_{i+16}) = Z_{p4}(D_{i+20}) \quad \text{Équation 3-41}$$

Où les mobilités indicées Z_{p1} , Z_{p2} , Z_{p3} et Z_{p4} correspondent aux mobilités électriques de particules portant respectivement 1, 2, 3 et 4 charges. On peut à l'aide de la relation (3-41) définir la réponse $R(D_i)$ du SMPS pour une classe de diamètre D_i :

$$R(D_i) = \phi(D_i) \cdot N(D_i) + \phi_2(D_{i+10}) \cdot N(D_{i+10}) + \phi_3(D_{i+16}) \cdot N(D_{i+16}) + \phi_4(D_{i+20}) \cdot N(D_{i+20}) \quad \text{Équation 3-42}$$

Avec :

$\phi_N(D_i)$ = fraction des particules de diamètres D_i portant N charges

$N(D_i)$ = nombre de particules présentes dans la classe D_i

Le nombre de particules de diamètre D_i , portant 1 charge et présentes dans la classe de mobilité Z_{p1} est tel que :

$$N(D_i) = \frac{R(D_i) - \phi_2(D_{i+10}) \cdot N(D_{i+10}) - \phi_3(D_{i+16}) \cdot N(D_{i+16}) - \phi_4(D_{i+20}) \cdot N(D_{i+20})}{\phi(D_i)} \quad \text{Équation 3-43}$$

On applique cette correction dans le sens décroissant des diamètres de mobilité électrique afin d'intégrer la correction pour une classe D_i à partir des informations déjà corrigées des classes D_{i+10} , D_{i+16} et D_{i+20} . On voit alors la nécessité d'une condition limite supérieure pour la distribution granulométrique. Elle est imposée par le diamètre de coupure de l'impacteur présent à l'entrée du DMA (voir [Figure 2-15](#)). La définition du diamètre de coupure et le principe de l'impacteur ont été présentés dans le paragraphe 2.6.1.4. Il est important de rappeler que le diamètre de coupure de cet impacteur correspond à un diamètre aérodynamique et non à un diamètre de mobilité électrique. Dans le logiciel commercial, la valeur de ce diamètre aérodynamique est convertie en diamètre de mobilité électrique et est alors considérée comme diamètre de coupure, et elle est utilisée comme la condition limite supérieure dans la méthode de correction de charges multiples. Ainsi au-delà de ce diamètre, le logiciel considère qu'aucune particule n'est détectée et que les 10 classes de diamètres inférieures à ce diamètre de coupure sont composées de particules chargées une seule fois. Ceci est illustré avec les résultats reportés sur la [Figure 3-13](#) qui correspond à un cas de suies générées par la combustion de l'acétylène. La correction de charge est celle fournie par le logiciel de l'appareil.

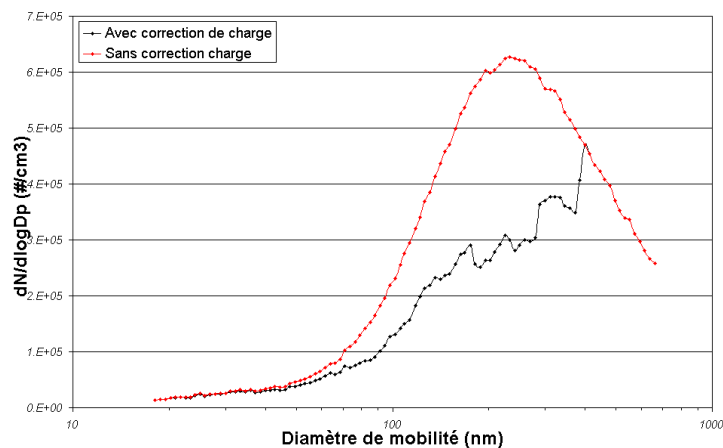


Figure 3-13 : Distribution granulométrique corrigée et non-corrigée pour des suies d'acétylène

On voit assez clairement sur cette figure que la distribution corrigée présente un aspect torturé et une évolution anormale, elle est difficilement exploitable comparée à la distribution non-corrigée. On remarque de plus que le nombre de particules dans les classes proches du diamètre de coupure ($D_p = 658 \text{ nm}$) n'est pas négligeable et donc que la correction de charges multiples ne peut être ignorée. Sur la [Figure 3-13](#), nous observons qu'aucune correction de charges multiples n'est apportée sur les 10 classes inférieures à ce diamètre de coupure car le logiciel de traitement ne dispose pas d'information sur les particules au-delà de ce diamètre de coupure. Ainsi au-delà de ce diamètre, le logiciel considère qu'aucune particule n'est détectée et que les 10 classes de diamètres inférieures à ce diamètre de coupure sont composées de particules chargées une seule fois. Ces simplifications nous ont donc amené à reconsidérer ce problème de la correction de charge, ceci surtout à cause de la présence de suies de grandes tailles dans les fumées d'incendie.

Nous allons aborder un autre point important qui concerne la valeur du diamètre de coupure. Au cours de l'étude comparative en série DMA-ELPI, nous avons déterminé expérimentalement la relation existant entre le diamètre de mobilité électrique et le diamètre aérodynamique des agrégats de suie. La [Figure 3-5](#) montre cette relation qui, en considérant le cas des particules de suie d'acétylène, peut être mise sous la forme :

$$D_m = 0,01365 \cdot D_a^{1,9062} \quad \text{Équation 3-44}$$

Cette relation nous permet d'affirmer qu'à un diamètre aérodynamique de coupure de 658 nm, correspond, si la particule est chargée une fois, un diamètre de mobilité électrique d'environ 3 μm (pour l'exemple des suies d'acétylène). Le logiciel du SMPS considère qu'aucune particule de diamètre de mobilité électrique supérieur au diamètre de coupure (658 nm) existe dans l'échantillon rentrant dans le DMA. Ceci, pour des particules de suie, est faux et la distribution granulométrique de l'échantillon entrant peut, quant à elle, contenir de telles particules. Elles seront comptabilisées dans les classes du SMPS si elles portent plus d'une charge. Nous avons donc souhaité développer une nouvelle méthode de traitement des données SMPS.

La première phase de ce travail vise à souligner l'influence du diamètre de coupure sur le traitement des données du SMPS. Nous avons ainsi souhaité représenter l'effet d'une mauvaise estimation du diamètre de coupure à l'entrée du DMA qui, rappelons le, joue le rôle de diamètre limite supérieur dans la correction de charges multiples. La seconde partie de ce travail a permis le développement d'un logiciel de traitement des données du SMPS intégrant des distributions granulométriques non-corrigées issues du logiciel commercial du SMPS. Le cas des distributions granulométriques obtenues pour des suies d'acétylène est pris comme exemple afin d'illustrer l'effet de ce nouveau logiciel de traitement.

3.3.3 INFLUENCE DU DIAMETRE DE COUPURE SUR L'INVERSION

Afin de souligner l'influence du diamètre de coupure sur le traitement des données et plus particulièrement l'influence de la non-prise en compte dans le traitement des particules de diamètre de mobilité électrique supérieur au diamètre de coupure, nous avons développé un programme représentant l'établissement d'une granulométrie à l'aide du SMPS et le traitement des données associé. Cette analyse théorique repose sur deux phases : 1-production d'une distribution granulométrique d'entrée du DMA et conversion en distribution granulométrique de mobilité électrique en sortie du DMA, 2-traitement des données en considérant les particules chargées une fois ou en corrigeant l'effet des charges multiples

3.3.3.1 Production et conversion d'une distribution granulométrique

Pour cette étape nous avons utilisé une distribution de type log-normale comme distribution granulométrique d'entrée du DMA. Cette distribution est issue du "lissage" de la distribution granulométrique non-corrigée obtenue à l'aide du SMPS pour des suies d'acétylène et ensuite étendue jusqu'à 3 µm afin de s'affranchir de l'effet de coupure inhérent au principe du SMPS. La conversion en distribution de mobilité électrique représentative des distributions en sortie du DMA est effectuée en considérant les fonctions de charges (3-39) et (3-40) et la construction de cette distribution repose sur la série (3-41) de mobilité électrique à 1, 2, 3 et 4 charges. Les classes de diamètres de la distribution initiale et "lissée" sont balayées et la réponse du SMPS pour chaque classe est déterminée à l'aide de la relation (3-43). Il convient de souligner que la distribution en mobilité électrique est établie, dans chacun des cas étudiés, à partir de la distribution étendue jusqu'à 3 µm. Cette limite de 3 µm, qui correspond au diamètre de coupure en mobilité électrique pour des agrégats, est particulièrement importante car nous effectuerons ensuite le traitement des données soit sur toute la distribution granulométrique en mobilité électrique, soit sur la distribution tronquée à partir du diamètre de coupure aérodynamique considéré par le logiciel du SMPS.

3.3.3.2 Traitement des données et correction de charges multiples

On s'assure de la validité de notre méthode de correction de charges multiples des données du SMPS en effectuant le processus inverse de traitement des granulométries converties à partir des relations (3-39), (3-40) et (3-41). On utilise la relation (3-43), en balayant dans le sens décroissant des diamètres, les classes de diamètres de la distribution. Afin de détailler le principe de la correction de charges multiples on introduit la notion de diamètre limite de la distribution. Ce diamètre correspond au diamètre de la dernière classe mesurée par le SMPS. Nous considérons ainsi dans la présente étude deux cas distincts, un premier cas où le diamètre limite correspond au diamètre de coupure imposé par le logiciel commercial du SMPS (c'est à dire le diamètre de mobilité électrique correspondant au diamètre aérodynamique de l'impacteur d'entrée du SMPS) et un second cas où le diamètre limite correspond au diamètre supérieur de la distribution synthétique étendue jusqu'à 3 µm et présentée dans le paragraphe 3.3.3.1. La condition limite de cette inversion repose donc sur les 20 premières classes inférieures à ce diamètre limite. En effet d'après la relation (3-41), les mobilités électriques à 1, 2, 3 et 4 charges des classes de diamètre i , $i+10$, $i+16$ et $i+20$ sont identiques. Pour les 10 classes D_i immédiatement inférieures au diamètre limite, aucune information n'est disponible sur les classes D_{i+10} , D_{i+16} et D_{i+20} . Dans ce cas on considère que les particules de cette classe ne sont chargées qu'une seule fois et aucune correction de charge n'est alors appliquée. Le même raisonnement est ensuite effectué pour les classes inférieures ($D_{\text{limite}-10} > D_i > D_{\text{limite}-16}$) mais ces particules pouvant être chargées 2 fois, puis on répète le raisonnement pour les particules pouvant être chargées 1, 2 et 3 fois ($D_{\text{limite}-16} > D_i > D_{\text{limite}-20}$) et enfin 1, 2, 3 et 4 fois pour le reste de la distribution. On distingue alors quatre classes de correction de charges :

- $D_{\text{limite}} > D_i > D_{\text{limite}-10}$

$$N(D_i) = \frac{R(D_i)}{\phi(D_i)} \quad \text{Équation 3-45}$$

- $D_{\text{limite}-10} > D_i > D_{\text{limite}-16}$

$$N(D_i) = \frac{R(D_i) - \phi_2(D_{i+10}) \cdot N(D_{i+10})}{\phi(D_i)} \quad \text{Équation 3-46}$$

- $D_{\text{limite-16}} > D_i > D_{\text{limite-20}}$

$$N(D_i) = \frac{R(D_i) - \phi_2(D_{i+10}) \cdot N(D_{i+10}) - \phi_3(D_{i+16}) \cdot N(D_{i+16})}{\phi(D_i)} \quad \text{Équation 3-47}$$

- $D_{\text{limite-20}} > D_i$

$$N(D_i) = \frac{R(D_i) - \phi_2(D_{i+10}) \cdot N(D_{i+10}) - \phi_3(D_{i+16}) \cdot N(D_{i+16}) - \phi_4(D_{i+20}) \cdot N(D_{i+20})}{\phi(D_i)} \quad \text{Équation 3-48}$$

3.3.3.3 Influence du diamètre de coupure sur le traitement des données

Nous présentons sur la [Figure 3-14](#) les résultats de notre analyse théorique, c'est à dire les distributions granulométriques obtenues après avoir appliqué le traitement précédent sur la distribution de mobilité électrique en sortie du DMA (déterminée au 3.3.3.1). Deux cas ont été considérées, un premier cas en effectuant le traitement sur la distribution complète de mobilité électrique pour des agrégats de suie de dimension fractale 1,9 ($d_{\text{coupure}} = 658 \text{ nm}$ donne alors un diamètre de mobilité électrique limite d'environ $3 \mu\text{m}$), et un second jusqu'au diamètre de coupure considéré par le logiciel commercial du SMPS ($d_{\text{limite}} = d_{\text{coupure}} = 658 \text{ nm}$ dans notre cas).

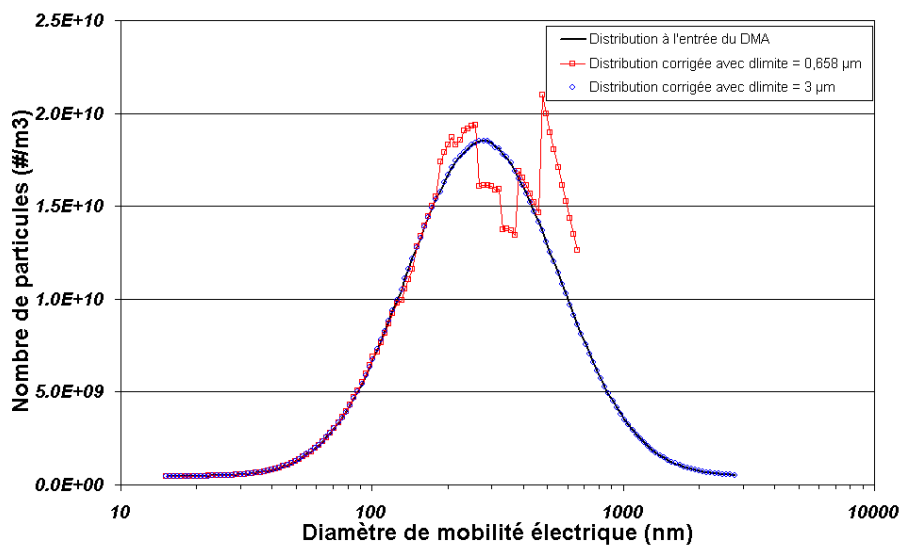


Figure 3-14 : Comparaison entre la distribution à l'entrée du DMA et la distribution corrigée en considérant la totalité de la distribution ($d_{\text{limite}} = 3 \mu\text{m}$) et une distribution tronquée ($d_{\text{limite}} = d_{\text{coupure}} = 0,658 \mu\text{m}$)

On voit tout d'abord que la correction est efficace si on considère dans le traitement la totalité de la distribution de mobilité électrique en sortie du DMA. En revanche, si on corrige la distribution en utilisant le diamètre de coupure du logiciel commercial du SMPS (658 nm), on obtient une distribution particulièrement torturée et peu représentative de la distribution granulométrique d'entrée du DMA. La principale explication vient du fait que les 10 premières classes proche du diamètre de coupure ne sont pas corrigées pour les charges multiples alors que ces classes comportent réellement des particules portant plus d'une charge. On surestime

alors la concentration en particules de ces classes et cela se répercute aussi sur les classes inférieures. Cette surestimation est particulièrement visible lorsque l'on compare la distribution corrigée à partir de la distribution étendue jusqu'à 3 µm à la distribution qui ne considère aucune correction de charges multiples et qui présente les mêmes nombres de particules sur les 10 premières classes inférieures au diamètre de coupure de 658 nm (Figure 3-15). Les flèches sur cette figure montrent bien la sur-estimation qui est faite pour ces 10 classes immédiatement inférieures au diamètre de coupure mais aussi pour quelques classes bien inférieures à ce diamètre.

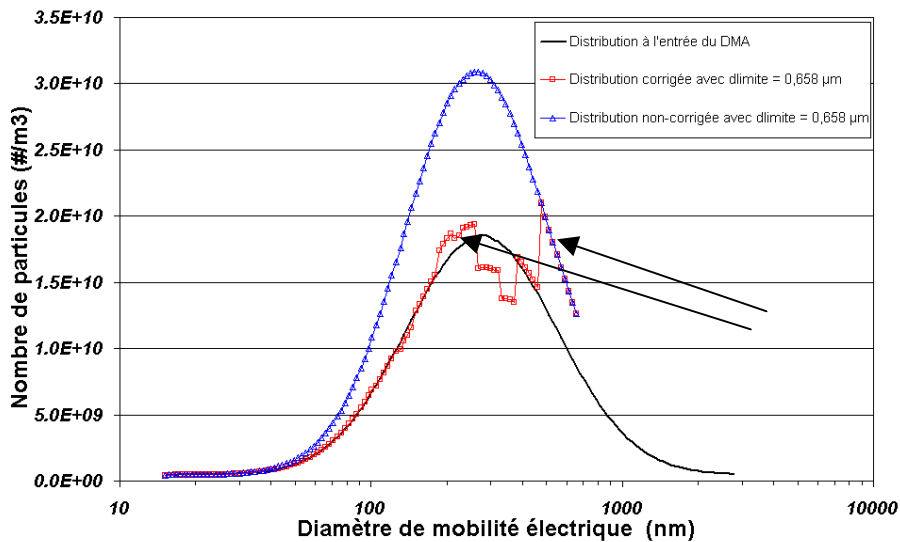


Figure 3-15 : Comparaison entre la distribution à l'entrée du DMA et les distributions granulométriques corrigée et non-corrigée en considérant un diamètre limite identique au diamètre de coupure (0,658 µm)

On comprend mieux maintenant l'allure de la distribution corrigée de la Figure 3-13. On voit à travers la Figure 3-13 et la Figure 3-15 l'erreur induite par la correction de charges lorsqu'elle est appliquée sur une distribution tronquée au niveau du diamètre de coupure. Nous avons donc souhaité obtenir, à partir de la distribution granulométrique non-corrigée fournie par le logiciel commercial du SMPS (chaque classe ne comporte que des particules chargées une seule fois), une distribution corrigée de l'effet de charges multiples mais qui ne présente pas les défauts présentés Figure 3-13 et Figure 3-15.

3.3.3.4 Traitement des données à partir de la distribution non-corrigée

Les distributions dites "non-corrigées" issues du logiciel commercial du SMPS correspondent à un calcul qui ne considère les particules chargées qu'une fois. Pour toutes les classes de la distribution (jusqu'à 3 µm dans notre cas) le nombre N_i de particules qui est fourni par le logiciel du SMPS est tel que :

$$N_i(D_i) = \frac{R(D_i)}{\phi_i(D_i)} \quad \text{Équation 3-49}$$

ou R est la réponse du SMPS pour la classe i de particules.

On effectue la correction de charge multiple sur les classes décroissantes de la manière suivante :

- $D_{\text{limite}} > D_i > D_{\text{limite} - 10}$

$$N(D_i) = N_i(D_i) \quad \text{Équation 3-50}$$

- $D_{\text{limite}-10} > D_i > D_{\text{limite} - 16}$

$$N(D_i) = N_i(D_i) - \frac{\phi_2(D_{i+10})}{\phi_1(D_i)} \cdot N(D_{i+10}) \quad \text{Équation 3-51}$$

- $D_{\text{limite}-16} > D_i > D_{\text{limite} - 20}$

$$N(D_i) = N_i(D_i) - \frac{\phi_2(D_{i+10})}{\phi_1(D_i)} \cdot N(D_{i+10}) - \frac{\phi_3(D_{i+16})}{\phi_1(D_i)} \cdot N(D_{i+16}) \quad \text{Équation 3-52}$$

- $D_{\text{limite}-20} > D_i$

$$N(D_i) = N_i(D_i) - \frac{\phi_2(D_{i+10})}{\phi_1(D_i)} \cdot N(D_{i+10}) - \frac{\phi_3(D_{i+16})}{\phi_1(D_i)} \cdot N(D_{i+16}) - \frac{\phi_4(D_{i+20})}{\phi_1(D_i)} \cdot N(D_{i+20}) \quad \text{Équation 3-53}$$

Nous avons appliqué ce traitement à la distribution granulométrique non-corrigée présentée sur la [Figure 3-15](#). Cette distribution est ensuite comparée à la distribution granulométrique en entrée du DMA (la réelle distribution en diamètre de l'aérosol en entrée du DMA) comme on peut le voir sur la [Figure 3-16](#). Nous représentons de plus la distribution non-corrigée, sans appliquer de correction de charges multiples et en considérant que les classes de la distribution ne comportent que des particules ne portant qu'une seule charge.

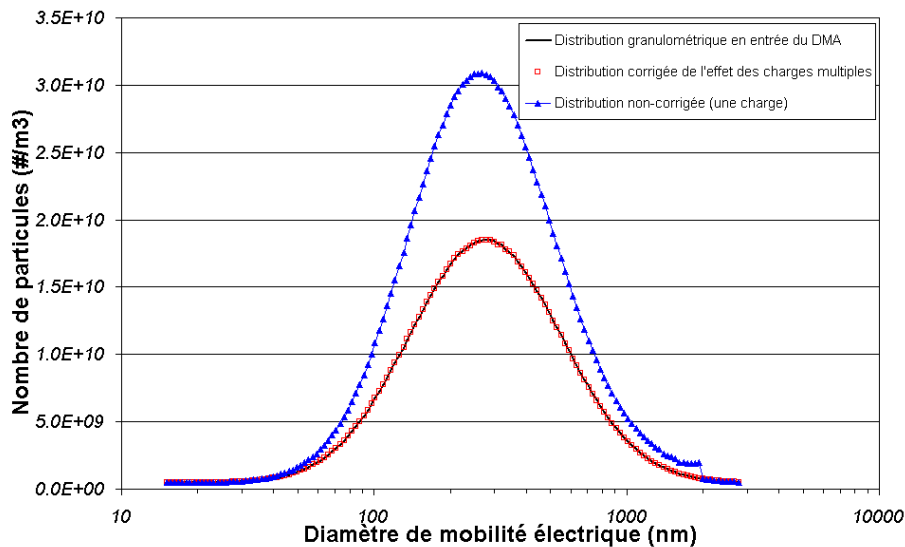


Figure 3-16 : Comparaison de la distribution corrigée avec la distribution granulométrique en entrée du DMA et la distribution non-corrigée étendue jusqu'à 3 µm

On observe ainsi une parfaite concordance entre la distribution granulométrique d'entrée du DMA et la distribution issue du traitement prenant en compte les charges multiples de la distribution non-corrigée fournie par le logiciel du SMPS. Nous avons suite à cette validation numérique de notre méthode d'inversion, appliqué cette approche non plus à une distribution théorique mais aux distributions expérimentales observées pour les suies d'acétylène.

3.3.4 LA METHODE PROPOSEE POUR TRAITER LES DONNEES SMPS

Comme nous venons de le montrer, le traitement de correction de charges multiples est efficace si on connaît la distribution non-corrigée mais complète de l'aérosol, c'est à dire jusqu'à 3 µm. La distribution obtenue par le SMPS étant tronquée au niveau du diamètre de coupure, on lui applique un "lissage" log-normal :

$$y = a + b \cdot \exp\left(-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln\left(\frac{x}{c}\right)}{d}\right)^2\right) \quad \text{Équation 3-54}$$

La distribution est alors étendue jusqu'à un diamètre de mobilité électrique de 3 µm. On retrouve pour le cas de l'acétylène sur la [Figure 3-17](#) la distribution SMPS non-corrigée, tronquée ($d_{\text{coupure}}=0,658 \mu\text{m}$) et issue du logiciel commercial du SMPS ainsi que la distribution "lissée" correspondante et étendue jusqu'à 3 µm.

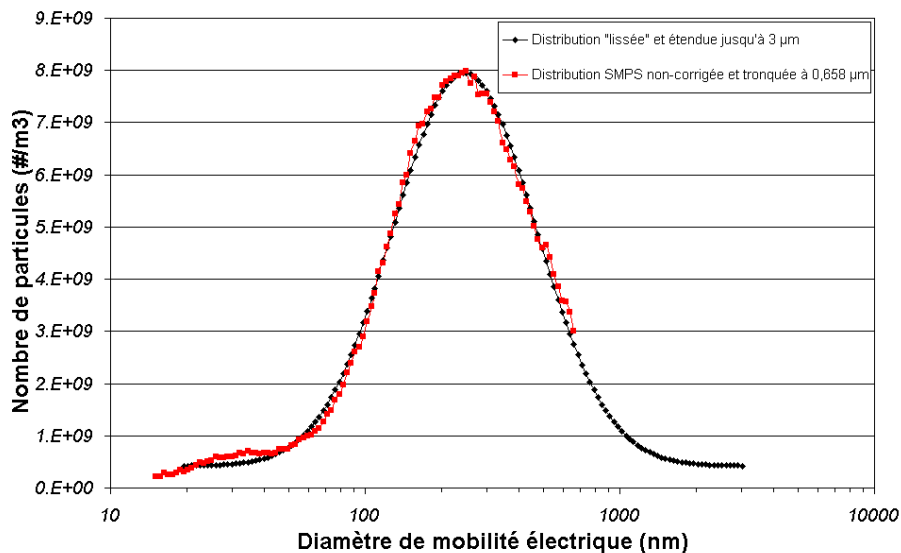


Figure 3-17: Distribution non-corrigée issue du logiciel commercial du SMPS et distribution "lissée" et étendue pour des agrégats de suie d'acétylène

Cette distribution étendue est ensuite corrigée à l'aide des relations (3-50) à (3-53) utilisées dans notre logiciel de traitement. Cela permet de déterminer la distribution réelle de l'échantillon de particules à l'entrée du SMPS. En parallèle de ce traitement nous avons effectué un "lissage" log-normal de la distribution corrigée par le SMPS et en considérant uniquement les classes de diamètres inférieurs à 200 nm pour lesquelles l'effet des charges multiples est minime. Cette distribution ne devrait pas être très différente de celle issue de notre traitement. C'est ce que l'on aperçoit sur la [Figure 3-18](#). On retrouve la distribution corrigée à l'aide de notre traitement et qui doit représenter la distribution à l'entrée du SMPS, la distribution corrigée par le logiciel commercial du SMPS ainsi que le "lissage" de cette distribution pour des diamètres de mobilité inférieurs à 200 nm.

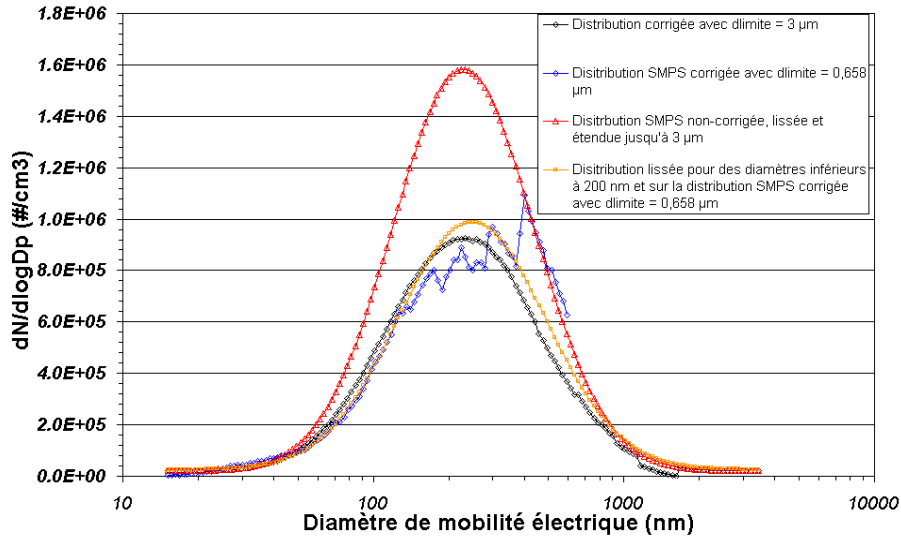


Figure 3-18 : Comparaison de la distribution SMPS non-corrigée, "lissée" et étendue jusqu'à 3 µm avec les distributions corrigées avec $d_{limite} = 0,658$ et 3 µm et la distribution "lissée" pour des diamètres inférieurs à 200 nm et sur la distribution SMPS corrigée avec $d_{limite} = 0,658$ µm.

On remarque tout d'abord que la distribution non-corrigée "lissée" représente assez bien la forme de la distribution granulométrique d'entrée du DMA même si le nombre est largement sur-estimé. On peut ainsi considérer que cette distribution non-corrigée est adaptée à la détermination des informations granulométriques de l'aérosol de suies (diamètre médian, diamètre modal, écart-type). Ce choix induit, par exemple, une incertitude de 6 % du mode de la distribution non-corrigée par rapport à la distribution corrigée par nos soins. En revanche, si on recherche une information sur le nombre de particules, il convient de considérer la distribution obtenue à partir de notre logiciel de traitement.

3.4 TRAITEMENT DES DONNEES DE L'ELPI

3.4.1 DETERMINATION DE LA DISTRIBUTION EN NOMBRE DE PARTICULES

Nous présentons dans cette partie la réflexion menée sur le traitement des données de l'ELPI. Le principe de fonctionnement de l'ELPI ayant déjà été présenté dans la partie 2.6.2 nous nous attarderons plus particulièrement sur le processus de charge des particules. La concentration en nombre de particules est alors telle que :

$$C = \frac{I}{P.N.e.Q} \quad \text{Équation 3-55}$$

avec :

C : concentration en nombre de particules (#/cm³)

I : courant mesuré (A)

P : pénétration à travers le chargeur

N : nombre de charges portées par la particule

e : charge d'un électron ($1,6 \cdot 10^{-19}$ C)

Q : débit volumique (9,6 L/min)

La détermination de la concentration en nombre de particules passe par la connaissance de la loi de charge P.N des particules. Il convient donc d'établir cette efficacité de charge qui dépend du diamètre des particules. Elle a été déterminée expérimentalement par Marjamäki *et al.* (2000) à l'aide d'un aérosol de référence et du montage expérimental présenté sur la Figure 3-19. Nous présentons son expérience ci-dessous.

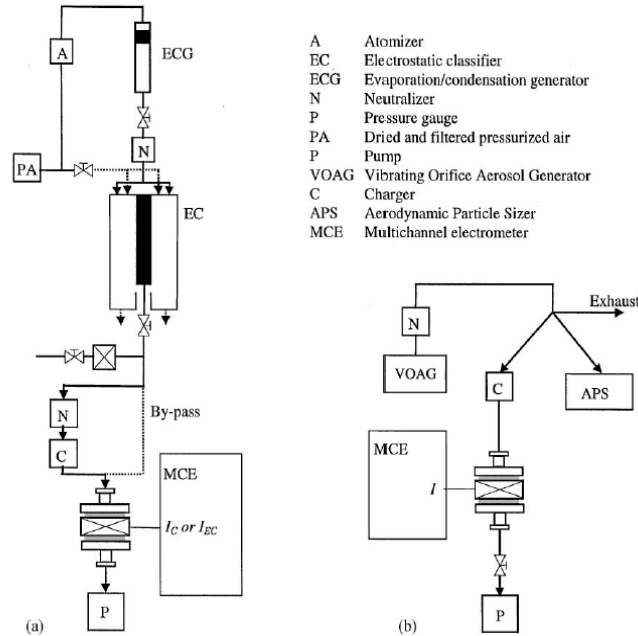


Fig. 3. Calibration setup for the charger for the particles smaller than $0.9 \mu\text{m}$ (a) and particles larger than $0.9 \mu\text{m}$ (b).

Figure 3-19 : Dispositif expérimental d'établissement de la loi de charge de l'ELPI (Marjamäki *et al.*, 2000)

L'aérosol utilisé est composé de gouttes de DOS (DiOctyl Sébaçate) ou de particules de NaCl et il est généré à l'aide d'un atomiseur ($D_p < 0,9 \mu\text{m}$) et d'un générateur à orifice vibrant ($D_p > 0,9 \mu\text{m}$).

Pour les particules inférieures à $0,9 \mu\text{m}$, on sélectionne un diamètre de mobilité électrique à l'aide d'un classificateur électrostatique et le courant I_C induit par les particules, issues du classificateur électrostatique, est mesuré à l'aide d'un électromètre. L'aérosol est ensuite neutralisé électriquement et passe à travers le chargeur à effet couronne. On mesure alors le courant I_{EC} induit par les particules dont la charge est imposée par le chargeur à effet couronne. L'efficacité de charge de l'ELPI correspond alors au rapport des deux courants I_C et I_{EC} mesurés :

$$\frac{I_C}{I_{EC}} = \frac{N_C \cdot N \cdot e \cdot Q}{N_{EC} \cdot e \cdot Q} = P \cdot N \quad \text{Équation 3-56}$$

ou N_C et N_{EC} sont les concentrations en nombre de particules à l'entrée et à la sortie du chargeur.

Pour les particules dont le diamètre est supérieur à $0,9 \mu\text{m}$, la concentration en nombre est déterminée à l'aide d'un Aerodynamic Particle Sizer (APS) puis elles sont chargées à l'aide du chargeur à effet couronne et le courant est déterminé à l'aide d'un électromètre. La fonction de charge est alors déterminée directement à partir de la relation (3-55). Une fonction (Figure 2-17) représentant les données expérimentales a été établie par Marjamäki *et al.* (2000) pour trois classes de diamètres :

- $D_p < 0,095 \mu\text{m}$:

$$P.N = 4,48.D_p^{1,9087} \quad \text{Équation 3-57}$$

- $0,095 \mu\text{m} < D_p < 1,196 \mu\text{m}$:

$$P.N = 1,293.D_p^{1,3805} \quad \text{Équation 3-58}$$

- $1,196 \mu\text{m} < D_p$:

$$P.N = 1,3529.D_p^{1,1308} \quad \text{Équation 3-59}$$

Nous venons donc de voir que l'ELPI effectue une mesure du nombre de particules par unité de volume à l'aide d'une fonction de charge spécifique. Nous détaillons maintenant la méthode de calcul du nombre de particules à partir des diamètres de coupure de l'ELPI. Le diamètre aérodynamique de la classe considérée est déterminé à partir des diamètres de coupure :

$$D_a = \sqrt{D_{\text{coupure } i} \cdot D_{\text{coupure } i+1}} \quad \text{Équation 3-60}$$

Pour utiliser la fonction d'efficacité de charge il convient de déterminer le diamètre de Stokes :

$$D_{\text{Stokes}} = \frac{D_a}{\sqrt{\rho_{pp} \cdot \frac{C_c(D_{\text{Stokes}})}{C_c(D_a)}}} \quad \text{Équation 3-61}$$

Où le facteur de correction de Cunningham est déterminé à partir des pressions des différents étages de l'impacteur :

$$C_c(D_p) = 1 + \left(\frac{2}{76 \cdot D_p} \right) (6,32 + 2,01 \cdot \exp(-0,1095 \cdot 76 \cdot D_p)) \quad \text{Équation 3-62}$$

Pour calculer les fonctions de charge, on utilise les relations (3-57) (3-58) et (3-59) déterminées par Marjamäki et al. (2001). Le nombre de particules par unité de volume est alors déterminé à l'aide du courant mesuré par les électromètres de chacun des étages d'impaction de l'ELPI. Le Tableau 3-6 ci-dessous donne les valeurs des paramètres pour chaque classe de l'appareil ainsi qu'un exemple de conversion entre les courants mesurés par le ELPI et le nombre de particules de suie d'acétylène correspondant.

Tableau 3-6 : Valeurs des paramètres de chaque classe de l'ELPI employées pour le traitement des données et conversion entre courant mesuré par l'ELPI et nombre correspondant de particules de suie d'acétylène (masse volumique des particules primaires de $1,72 \text{ g/cm}^3$)

etage	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
Dcoupure (μm)	0.028	0.055	0.093	0.156	0.264	0.385	0.617	0.954	1.61	2.4	4.02	6.72	9.97
Daero (μm)	0.03924283	0.07151923	0.12044916	0.20293841	0.31881029	0.48738588	0.76721444	1.23933046	1.96570598	3.10612299	5.19753788	8.18525504	
Dstokes (μm)	0.02412617	0.04537975	0.07950216	0.1399998	0.22773677	0.35640825	0.57066859	0.93201325	1.4888319	2.36291446	3.96670287	6.25828798	
Pn	0.00358688	0.0119788	0.03493123	0.08387067	0.16417903	0.3046808	0.58353819	1.14859893	2.07731457	3.50221971	6.29147767	10.5361105	
I (A)	91.924675	263.412791	799.528205	1971.00251	3560.41857	4079.9016	728.032197	236.00371	86.5407425	78.6103569	63.8884118	60.6015872	
dN (#/cm ³)	256280.673	219899.11	228886.336	235004.984	216861.95	133907.406	12476.1704	2054.70947	416.599122	224.458667	101.547546	57.5179874	

3.4.2 DISCUSSIONS SUR LA METHODE DE TRAITEMENT DES DONNEES

Cette méthode d'établissement de la granulométrie dépend donc de la relation existant entre le diamètre aérodynamique et le diamètre de Stokes et encore plus de l'hypothèse visant à utiliser ce diamètre de Stokes dans les relations donnant la fonction de charge, qui, rappelons le, a été déterminée, pour les particules de diamètres inférieurs à $0,9 \mu\text{m}$, en effectuant une sélection à l'aide d'un classificateur électrostatique et donc une sélection sur un diamètre de mobilité électrique. Nous proposons ici d'effectuer l'inversion des données non pas en reliant le diamètre aérodynamique au diamètre de Stokes, mais en utilisant la relation expérimentale existant entre le diamètre de mobilité électrique et le diamètre aérodynamique déterminée pour nos agrégats de suie dans le paragraphe 3.2.3.2. Cette relation expérimentale est présentée pour les trois combustibles employés sur la Figure 3-20.

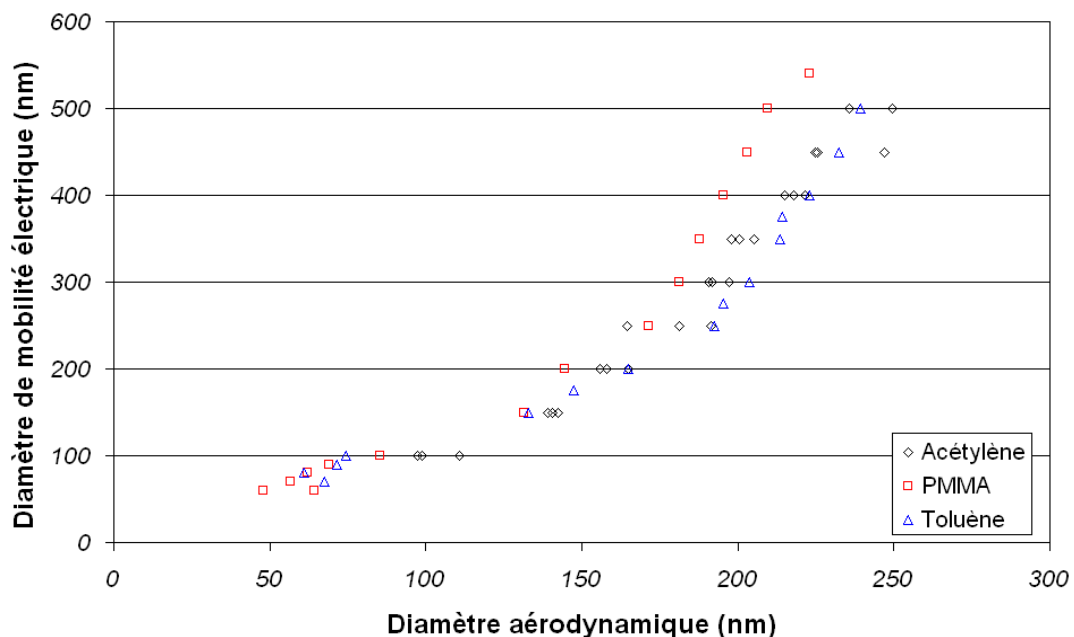


Figure 3-20 : Lien entre diamètre de mobilité électrique et aérodynamique pour des agrégats de suie

On intègre alors, pour les plateaux d'impaction de diamètre de coupure inférieur à $0,9 \mu\text{m}$ et dans les fonctions d'efficacité de charge, les diamètres de mobilité électrique correspondant aux diamètres médians aérodynamiques des plateaux d'impaction. Le processus d'établissement de la distribution est alors le suivant :

- détermination du diamètre de mobilité électrique à partir des diamètres de coupure de l'ELPI :

On utilise pour cela la relation déterminée expérimentalement et liant le diamètre de mobilité électrique au diamètre aérodynamique. On détermine ensuite le diamètre médian de mobilité correspondant à chacun des plateaux d'impaction.

- détermination du nombre de particules par unité de volume :

Suite à la détermination du diamètre de mobilité électrique correspondant, on applique la fonction d'efficacité de charge pour ces diamètres de mobilité électrique. On obtient alors pour une même classe de diamètre aérodynamique une fonction de transfert P.N différente de celle déterminée à l'aide du diamètre de Stokes. On représente sur la [Figure 3-21](#) l'évolution, en fonction du diamètre aérodynamique, du rapport entre la fonction déterminée à l'aide du diamètre de Stokes et celle déterminée à partir du diamètre de mobilité électrique.

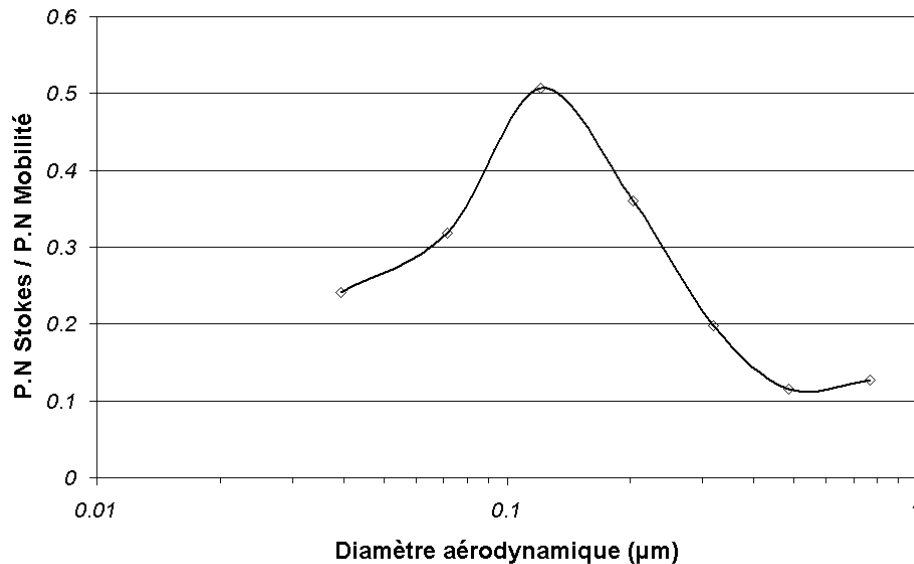


Figure 3-21 : Evolution du rapport des fonctions de charge calculées soit en fonction du diamètre de Stokes soit en fonction du diamètre de mobilité électrique.

On voit à travers cette figure que l'effet de cette fonction de transfert est prédominant sur toute la gamme de diamètre aérodynamique. Cet effet peut alors induire une estimation faussée de la concentration en nombre de l'aérosol étudié. Dans notre cas, pour des particules de 0,5 µm la fonction de transfert déterminée à partir du diamètre de Stokes est nettement inférieure à celle déterminée à partir du diamètre de mobilité électrique (rapport de l'ordre de 0,1). La concentration étant inversement proportionnelle à cette fonction de charge, on trouve ainsi logiquement une concentration en nombre supérieure d'un facteur 10 à celle déterminée à partir des diamètres de mobilité électrique. Afin de souligner cet effet on représente sur la [Figure 3-22](#) l'évolution du rapport entre les concentrations en nombre déterminées à partir du diamètre de Stokes et celles déterminées à partir du diamètre de mobilité électrique dans la fonction de charge. En supposant que la fonction de charge fondée sur le diamètre de mobilité électrique est la plus correcte, on voit clairement que la concentration numérique, pour des particules de diamètre aérodynamique inférieur à 0,9 µm est systématiquement surestimée d'un facteur compris entre 2 et 8, surestimation bien évidemment dramatique lorsque l'on souhaite obtenir une information sur la masse et une distribution en nombre représentative de l'aérosol de particules de suie étudié.

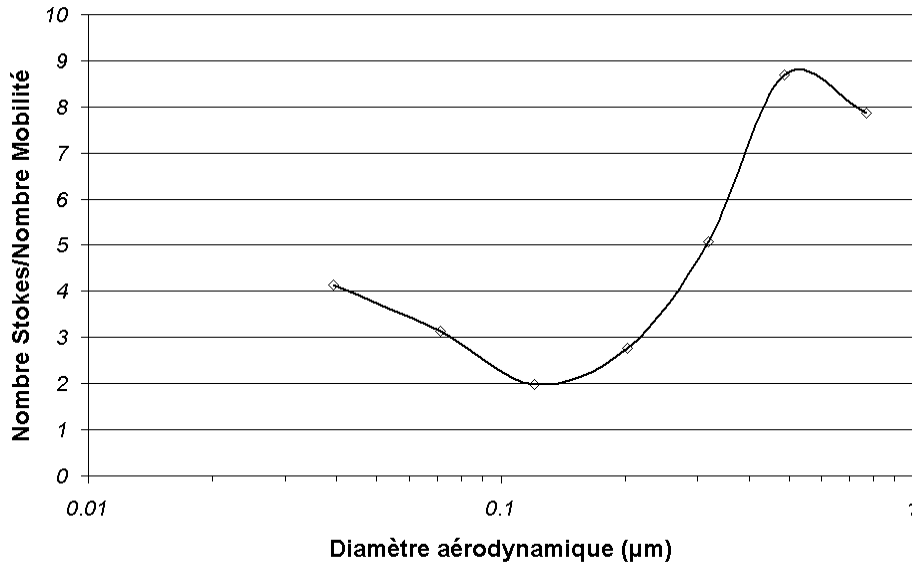


Figure 3-22 : Rapport entre le nombre de particules calculé à partir du diamètre de Stokes et le nombre de particules calculé à partir du diamètre de mobilité électrique

3.4.3 EXEMPLE DE TRAITEMENT DE DONNEES ELPI A PARTIR DE LA RELATION ENTRE LE DIAMETRE AERODYNAMIQUE ET LE DIAMETRE DE MOBILITE ELECTRIQUE

Nous illustrons ce traitement avec le cas des suies générées par la combustion du toluène. La relation expérimentale liant le diamètre de mobilité électrique au diamètre aérodynamique est présentée sur Figure 3-20. Une forme approchée analytique est :

$$D_a \leq 120 \text{ nm} : D_m = 1,2156.D_a - 0,8369 ; 120 \text{ nm} < D_a < 900 \text{ nm} : D_m = 0.0069.D_a^{2,023} \quad \text{Équation 3-63}$$

On peut alors, à partir des diamètres de coupure de l'ELPI déterminer le diamètre de mobilité électrique utilisable dans la fonction d'efficacité du chargeur à effet couronne. On applique donc les deux traitements possibles, qui dépendent de l'utilisation du diamètre de Stokes ou du diamètre de mobilité électrique dans le calcul de la fonction de charge. On représente sur la [Figure 3-23](#) les deux distributions granulométriques possibles ainsi que la distribution granulométrique SMPS. On retrouve sur la distribution issue du logiciel de l'ELPI (ELPI Diamètre de Stokes), un second mode qui est beaucoup plus marqué que sur la distribution SMPS. On peut de plus noter que la distribution issue du logiciel de l'ELPI présente un diamètre modal supérieur au diamètre de mobilité électrique observé sur la distribution SMPS. Ce second point représente le principal argument qui a justifié cette réflexion sur l'analyse des données obtenues par le ELPI. En effet théoriquement on s'attend, pour un agrégat donné de dimension fractale inférieure à 2 et de diamètre modal de mobilité de l'ordre de 200 nm à avoir un diamètre aérodynamique inférieur à 200 nm et proche de 150 nm pour les particules de suie de toluène

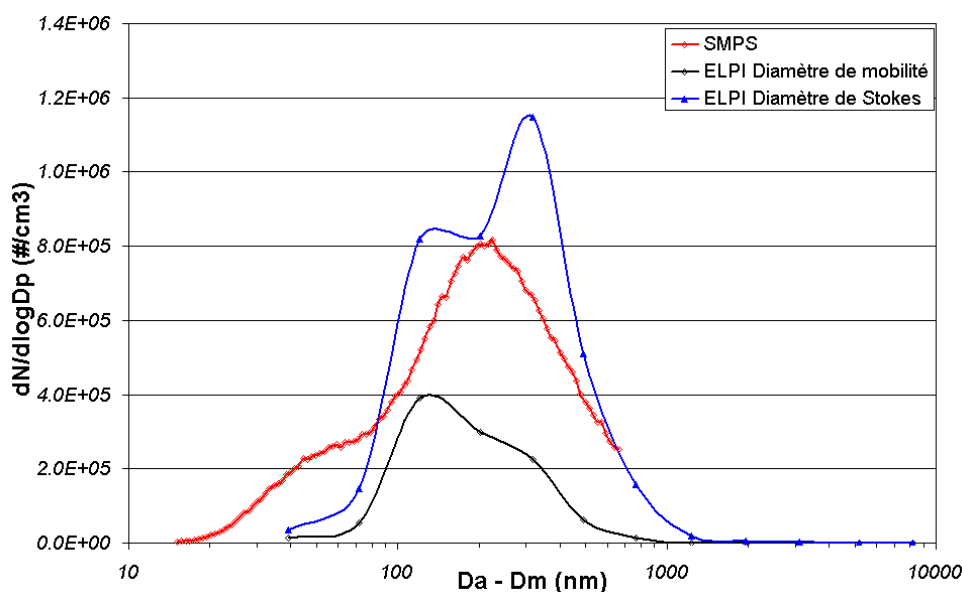


Figure 3-23 : Comparaison des distributions granulométriques pour le toluène

On représente dans le [Tableau 3-7](#) les paramètres des trois distributions. Nous présentons aussi sur le [Tableau 3-7](#) les valeurs de masse volumique effective $\rho_{e \text{ série}}$ obtenues au cours de l'étude en série DMA-ELPI (paragraphe 3.2.3.4) et la valeur de la masse volumique effective $\rho_{e \text{ parallèle}}$ calculée à l'aide des diamètres médians aérodynamique et de mobilité électrique déterminée lors de la présente analyse en parallèle ELPI-SMPS.

Tableau 3-7: Synthèse des informations granulométriques SMPS/ELPI Mobilité/ELPI Stokes pour le toluène

	SMPS	ELPI Mobilité	ELPI Stokes
D₅₀ (nm)	188	162	238
Ecart-type	1,98	1,73	1,68
$\rho_{e \text{ série}}$ (g/cm³)		0,77	
$\rho_{e \text{ parallèle}}$ (g/cm³)	-	0,81	1,43

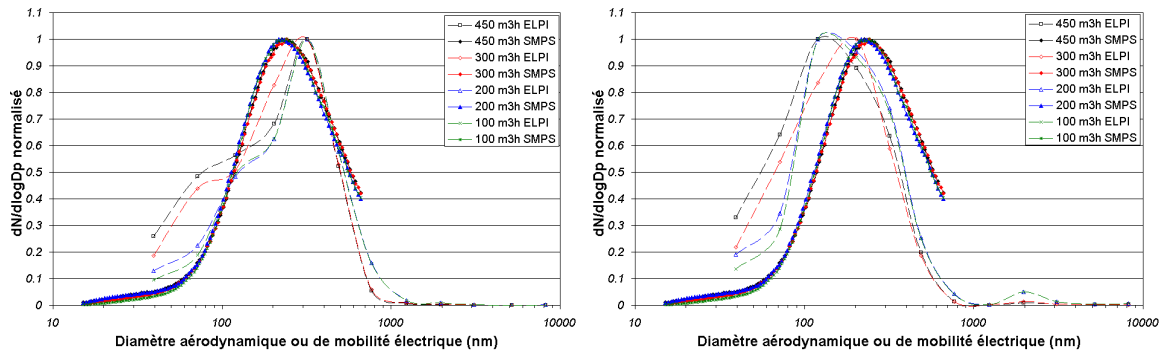
On voit tout d'abord que la valeur de la masse volumique effective déterminée à l'aide du diamètre aérodynamique médian mesuré sur la distribution granulométrique de "l'ELPI Stokes" n'est pas cohérente avec la valeur issue de l'analyse en série DMA-ELPI. On trouve un diamètre aérodynamique médian supérieur au diamètre de mobilité électrique, sous-entendant une masse volumique effective supérieure à 1 g/cm³ (1,43 g/cm³) alors que l'étude en série a souligné une valeur de masse volumique effective, pour des particules de diamètre de mobilité électrique de l'ordre de 188 nm, de 0,77 g/cm³. A l'inverse si on compare les résultats obtenus à partir de la distribution "ELPI Mobilité" on observe une relative cohérence lorsque l'on compare les masses volumiques effectives de l'étude en série et l'étude en parallèle qui prennent respectivement les valeurs de 0,77 et 0,81 g/cm³. Le traitement des données de l'ELPI à l'aide du diamètre de mobilité électrique semble donc grandement améliorer la cohérence des résultats de l'étude en parallèle.

3.5 CONSEQUENCES DES CORRECTIONS APORTEES SUR LES INFORMATIONS GRANULOMETRIQUES DU ELPI ET DU SMPS

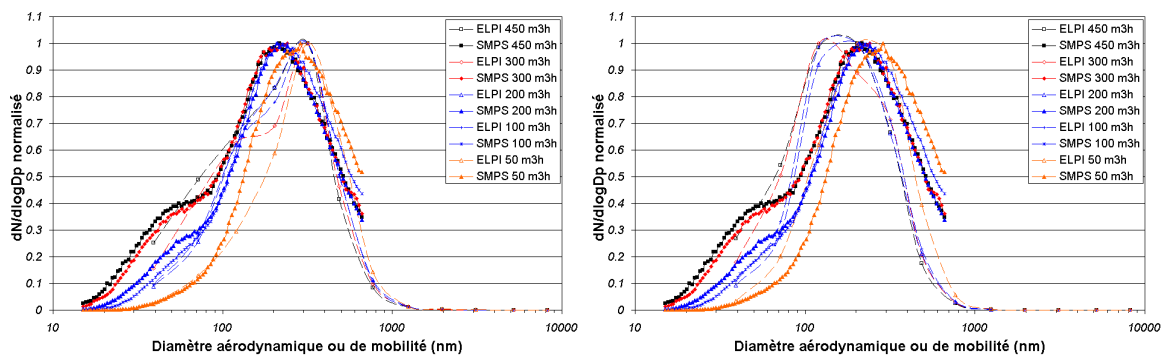
3.5.1 COMPARAISON DES DISTRIBUTIONS GRANULOMETRIQUES ELPI ET SMPS

Nous comparons sur la [Figure 3-24](#), les distributions granulométriques non-corrigées issues des dispositifs ELPI et SMPS aux distributions granulométriques corrigées à l'aide des différents développements présentés dans les deux précédents paragraphes (3.3 et 3.4).

ACETYLENE



TOLUENE



PMMA

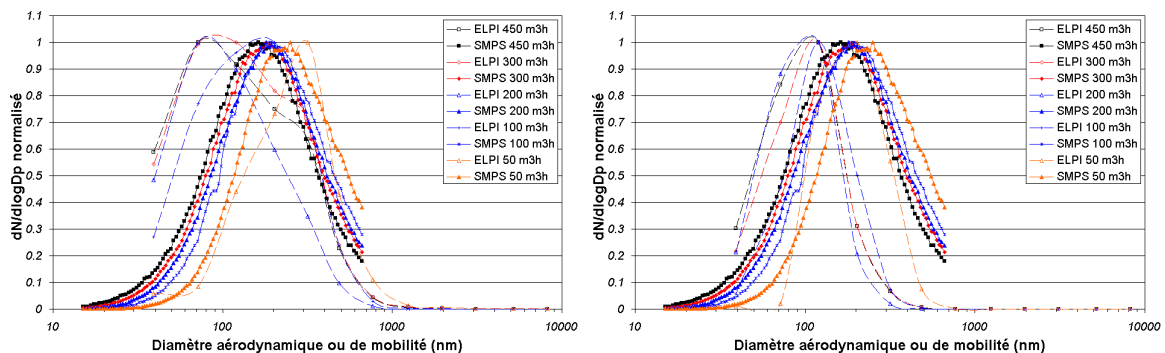


Figure 3-24 : Comparaison entre distributions SMPS et ELPI non-corrigées (à gauche) et corrigées (à droite) pour les trois combustibles et pour différentes conditions de ventilation

Le principal point de disparité des distributions non-corrigées réside dans le fait que la majeure partie des distributions ELPI présentent des diamètres modaux supérieurs aux diamètres modaux des granulométries SMPS. Ce résultat totalement incohérent avec la théorie et les résultats de l'étude en série DMA-ELPI a justifié la réflexion menée sur le traitement des informations granulométriques apportées par l'ELPI. La présence d'un second mode observé sur les distributions ELPI de l'acétylène et pas sur les distributions SMPS nous a aussi longtemps posé problème. A l'inverse si on compare les distributions granulométriques corrigées, on ne retrouve pas, tout d'abord pour l'acétylène un second mode parasite sur les distributions granulométriques de l'ELPI. Ensuite si on compare les diamètres modaux des distributions SMPS et ELPI on retrouve des diamètres aérodynamiques bien inférieurs aux diamètres de mobilité électrique, résultat alors cohérent avec la fonction présentée sur la [Figure 3-5](#) pour les agrégats de suie étudiés. Sur ce point les corrections apportées améliorent grandement la cohérence des résultats expérimentaux concernant les distributions granulométriques.

3.5.2 COMPARAISON DE LA CONCENTRATION MASSIQUE ET NUMERIQUE APORTEES PAR L'ELPI, LE SMPS ET LE TEOM

Nous représentons sur la [Figure 3-25](#) les relations existantes entre la concentration numérique du ELPI et du SMPS ainsi que les relations entre la concentration massique fournie par le TEOM, le ELPI et le SMPS.

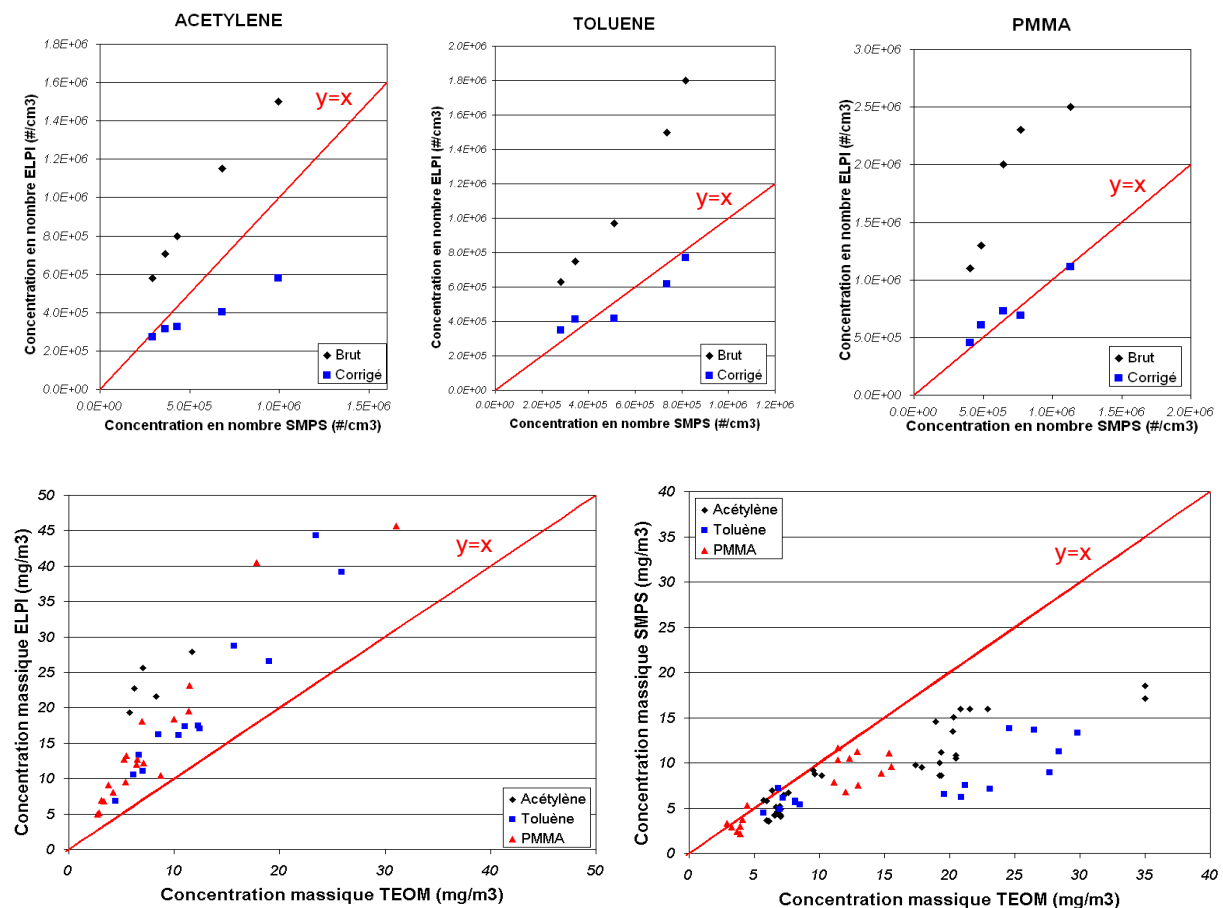


Figure 3-25 : Comparaison entre les concentrations en nombre de particules mesurées par le SMPS et le ELPI (brut : données non corrigées des logiciels d'exploitation du ELPI et du SMPS ; corrigé : données corrigées à partir des réflexions du présent chapitre) et comparaison entre les concentrations massiques mesurées par le TEOM, l'ELPI et le SMPS

Il apparaît tout d'abord que la correction des données de l'ELPI entraîne une meilleure cohérence des concentrations en nombre mesurées par le SMPS et le ELPI. Pour la concentration massique et pour les données ELPI nous n'avons considéré que les plateaux d'impaction de diamètres médians inférieurs à 2 μm . Ce choix a essentiellement été dicté par le fait que les premiers plateaux d'impaction (2-10 μm) sont très sensibles aux phénomènes de diffusion et on peut alors, en présence d'une forte concentration en particules de diamètres inférieurs à 500 nm, recueillir sur ces premiers plateaux des particules par diffusion et non par impaction. La concentration ainsi mesurée est donc généralement supérieure à la concentration réelle et il est plus difficile de tirer une conclusion sur l'effet de notre correction sur la concentration massique. En effet, même si l'écart entre la masse réelle TEOM et la masse indiquée par le ELPI se réduit avec cette correction, on retrouve tout de même une valeur de concentration massique systématiquement supérieure à la concentration mesurée par le TEOM. Pour le SMPS, les concentrations massiques déterminées par ce dispositif sont, quant à elles, systématiquement inférieures à celles mesurées par le TEOM. Cette disparité systématique peut s'expliquer par la fonction d'évolution de la masse volumique effective qui est extrapolée pour la gamme de diamètres de mobilité électrique supérieurs à 600 nm. Ces particules, présentant une masse non négligeable, une incertitude importante sur leur masse volumique effective peut engendrer une forte incertitude sur la concentration massique totale. Remarquons enfin que la cohérence entre les concentrations massiques données par le SMPS, l'ELPI et l'information de référence issue du TEOM est d'autant meilleure que la concentration en particules est faible. La correction semble donc améliorer la qualité des informations fournies par ces deux dispositifs, en revanche, pour la masse des travaux sont encore nécessaires et plus particulièrement afin d'étendre la fonction d'évolution de la masse volumique effective pour des particules de diamètre supérieur à 600 nm et qui jouent un rôle fondamental dans la concentration massique totale.

3.5.3 DETERMINATION EN PARALLELE DE LA DIMENSION FRACTALE DES PARTICULES DE SUIE

La détermination de la dimension fractale des particules de suie est un sujet de constante préoccupation et sa détermination fait l'objet de nombreuses approches. L'analyse par microscopie électronique, méthode la plus utilisée à ce jour, est cependant assez lourde à mettre en œuvre et comme nous l'avons vu l'utilisation en série du ELPI et du DMA permet une détermination plus directe de ce paramètre mais nécessite tout de même la connaissance des informations morphologiques issues de l'analyse MET. Toujours dans l'optique de simplifier la détermination de ce paramètre nous présentons dans ce paragraphe une méthode fondée sur l'utilisation en parallèle des granulomètres SMPS et ELPI. Pour cela des mesures granulométriques ont été effectuées en parallèle pour les trois combustibles et dans différentes conditions de ventilation afin de couvrir une gamme étendue de diamètre. Afin d'étendre d'autant plus cette gamme nous déterminons pour chaque distribution le diamètre médian (50 %) ainsi que le diamètre correspondant à 32 % de la distribution granulométrique.

Pour chaque mesure en parallèle du diamètre de mobilité électrique et du diamètre aérodynamique on détermine la masse volumique effective ρ_e et la masse de l'agrégat m_{fr} . Connaissant le diamètre D_{pp} et la masse volumique ρ_{pp} des particules primaires on peut déterminer le nombre N_p de particules primaires composant l'agrégat de diamètre de mobilité électrique D_m . On peut ensuite déterminer le diamètre de giration D_g équivalent à ce diamètre de mobilité à partir des relations établies dans le paragraphe 3.2.4.1 et

portant sur le rapport β . Cette correction est particulièrement importante car les diamètres de mobilité électrique rencontrés sont compris dans la zone où le rapport β n'est pas constant induisant une incertitude conséquente sur la valeur de la dimension fractale.

Sur la Figure 3-26 sont représentées les relations fractales basées sur le diamètre de mobilité électrique, sur le diamètre de giration obtenu à partir de β et D_m et par analyse de clichés de microscopie électronique. On voit tout d'abord que la dimension fractale déterminée à partir de ce rapport β est particulièrement consistante avec la dimension fractale issue de l'analyse MET. On peut de plus souligner le rôle conséquent de la relation liant le diamètre de giration au diamètre de mobilité électrique car lorsque l'on considère simplement le diamètre de mobilité électrique, la dimension fractale obtenue est largement supérieure à la dimension fractale MET. La connaissance de la fonction d'évolution du β en fonction du diamètre de mobilité doit donc être intégrée à la détermination de la dimension fractale et permet alors d'établir des valeurs fiables de ce paramètre morphologique. Cette convergence des informations est alors essentiellement attribuable à la fonction d'évolution de ce rapport β .

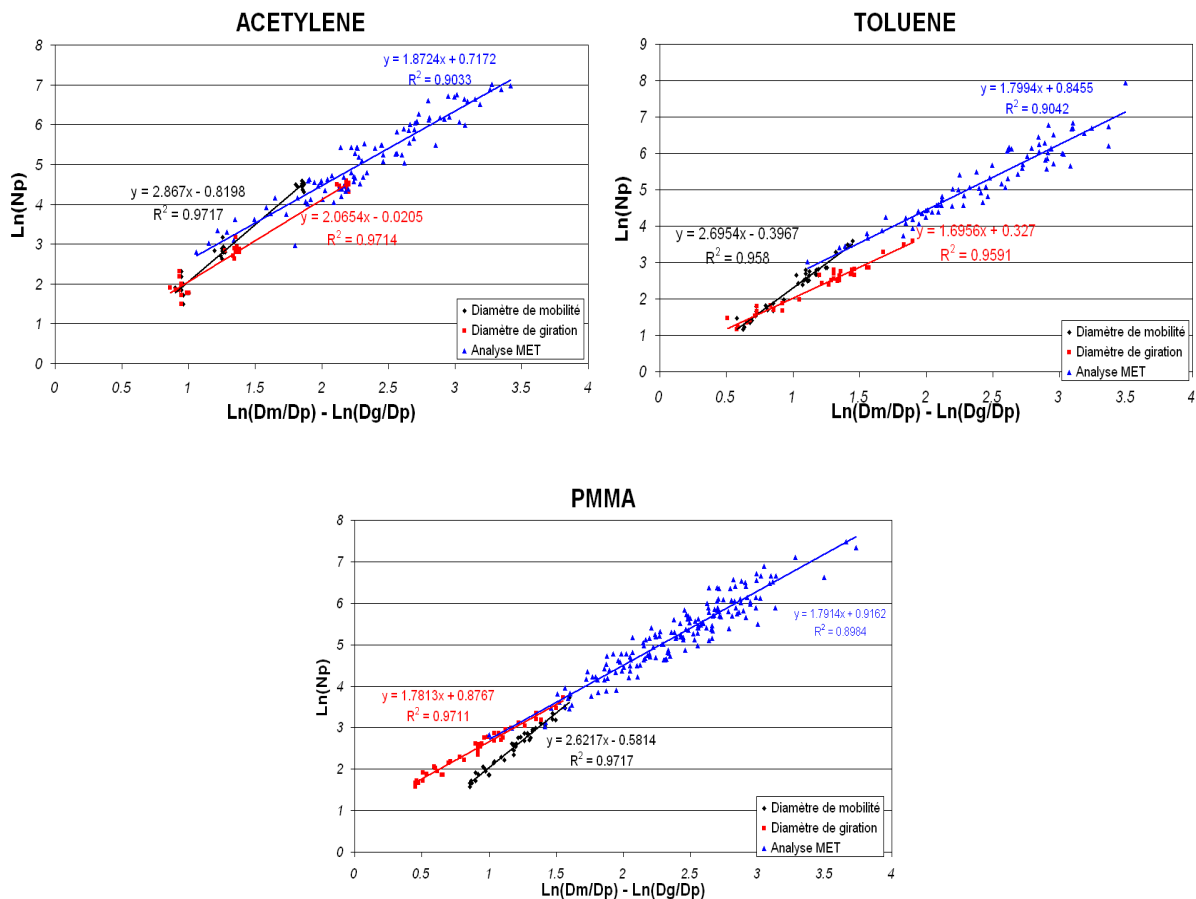


Figure 3-26: Détermination de la dimension fractale des particules de suie à partir des distributions granulométrique ELPI et SMPS mesurées en parallèle et pour les trois combustibles.

3.6 CONCLUSIONS SUR LE TRAITEMENT DES DONNEES

La première partie de ce travail nous a tout d'abord permis d'établir la relation existante entre le diamètre aérodynamique et le diamètre de mobilité électrique des agrégats. Le lien entre ces deux diamètres a été établi et nous a permis à la fois de déterminer la masse volumique effective des particules et à la fois d'estimer la dimension fractale des agrégats de suie. Les informations apportées par cette approche se sont montrées particulièrement cohérentes avec les informations apportées par l'analyse de clichés de microscopie électronique (paragraphe 3.2.4.2). L'évolution du paramètre β en fonction des diamètres est en accord avec la littérature mais les valeurs obtenues sont trop faibles sans qu'il soit possible à ce stade d'en apporter une explication. Suite à cette étude en série, nous nous sommes intéressés à l'utilisation en parallèle des granulomètres SMPS et ELPI ainsi qu'à la nécessaire adaptation des méthodes de traitement des informations issues de ces dispositifs à des particules présentant une morphologie fractale.

Une étude spécifique sur le phénomène de charges multiples rencontré dans le SMPS a été menée et a souligné les limites de cette correction pour des agrégats de suie. Le traitement des données a ainsi été reconsidéré et une méthode de correction des distributions granulométriques a été introduite. Il est apparu que les distributions granulométriques non-corrigées par le logiciel commercial du SMPS apportaient des informations représentatives sur la taille et la dispersion des particules de suie mais que si une information quantitative sur la concentration numérique des particules était souhaitée, il était préférable de considérer les distributions corrigées à l'aide de notre logiciel de traitement. Dans la suite de cette étude nous allons donc exploiter les distributions non-corrigées issues du logiciel commercial du SMPS afin d'étudier les évolutions dimensionnelles des agrégats de suie (partie 4) et les distributions corrigées à partir du logiciel de traitement introduit dans cette partie dans le cas où une information quantitative est nécessaire et plus particulièrement pour l'inversion des données optiques des particules de suie (partie 6).

De la même manière une réflexion sur le traitement des données fournies par l'ELPI a été menée dans cette partie. Cette réflexion a essentiellement été initiée par l'étude en série DMA-ELPI et sur les disparités observées lors de l'analyse des informations granulométriques apportées par l'étude en parallèle des dispositifs SMPS et ELPI. Le point principal de discussion a porté sur l'utilisation du diamètre de Stokes afin de lier le diamètre aérodynamique des plateaux d'impaction de l'ELPI aux diamètres de mobilité électrique équivalents. La relation expérimentale, liant le diamètre aérodynamique au diamètre de mobilité électrique, établie au cours de l'étude en série DMA-ELPI, a ainsi été substituée à la relation théorique présente dans le logiciel de l'ELPI et les résultats ainsi obtenus se sont montrés plus cohérents avec les informations issues du TEOM et du SMPS. Cette relative cohérence a alors dicté l'utilisation de cette correction pour la suite de l'étude et plus particulièrement sur l'influence des conditions environnementales sur les caractéristiques granulométriques des agrégats.

4 PRESENTATION ET DISCUSSION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

4.1 INTRODUCTION

Le dispositif expérimental permet de déterminer les caractéristiques dimensionnelles et morphologiques des particules de suie ainsi que les facteurs d'émission des différentes flammes étudiées. L'étude a été menée pour différentes valeurs de ventilation (richesse) afin de souligner l'effet de ce paramètre sur la taille, la forme et l'émission de particules. Dans la première partie de ce chapitre, nous présentons les facteurs d'émission de suie et de gaz pour les différentes flammes et pour différentes richesses. Nous présentons dans la seconde partie, l'évolution des paramètres morphologiques et des distributions granulométriques en fonction de cette richesse. Nous concluons ce chapitre par une analyse comparative entre les évolutions du facteur d'émission de suie et de la masse des agrégats, cette dernière étant calculée à partir des informations morphologiques et granulométriques.

4.2 EVOLUTION DES DEBITS DE COMBUSTIBLE ET DE LA TEMPERATURE DES FUMÉES EN FONCTION DE LA VENTILATION

L'étude expérimentale de l'évolution des propriétés physiques des particules de suie ayant essentiellement porté sur l'influence des conditions de ventilation nous présentons ici l'influence de ce paramètre sur le débit de combustible (Figure 4-1) et la température des fumées (Figure 4-2).

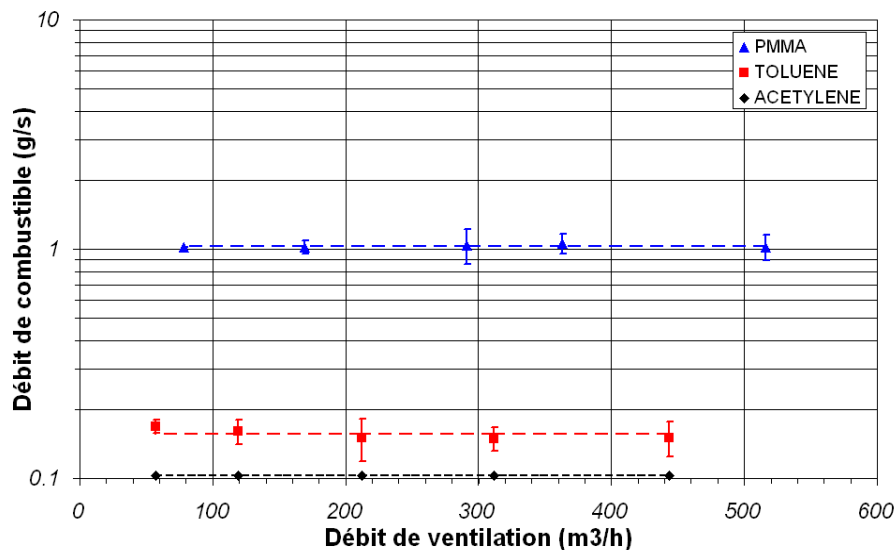


Figure 4-1: Débit de combustible en fonction du débit de ventilation

Le débit de combustible n'est donc pas sensible au débit de ventilation. Pour l'acétylène, ce résultat était attendu puisque le débit au brûleur est imposé. Pour les combustibles liquide (toluène) et solide (PMMA), le résultat est aussi assez logique puisque l'oxygène de l'air, le comburant, est largement en excès. Le paramètre qui pourrait influencer le débit de combustible est plutôt la surface du combustible offerte à la flamme, et elle n'a pas été changée au cours des expérimentations. Pour la température des fumées, l'effet de la dilution apparaît clairement sur la Figure 4-2, cette température diminuant régulièrement lorsque le débit de

ventilation augmente, les gaz de combustion étant de plus en plus refroidis avec l'air de ventilation lorsque le débit de ventilation augmente.

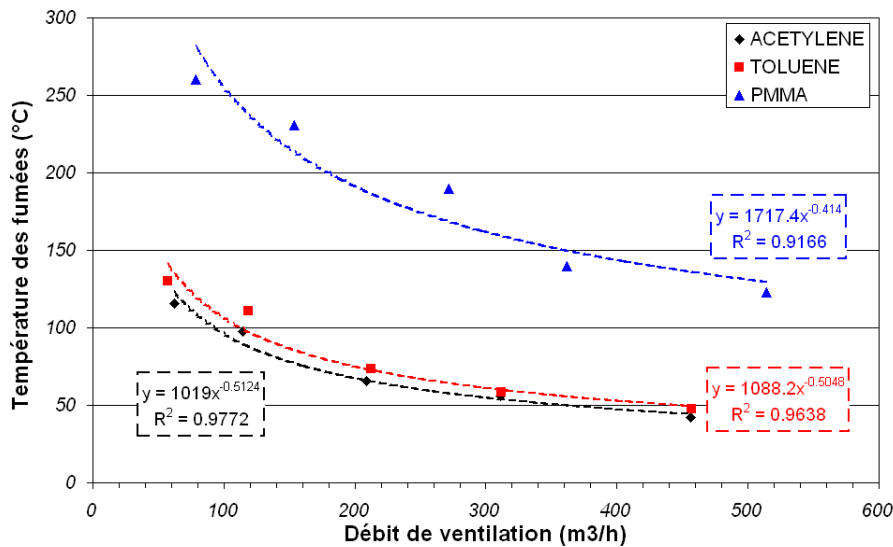


Figure 4-2: Evolution de la température des fumées en fonction du débit de ventilation

4.3 ETUDE DE L'EMISSION DE SUIES DES DIFFERENTS COMBUSTIBLES

4.3.1 DEFINITION DE LA FRACTION VOLUMIQUE ET DU FACTEUR D'EMISSION DES SUIES

Il convient d'introduire ici les notions de facteur d'émission et de fraction volumique de suie. Tout d'abord la fraction volumique correspond au rapport du volume occupé par les particules de suie sur le volume d'air. Dans cette étude, plusieurs méthodes de détermination de ce paramètre ont été utilisées mais nous ne présenterons dans cette partie 4 que les résultats fournis par la mesure directe de la masse à l'aide de la microbalance TEOM. Dans notre cas la fraction volumique se déduit de la concentration massique en suie C_s (mesure TEOM) connaissant la masse volumique ρ_{pp} des particules primaires composant l'agrégat.

$$f_{v \text{ suies}} = \frac{C_s}{\rho_{pp}} \tag{Équation 4-1}$$

La méthode de détermination de la masse volumique des particules primaires est présentée en annexe 4 et le Tableau 4-1 synthétise les résultats expérimentaux obtenus pour les trois combustibles.

Tableau 4-1: Valeurs déterminées expérimentalement de la masse volumique des particules primaires de suie

Nature de l'échantillon	Masse volumique ρ_{pp} (g/cm ³)	+/- 2 σ
Acétylène (450 et 100 m ³ /h)	1,72	0,11
PMMA (450 et 100 m ³ /h)	1,52	0,10
Toluène (450 et 100 m ³ /h)	1,46	0,18

Toujours à partir de la concentration massique de suie on définit le facteur d'émission η_{suies} . Celui-ci représente le rendement de production de suie d'une flamme et il se présente sous la forme suivante :

$$\eta_{\text{suies}} = \frac{Q_{\text{suies}}}{Q_{\text{Comb. consommé}}} \quad \text{Équation 4-2}$$

où Q_{suies} représente le débit de production de suie, qui est estimé à l'aide de la concentration massique en suie C_s et du débit volumique de ventilation $Q_{\text{ventilation}}$:

$$Q_{\text{suies}} = C_s \cdot Q_{\text{ventilation}} \quad \text{Équation 4-3}$$

et où $Q_{\text{Comb. consommé}}$ représente le débit massique de combustible consommé au cours de la combustion.

4.3.2 INFLUENCE DE LA RICHESSE SUR LA CONCENTRATION MASSIQUE, LA FRACTION VOLUMIQUE ET LE FACTEUR D'EMISSION DES SUIES

Les variations, en fonction du débit de ventilation, de la concentration massique totale d'agrégats mesurée à l'aide des prélèvements sur filtres et décrit dans le paragraphe 2.5.3 sont présentés sur la [Figure 4-3](#). On voit sur cette figure que le débit de ventilation à un effet direct sur la concentration en suie, effet qui peut être associé au phénomène de dilution dans la ligne de ventilation.

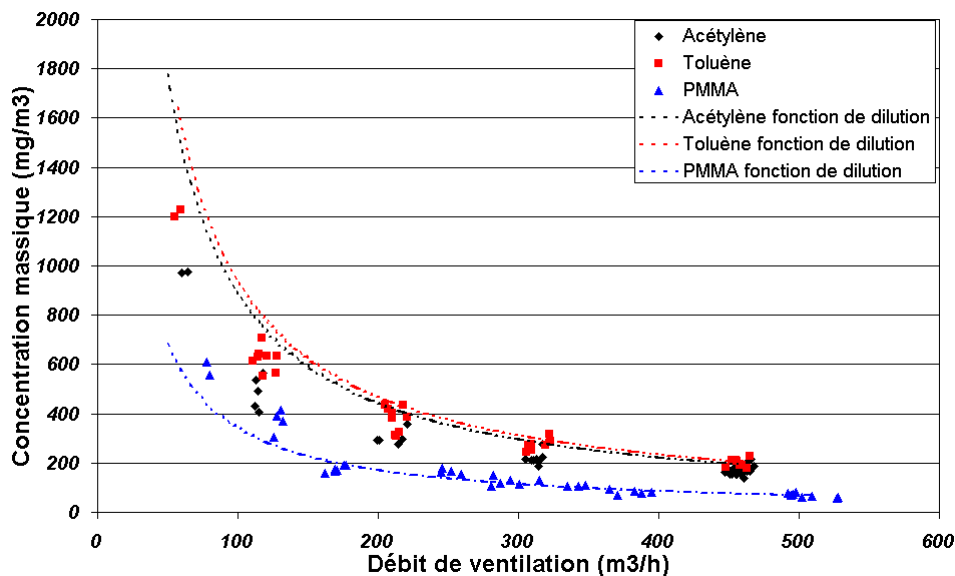


Figure 4-3: Evolution de la concentration massique en fonction du débit de ventilation. Les courbes en pointillés représentent la fonction théorique de dilution

La fonction de dilution théorique est inversement proportionnelle au débit de ventilation. Elle est "calée" sur les valeurs expérimentales correspondant au débit de ventilation égal à 450 m³/h. L'allure de cette fonction épouse assez bien la décroissance des valeurs expérimentales de la concentration. Mais on observe un écart pour les faibles valeurs du débit de ventilation ce qui souligne l'influence du débit de ventilation sur la production de suie. On peut de plus noter que cet écart dépend du combustible, ainsi pour l'acétylène et le

toluène l'évolution expérimentale à tendance à se placer, sur la [Figure 4-3](#), en dessous de la fonction de dilution tandis que pour le PMMA les données expérimentales sont au-dessus de la fonction de dilution associée.

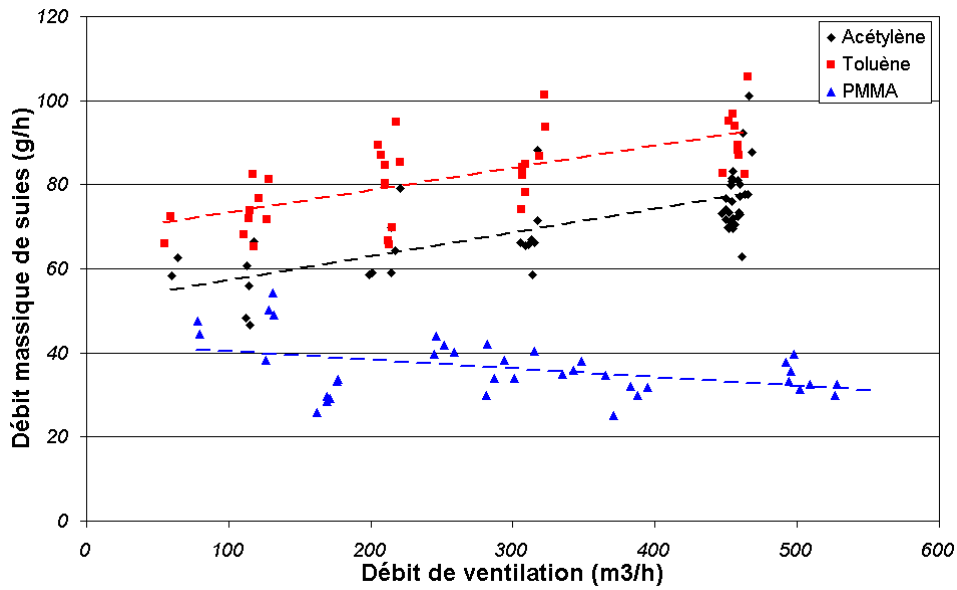


Figure 4-4 : Evolution du débit massique de suies en fonction du débit de ventilation

Sur la [Figure 4-4](#) le débit de production de suies augmente avec le débit de ventilation pour l'acétylène et le toluène et diminue pour le PMMA. Les données obtenues pour la concentration massique nous permettent d'établir la relation liant la fraction volumique de suie à la richesse globale dans le foyer présentée sur la [Figure 4-5](#). On rappelle que la richesse globale représente le rapport entre la quantité de combustible en présence et la quantité d'air disponible.

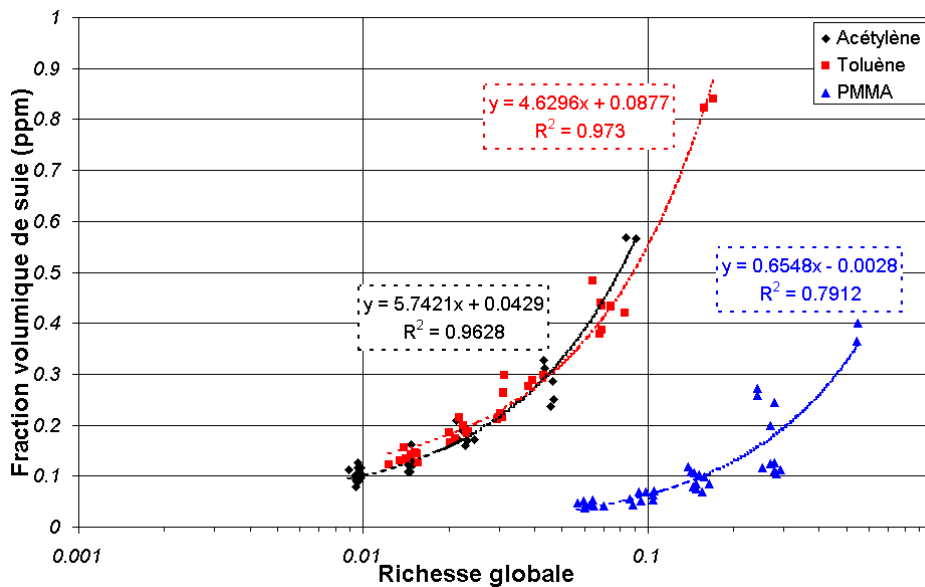


Figure 4-5: Evolution de la fraction volumique en fonction de la richesse globale

On observe sur cette figure le lien existant entre la fraction volumique et la richesse déjà remarqué pour la concentration massique. Afin de détailler l'impact réel de la richesse globale sur la production nous présentons sur la Figure 4-6 l'évolution du facteur d'émission en fonction de cette richesse.

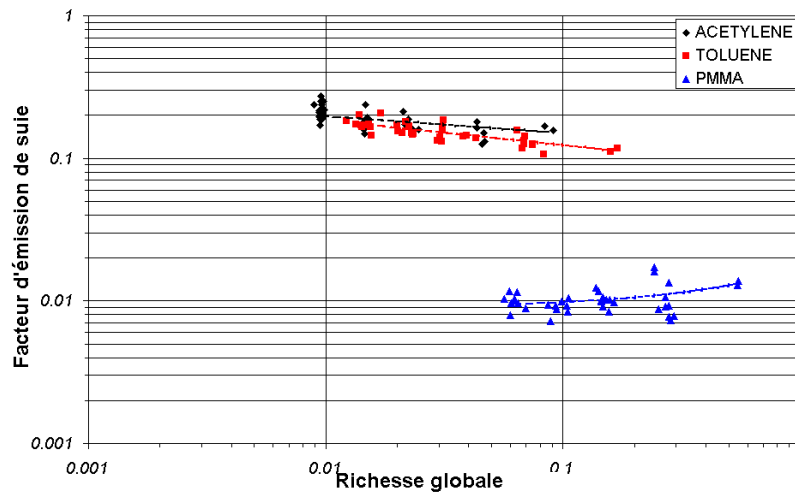


Figure 4-6: Evolution du facteur d'émission de suie en fonction de la richesse globale

Dans cette étude il apparaît deux comportements totalement différents selon le combustible et la gamme de richesse considérée. Ainsi pour l'acétylène et le toluène, l'augmentation de la richesse globale semble s'accompagner d'une diminution de la production de particules de suie. A l'inverse, pour le PMMA, cette augmentation de richesse engendre une stagnation voir une légère augmentation du taux de production de suie. Ce second comportement apparaît plus cohérent avec les informations présentes dans la littérature pour des polymères et pour une gamme de richesse proche de 1 (Tewarson, 2003). Ce dernier montre ainsi, que pour des flammes sur et sous-ventilées de combustibles polymères solides, le facteur d'émission de suies augmente sensiblement lorsque la richesse augmente (cf. ANNEXE 3 : Données disponibles sur la combustion du PMMA).

4.3.3 RELATIONS AVEC LES EMISSIONS DE GAZ POLLUANTS

La Figure 4-7 permet de souligner le lien existant entre la concentration massique de particules de suie et les concentrations en CO et CO₂.

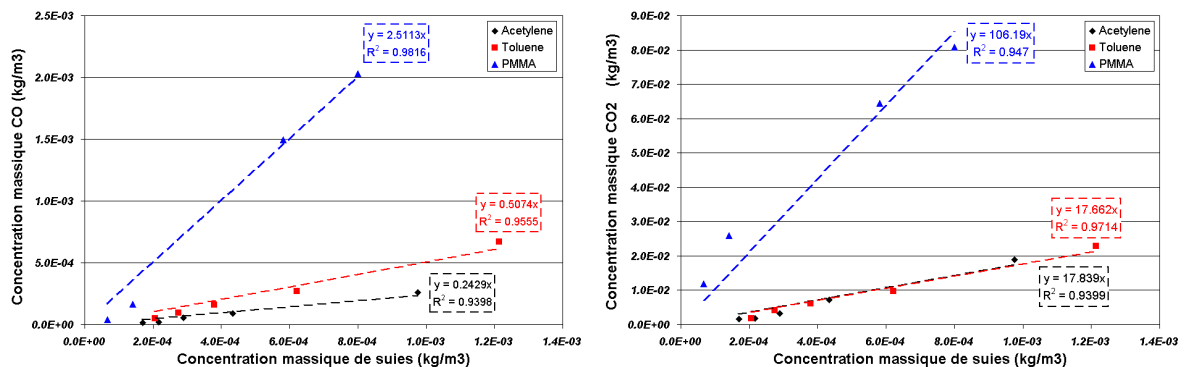


Figure 4-7: Relation liant les concentrations de CO et CO₂ à la concentration de suie

Dans tous les cas, on observe que la concentration des polluants gazeux est proportionnelle à celle des suies. On peut remarquer que la production de CO et CO₂ est beaucoup plus importante pour le PMMA qui présente les facteurs d'émission les plus faibles (cf. Tableau 4-2). La Figure 4-8 montre le rapport des facteurs d'émission en fonction de la richesse.

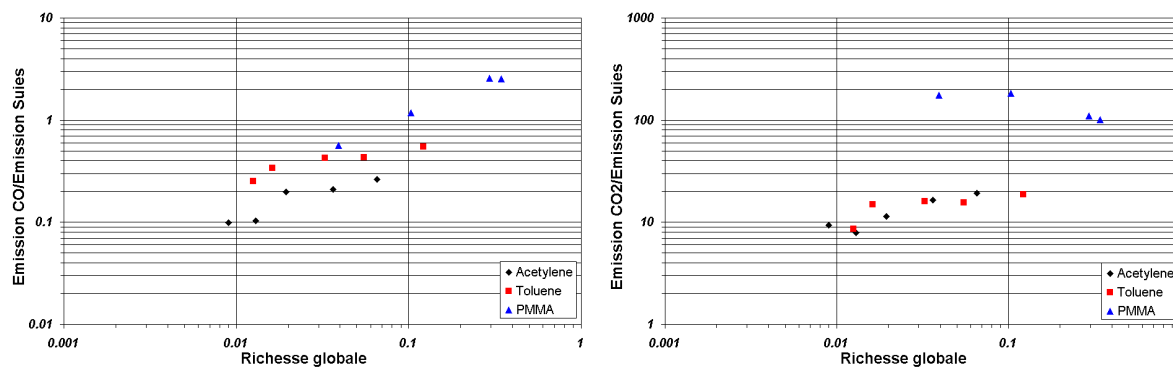


Figure 4-8: Evolution des rapports émission CO/suies et émission CO₂/suies en fonction de la richesse

On voit sur ces deux figures que ces rapports ne sont pas constants en fonction de la richesse et ils ont tendance à augmenter pour l'acétylène et le toluène. Le cas du PMMA est plus singulier puisque lorsque la richesse augmente, l'émission de CO augmente plus rapidement que l'émission de suies tandis que c'est l'inverse pour l'émission de CO₂. Les résultats expérimentaux sont assez cohérents avec les données de la littérature comme on le constate sur le Tableau 4-2.

Tableau 4-2: Synthèse des facteurs d'émission des trois combustibles étudiés (Köylü *et al.* 1991 a et b : facteur d'émission défini à partir de la masse de carbone consommé)

Combustible	Acétylène C ₂ H ₂	Toluène C ₇ H ₈	PMMA C ₅ H ₈ O ₂
η_{suies}			
Présente étude	0,15 - 0,21	0,11 - 0,18	0,009 - 0,013
Köylü et al. (1991 a et b)	0,19	0,16	-
Tewarson (2002)	0,096	0,178	0,022
η_{co}			
Présente étude	0,020 - 0,043	0,044 - 0,070	0,005 - 0,045
Köylü et al. (1991 a et b)	0,036	0,063	-
Tewarson (2002)	0,042	0,066	0,010
η_{co2}			
Présente étude	1,48 - 3,18	1,47 - 2,38	1,43 - 1,79
Köylü et al. (1991 a et b)	-	-	-
Tewarson (2002)	2,6	2,34	2,12

4.3.4 INFLUENCE DE LA PUISSANCE DE LA FLAMME SUR L'EMISSION DE SUIE

L'objectif principal de notre étude étant de caractériser les particules émises lors d'un incendie, nous nous sommes intéressés à l'effet d'échelle du foyer sur l'émission de suies. En effet on peut légitimement se poser cette question lorsque l'on souhaite utiliser des résultats acquis sur des essais à petites échelles afin de caractériser le comportement d'un incendie à grande échelle. L'évolution du facteur d'émission en fonction de la puissance dégagée par la flamme est présentée sur la Figure 4-9 pour les trois combustibles, des valeurs issues de la littérature pour l'acétylène et le toluène sont de plus intégrées à cette figure. Pour le toluène et

le PMMA nous avons modifié la taille de la surface de combustible offerte à la flamme en utilisant des brûleurs (récipients) de tailles différentes et quelques essais ont été menés sur un cône calorimètre afin d'obtenir la plus faible puissance pour le PMMA (5 kW).

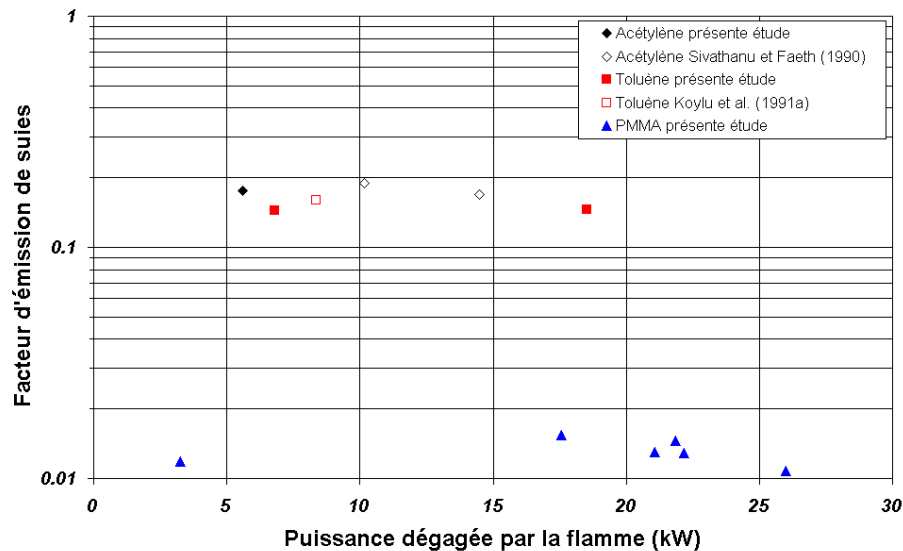


Figure 4-9: Evolution du facteur d'émission de suie en fonction de la puissance dégagée

Cette figure souligne que le facteur d'émission de suie des trois combustibles n'évolue pas de manière significative pour cette gamme de puissance. Il serait cependant intéressant d'étendre la gamme de puissance à des feux de grandes envergures et ce particulièrement pour le PMMA qui est le combustible le plus représentatif d'une situation accidentelle d'incendie à l'échelle d'un local ventilé d'une installation nucléaire. On citera cependant les travaux de Mulholland *et al.* (1996) qui souligne, dans le cas de feu de nappe de pétrole brut, que la taille du foyer augmente la production de suies jusqu'à atteindre une valeur limite de 0,15 pour un diamètre effectif de foyer de l'ordre de 3 m. Des essais à plus grandes échelles pourraient ainsi détailler les possibilités d'extension des informations apportées par cette étude menée à l'échelle du laboratoire. Il serait particulièrement intéressant d'étudier l'incidence de la taille sur le facteur d'émission de suie et de gaz des différents combustibles mais aussi sur la granulométrie et morphologie des particules de suie.

4.4 EVOLUTION DES CARACTERISTIQUES GRANULOMETRIQUES ET MORPHOLOGIQUES

4.4.1 EVOLUTION DE LA GRANULOMETRIE DANS LA LIGNE DE VENTILATION

Notre étude porte sur la caractérisation des particules émises lors d'un incendie et elle s'intègre dans le contexte particulier des installations ventilées. L'analyse de l'évolution de ces particules dans les lignes de ventilation s'est logiquement imposée. Nous avons pour cela effectué des prélèvements à différentes positions sur la ligne de ventilation de notre installation et ce pour différents débits de ventilation. Les conditions expérimentales de cette étude sont présentées dans le Tableau 4-3.

Tableau 4-3: Conditions d'étude de l'influence du temps de résidence dans la ligne de ventilation

Position par rapport au foyer (m linéaire) Voir Figure 2-1	Débit de ventilation (m ³ /h)	Vitesse dans la ligne (m/s)	Temps de résidence dans la ligne (s)
1	100 - 450	3 - 12	0,1 - 0,4
2	100 - 450	3 - 12	0,2 - 0,8
10	100 - 450	3 - 12	0,8 - 4,0

La Figure 4-10 présente les granulométries obtenues à l'aide du SMPS à différents points de prélèvement pour chaque combustible et pour les temps de résidence les plus importants (100 m³/h).

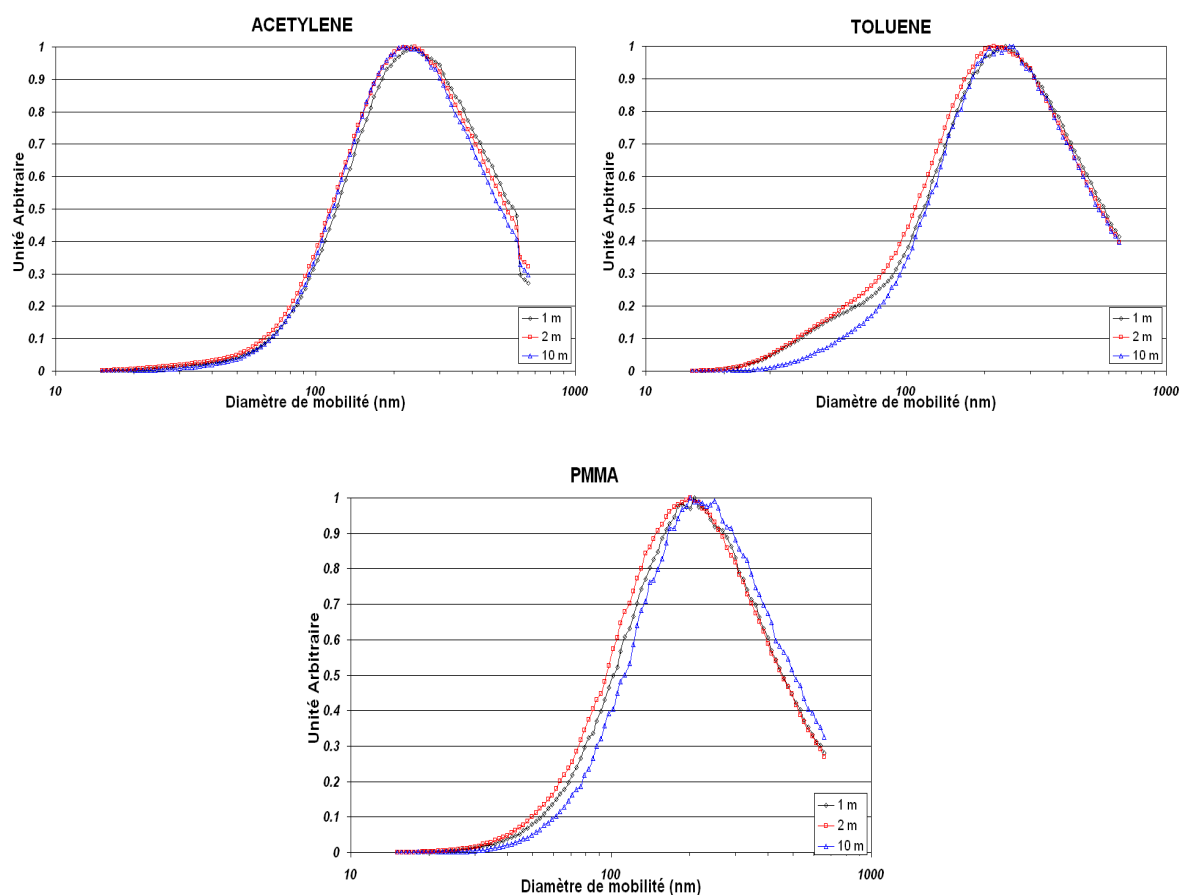


Figure 4-10: Comparaison des granulométries SMPS obtenues aux différents points de prélèvement

Les différences entre les distributions granulométriques sont faibles. Il existe un léger écart pour le PMMA, ce qui implique que l'agglomération a été un peu active dans ce cas. Par contre pour le toluène, on constate une déformation de la distribution pour les très faibles diamètres. Elle n'est pas explicable par les processus d'agglomération car la distribution n'est pas transformée pour les grandes tailles. Ces aérosols ultra-fins ont donc disparu au fur et à mesure de leur progression dans la veine d'essais. On ne sait pas actuellement si il s'agit d'une évaporation d'aérosols liquides ou d'une perte aux parois. Nous nous sommes alors intéressé aux potentielles pertes dans la ligne de ventilation qui, rappelons le, est maintenue à 130 °C et présente trois coudes dont un entre le premier et le second point et deux entre le second et le troisième point (voir Figure 2-1). La Figure 4-11 décrit l'évolution de la concentration massique de suie en fonction de la position dans la

ligne de ventilation et des conditions de ventilation. Afin de ne pas alourdir cette figure nous ne présentons que les résultats obtenus pour l'acétylène, les deux autres combustibles présentant le même comportement expérimental.

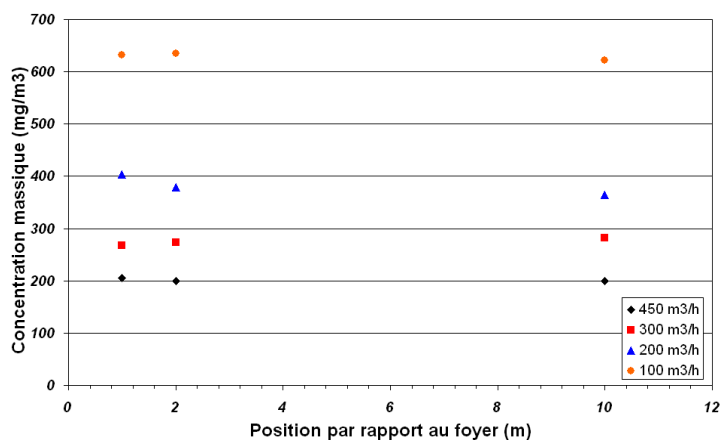


Figure 4-11: Evolution de la concentration massique de suie en fonction de la position de prélèvement

Une fois encore peu de disparités sont observées entre les différents points de prélèvement et les concentrations massiques sont comparables d'une position à l'autre. Il n'y a pas eu de perte de masse dans la ligne. Par contre, cela ne permet pas de conclure sur les aérosols ultra-fins de toluène car leur masse est négligeable par rapport à l'ensemble des particules de la distribution.

4.4.2 INFLUENCE DE LA RICHESSE SUR LA MORPHOLOGIE

Les paramètres morphologiques des agrégats de suie des trois combustibles ont été déterminés pour les différentes richesses. Nous présentons sur la [Figure 4-12](#) et la [Figure 4-13](#) l'évolution de la dimension fractale D_f et du préfacteur fractal k_f en fonction de la richesse globale. Les barres d'erreur présentées sur cette même figure correspondent à l'incertitude sur la dimension fractale et le préfacteur fractal inhérent à la méthode de détermination et détaillée dans le paragraphe 2.7.3.3.

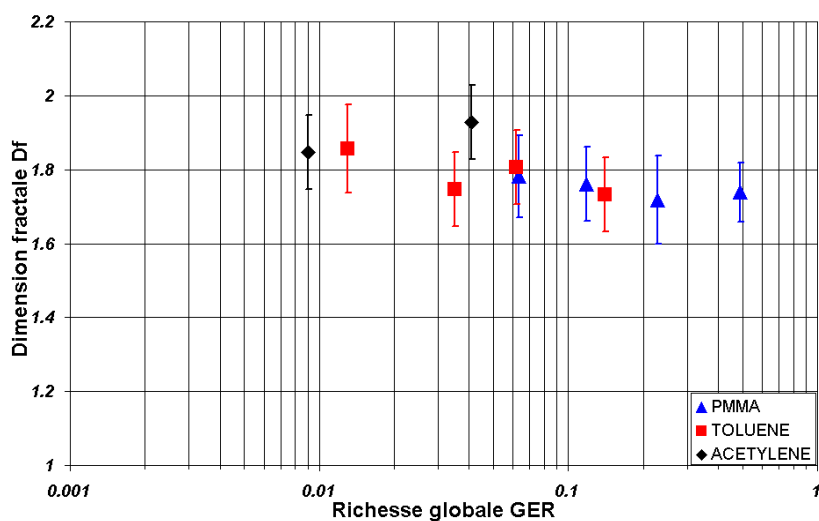


Figure 4-12: Evolution de la dimension fractale D_f en fonction de la richesse globale

La dimension fractale, tout comme le préfacteur, ne semblent pas être particulièrement affectés par la richesse et les faibles variations constatées sont de l'ordre de l'incertitude de la méthode de détermination de ces paramètres. Cette faible évolution des paramètres morphologiques souligne que la richesse ne modifie pas le mode de croissance des agrégats qui est ici du type "cluster-cluster" et qui conduit à des dimensions fractales inférieures à 2. On peut de plus noter la forte incertitude associée au préfacteur (de l'ordre de 50 %) comparée à l'assez bonne précision sur la dimension fractale (environ 10 %).

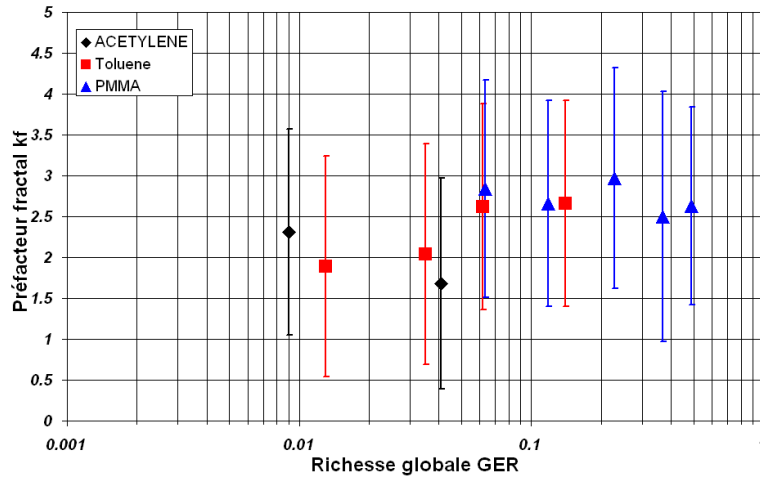


Figure 4-13: Evolution du préfacteur fractal k_f en fonction de la richesse globale

Nous détaillons dans cette partie l'évolution du diamètre des particules primaires D_{pp} en fonction de la richesse (Figure 4-14).

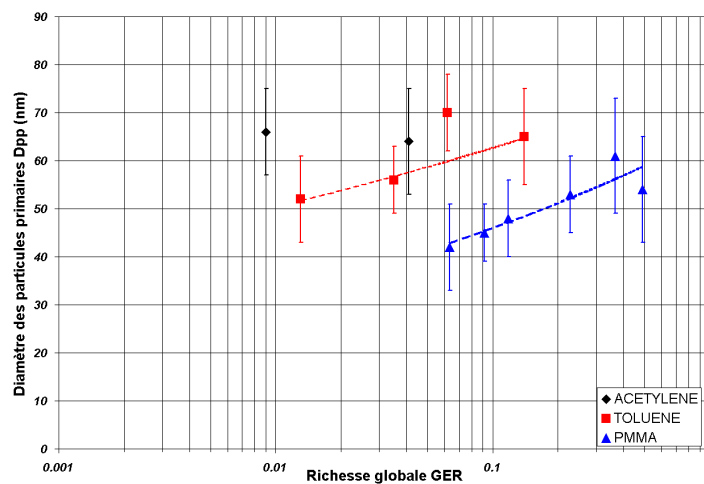


Figure 4-14: Evolution du diamètre des particules primaires D_{pp} en fonction de la richesse globale

Pour l'acétylène tout d'abord, la richesse ne semble pas avoir d'influence, cependant ne disposant que de deux points expérimentaux cette conclusion est à considérer avec précaution. A l'inverse pour le toluène et le PMMA on observe une augmentation du diamètre des particules primaires lorsque la richesse augmente. Le temps de séjour étant proportionnel à la richesse, il apparaît logique que lorsque la richesse augmente, le temps de séjour augmente lui aussi et entraîne une augmentation de la taille des particules primaires. Il faut cependant garder à l'esprit que la notion de richesse globale représente une grandeur

moyennée sur tout le foyer et n'apporte pas de réelle information sur la zone de flamme. Il est donc assez difficile de conclure sur l'influence de la richesse globale sur la taille des particules primaires car ces dernières évoluent sensiblement dans la zone de flamme et non pas dans la totalité du foyer. En comparant les résultats présentés sur la [Figure 4-12](#), la [Figure 4-13](#), la [Figure 4-14](#) et les résultats détaillés sur la [Figure 4-6](#) on peut noter un fait assez troublant pour le toluène et le PMMA. En effet sur la [Figure 4-6](#), le facteur d'émission du toluène diminue avec la richesse tandis que celui du PMMA augmente légèrement. A l'inverse si on considère la [Figure 4-12](#) et la [Figure 4-13](#), la morphologie ne semble pas être affectée par la richesse alors que le diamètre des particules primaires augmente significativement. On peut alors s'interroger sur l'effet de cette augmentation de la taille des particules primaires sur la masse des agrégats et plus spécifiquement de l'effet de cette augmentation sur le facteur d'émission de suies dont l'évolution n'est pas cohérente entre le toluène et le PMMA. Une réflexion sur ce point sera menée dans le paragraphe 4.5 à la fin de ce chapitre. Nous effectuons dans le [Tableau 4-4](#) une synthèse des informations morphologiques mesurées que nous comparons aux résultats issus des travaux de Köylü et Faeth (1992).

Tableau 4-4: Synthèse des données expérimentales concernant la morphologie des agrégats

Combustible	Acétylène C ₂ H ₂	Toluène C ₇ H ₈	PMMA C ₅ H ₈ O ₂
D _p (nm)			
Présente étude	64 - 66	52 - 70	42 - 61
Köylü et Faeth (1992)	47	51	-
D _f			
Présente étude	1,85 - 1,93	1,73 - 1,86	1,67 - 1,78
Köylü et Faeth (1992)	1,79	1,73	-
k _f			
Présente étude	1,68 - 2,31	1,89 - 2,66	2,50 - 2,97
Köylü et Faeth (1992)	2,72	2,44	-
N _p			
Présente étude	235 - 309	349 - 467	309 - 420
Köylü et Faeth (1992)	417	526	-
R _g (nm)			
Présente étude	404 - 466	541 - 556	355 - 459
Köylü et Faeth (1992)	481	672	-

Pour la présente étude, l'intervalle des valeurs qui est reporté correspond aux mesures obtenues pour les différentes richesses. Les dimensions fractales mesurées sont cohérentes avec celles de Köylü et Faeth (1992). Par contre, ce n'est pas vrai pour D_{pp} et N_p, les particules primaires présentent des diamètres systématiquement supérieurs à ceux présentés par Köylü et Faeth (1992) et c'est l'inverse pour N_p, ce qui entraîne un rayon de giration inférieur dans notre cas. Pour le PMMA, très peu d'informations sont disponibles dans la littérature et seul Jagoda *et al.* (1980) présente des diamètres de particules primaires de suie issues de la combustion de polystyrène et de polypropylène compris entre 10 et 40 nm.

4.4.3 INFLUENCE DE LA RICHESSE SUR LA DISTRIBUTION DES DIAMETRES DES AGREGATS

De même que pour la morphologie, nous avons effectué la mesure de la distribution du diamètre de mobilité électrique des particules de suie pour les trois combustibles et pour différentes richesses. Les résultats sont montrés sur la [Figure 4-15](#), la [Figure 4-16](#) et la [Figure 4-17](#). Les distributions en diamètre de

mobilité électrique présentées correspondent aux moyennes de plusieurs mesures et l'incertitude de ces mesures est représentée pour trois conditions de ventilation.

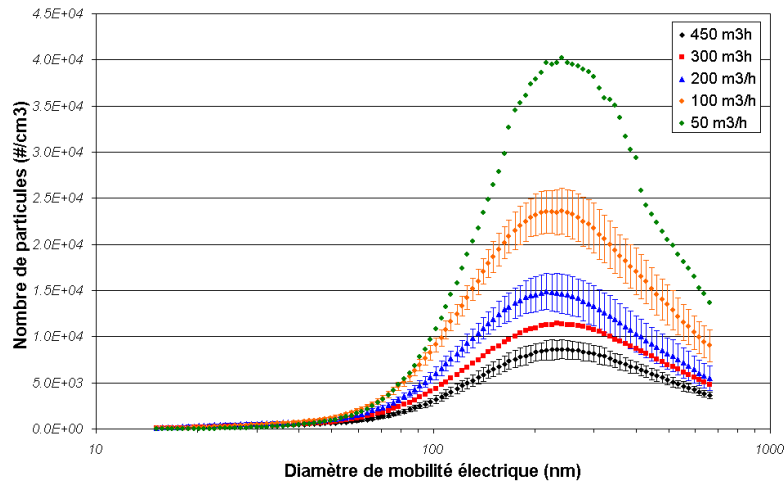


Figure 4-15 : Evolution de la granulométrie SMPS en fonction du débit de ventilation pour l'acétylène

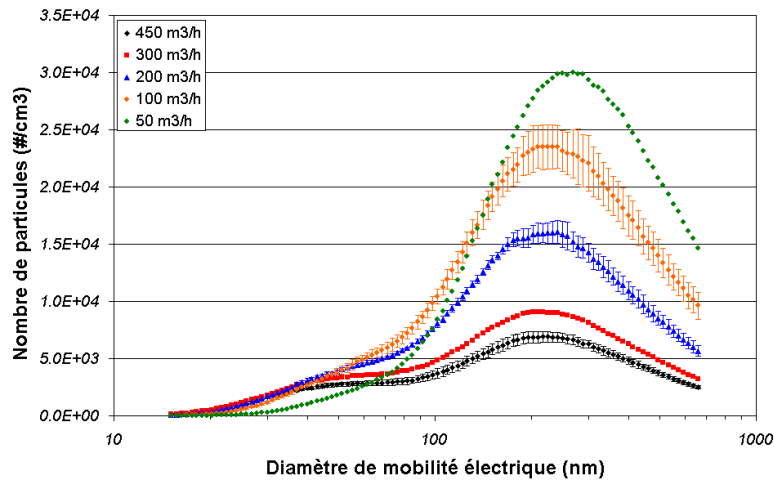


Figure 4-16 : Evolution de la granulométrie SMPS en fonction du débit de ventilation pour le toluène

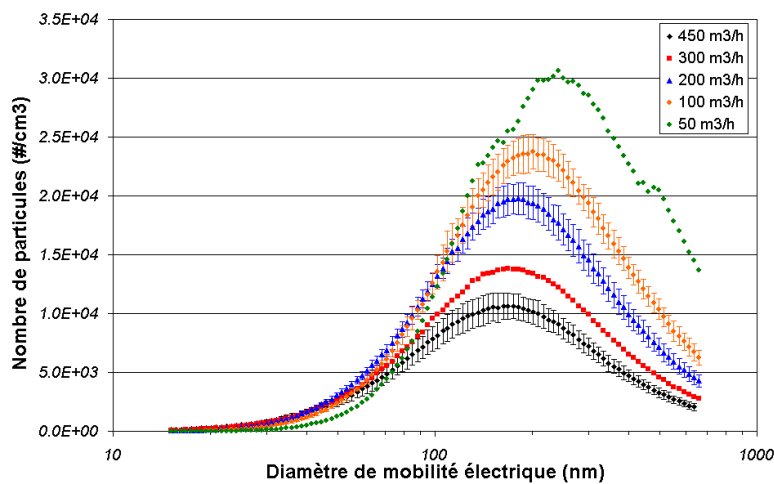


Figure 4-17 : Evolution de la granulométrie SMPS en fonction du débit de ventilation pour le PMMA

Pour l'acétylène (Figure 4-15) tout d'abord, le débit de ventilation ne semble pas affecter la distribution des diamètres de mobilité électrique, en ce sens que la forme et la valeur maximum (le mode) ne varient pas en fonction de la ventilation. Le nombre total de particules évolue avec le débit de ventilation de par la dilution imposée par ce débit de ventilation. A l'inverse on observe une modification significative de la distribution pour le toluène et le PMMA (Figure 4-16 et Figure 4-17).

Le cas du toluène est particulièrement intéressant car on observe la présence d'un mode de particules centrées autour de 40 nm pour les forts débits de ventilation, et qui disparaît progressivement lorsque le débit de ventilation diminue. Ces particules étant présentes exclusivement à fort débit de ventilation, cela correspond aux cas où la température dans la ligne est la plus faible (50°C à 450 m³/h contre 120 °C à 50 m³/h, cf. Figure 4-2). On pense alors à des particules générées par la condensation de vapeurs d'espèces imbrûlées. Pour vérifier cette hypothèse, nous avons effectué les mêmes mesures mais à la sortie d'un thermo-dénudeur. Cet appareil permet de chauffer les particules à une température telle que la majorité des espèces organiques sont à l'état de vapeur. Nous présentons sur la Figure 4-18 les distributions obtenues à 450 m³/h en aval et en amont de ce thermo-dénudeur.

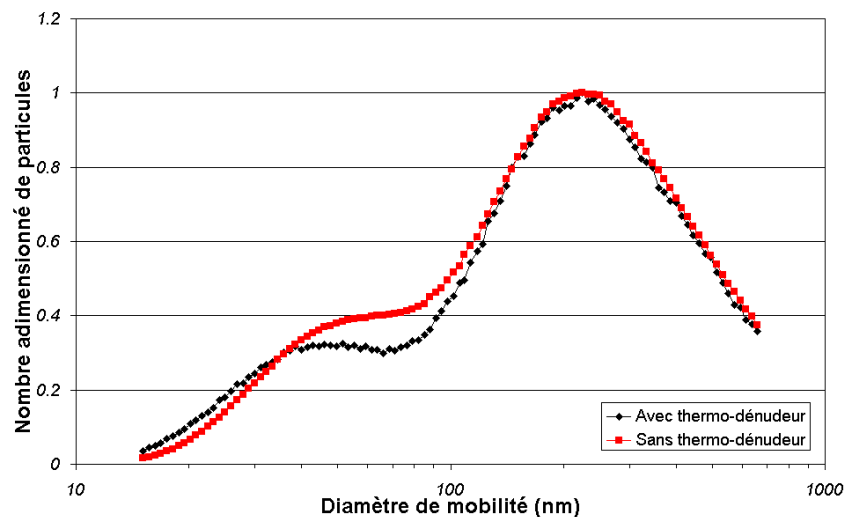


Figure 4-18 : Comparaison des distributions SMPS amont et aval du thermo-dénudeur pour des agrégats de suie de toluène prélevés à 450 m³/h

On retrouve sur les deux distributions le second mode de particules centré à 40 nm. L'hypothèse qui assume que ces particules ultra-fines sont liquides et d'origine organique n'est pas vérifiée. Les particules de ce mode secondaire sont donc des petits agrégats de suie. Mais il faut noter que leur diamètre (de l'ordre de 40 nm) est proche de celui des particules primaires (voir Tableau 4-4).

Nous détaillons ici l'influence de la richesse sur les paramètres caractéristiques des distributions, à savoir le diamètre médian, l'écart type et le nombre total des agrégats. Tout d'abord l'évolution expérimentale du diamètre médian aérodynamique et de mobilité électrique des particules de suie, en fonction de la richesse globale, est présentée sur la Figure 4-19.

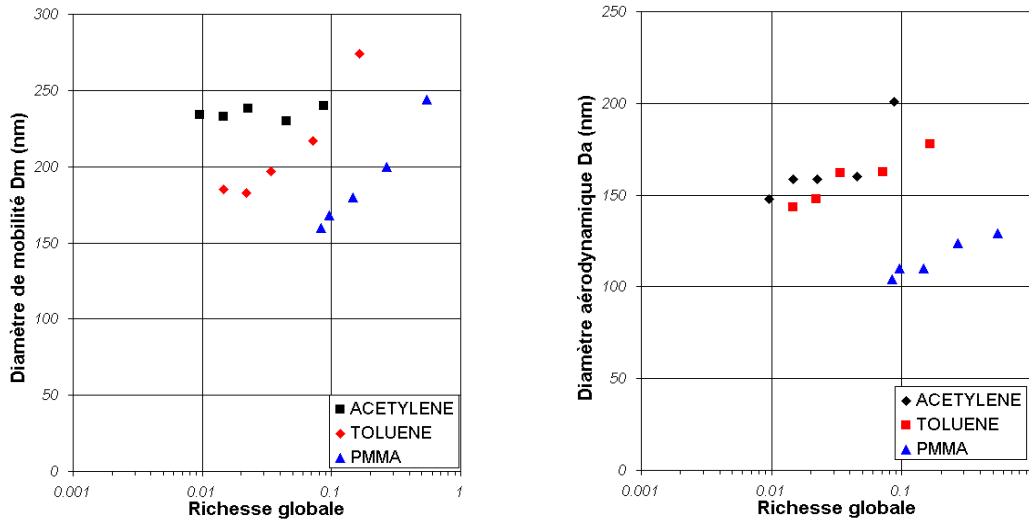


Figure 4-19 : Evolution du diamètre médian des agrégats en fonction de la richesse (gauche : diamètre de mobilité mesuré à l'aide du SMPS, droite : diamètre aérodynamique mesuré à l'aide du ELPI)

Le diamètre médian des agrégats est directement influencé par la richesse globale et l'on observe pour chaque combustible que ces diamètres croissent lorsque la richesse globale augmente. L'augmentation de la taille des agrégats peut être reliée au temps de résidence dans le foyer. En effet ce dernier augmente avec la richesse globale. L'accroissement du diamètre médian avec la richesse et donc avec le temps de résidence semble indiquer que l'agglomération serait favorisée par un temps de résidence plus important dans le foyer. Afin de tester cette hypothèse, nous présentons sur la [Figure 4-20](#) l'évolution de l'écart type géométrique des distributions en fonction de la richesse globale.

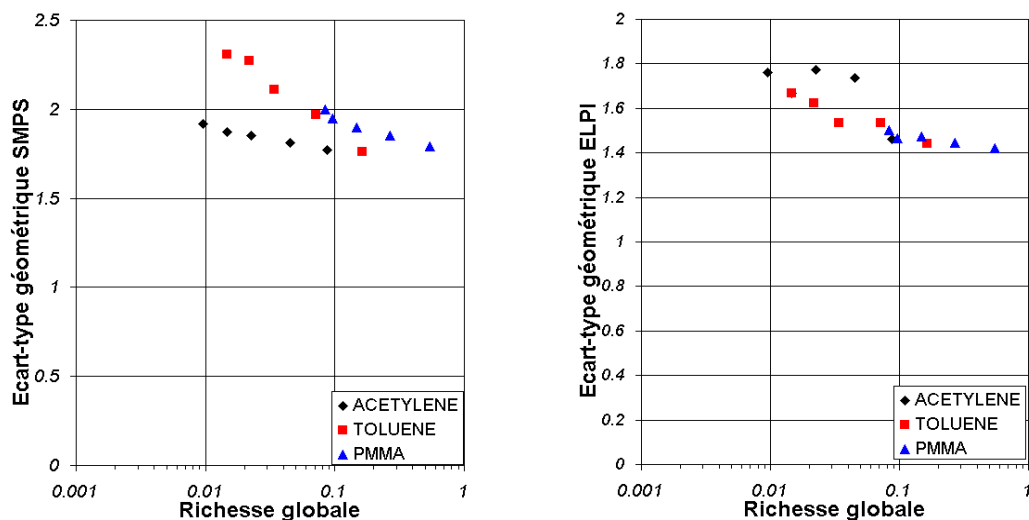


Figure 4-20 : Evolution de l'écart type géométrique en fonction de la richesse globale (gauche : écart-type de la distribution SMPS, droite : écart-type de la distribution ELPI)

Cet écart type diminue quand la richesse et donc le temps de résidence augmentent. Cette évolution est cohérente avec une possible coagulation des particules de suie. Nous présentons de plus, sur la [Figure 4-21](#), le lien observé expérimentalement entre l'écart type géométrique des distributions, obtenues à l'aide du SMPS et du ELPI, et la dimension fractale correspondante des agrégats.

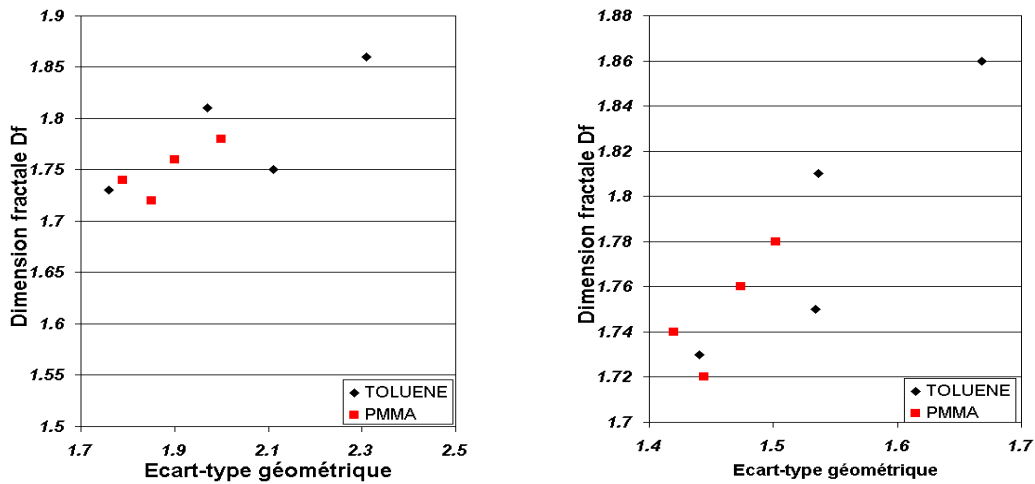


Figure 4-21 : Evolution de la dimension fractale en fonction de l'écart-type géométrique des distributions granulométriques mesurées (à gauche : SMPS, à droite : ELPI)

Pour le toluène et le PMMA dimension fractale et dispersion de la distribution granulométrique semblent être liées et on peut s'attendre à obtenir une dimension fractale d'autant plus importante que la distribution granulométrique est polydispersée. Cette évolution peut s'expliquer par le fait que dans le régime continu ($K_n \ll 1$), lorsque la dimension fractale diminue, la section efficace des agrégats augmente et la mobilité des agrégats diminue (Rogak et Flagan, 1992, Jain et Kodas, 1998, Harris et Matti Maricq, 2001). Ces deux effets ont ainsi tendance à se compenser partiellement et on constate alors des distributions de diamètres moins dispersées et présentant un écart-type géométrique plus faible lorsque la dimension fractale diminue.

Nous avons établi expérimentalement la relation liant la fraction volumique de suies à la richesse globale (Figure 4-5) et nous avons souligné le fait que la fraction volumique augmente lorsque la richesse augmente. On peut de la même manière s'intéresser à l'évolution de la concentration en nombre d'agrégats en fonction de cette richesse. La Figure 4-22 présente à la fois l'évolution de cette concentration en nombre et l'évolution du débit de production en nombre d'agrégats Q_{ag} .

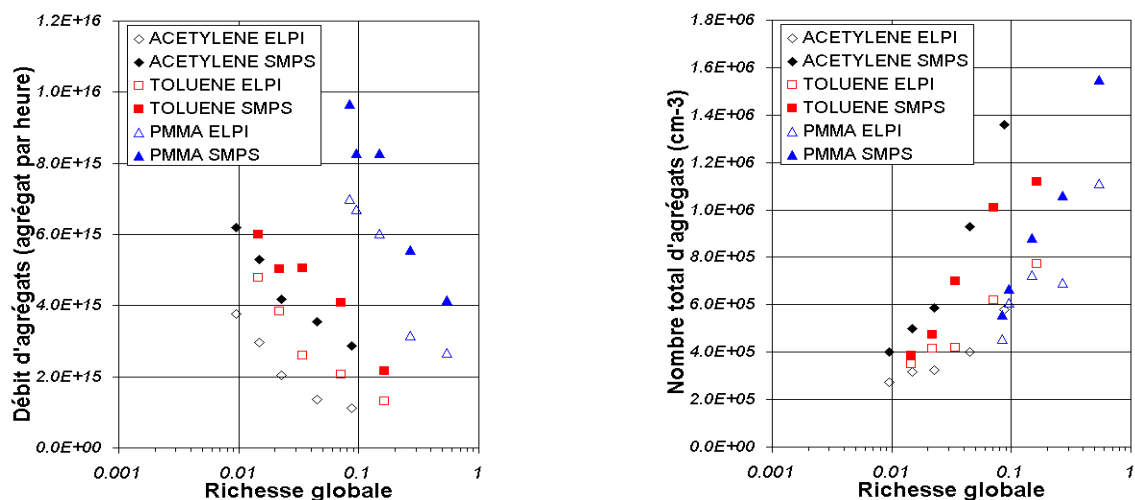


Figure 4-22: Evolution du débit d'agrégats et de la concentration en nombre en fonction de la richesse globale

Ce débit est déterminé à partir de la concentration en nombre d'agrégats N_{ag} et du débit de ventilation Q_{air} par : $Q_{ag} = N_{ag} \cdot Q_{air}$. L'évolution de la concentration en nombre est assez cohérente avec l'évolution de la fraction volumique en fonction de la richesse (cf. [Figure 4-5](#)). En revanche si on s'intéresse au débit de production en nombre d'agrégats on voit que l'influence de la richesse est loin d'être aussi simple. En effet le débit de production pour les trois combustibles diminue lorsque la richesse augmente et il apparaît cohérent avec l'évolution du facteur d'émission ([Figure 4-6](#)) pour l'acétylène et le toluène. Tandis que pour le PMMA ce facteur d'émission varie peu (voir [Figure 4-6](#)) le nombre d'agrégats augmente tandis que le débit de production en nombre diminue. En fait le débit en nombre est fonction à la fois du nombre, qui augmente avec la richesse, et du débit d'air, qui diminue avec la richesse. Il apparaît que la décroissance du débit d'air avec la richesse est suffisamment forte pour compenser l'effet de l'augmentation du nombre sur le débit.

4.4.4 CAUSES POSSIBLES DE GROSSISSEMENT DES AGREGATS DE SUIE EN FONCTION DE LA RICHESSE GLOBALE DANS LE FOYER

4.4.4.1 Effet de la taille des particules primaires

Nous avons observé l'influence de la richesse sur le diamètre des particules primaires et des agrégats qui augmente lorsque la richesse augmente. De prime abord on peut considérer que cette augmentation du diamètre des particules primaires donne lieu à des agrégats de plus grands diamètres car composés de plus grosses particules. Il faut cependant garder en mémoire que la formation des agrégats dans la flamme résulte de phénomènes de coagulation du fait de l'agitation des particules et de la forte concentration en particules primaires dans la flamme. La coagulation est donc essentiellement régie par les phénomènes de diffusion qui sont d'autant plus conséquents que le diamètre des particules est faible. Des travaux, menés par Matsoukas et Friedlander (1991) et Wu et Friedlander (1993) ont ainsi souligné l'importance de la taille des particules primaires sur la vitesse de formation des agrégats. Nous introduisons le diamètre moyen $\overline{D_{ag}}$ des agrégats en fonction du diamètre des particules primaires D_{pp} qui est tel que :

$$\overline{D_{ag}} = 2 \cdot \left[D_{pp}^{1/z} + \frac{1-\lambda}{2} \cdot \left(\frac{6 \cdot k \cdot T}{\rho_{pp}} \right)^{1/2} \cdot \left(\frac{3}{4\pi} \right) \cdot D_{pp}^{(3D_f-9)/2} \cdot a \cdot \phi \cdot t_r \right]^z \quad \text{Équation 4-4}$$

Avec :

$$z = \frac{1}{D_f \cdot (1-\lambda)} \quad \text{Équation 4-5}$$

$$\lambda = \frac{2}{D_f} - \frac{1}{2} \quad : \text{degré d'homogénéité} \quad \text{Équation 4-6}$$

k : constante de Boltzmann ($1,38E^{-23} \text{ kg} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)

T : température de la flamme (K)

ρ_{pp} : masse volumique des particules primaires (kg/m^3)

D_f : dimension fractale

a : paramètre de la fonction de distribution (a=7 pour $D_f=2$ d'après Wu & Friedlander(1993))

ϕ : fraction volumique de suie dans la flamme

t_r : temps de coagulation (s)

Nous présentons sur la Figure 4-23 l'évolution du diamètre $\overline{D_{ag}}$ des agrégats en fonction du temps de coagulation et en utilisant les informations déterminées au sein de la flamme d'acétylène. On remarque que le diamètre des agrégats augmente d'autant plus vite que le diamètre des particules primaires est faible. Ce résultat théorique indique donc que pour un même temps de séjour, les agrégats sont d'autant plus grands que les particules primaires initiales sont petites et va donc à l'inverse de nos résultats expérimentaux.

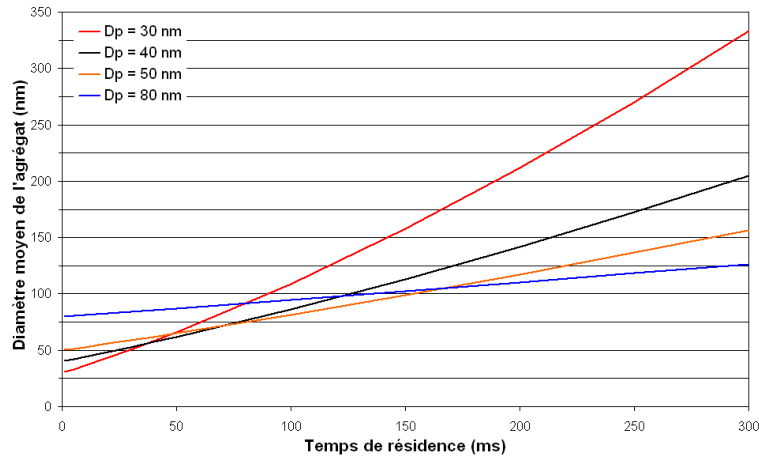


Figure 4-23: Evolution du diamètre moyen des agrégats au cours du temps pour différents diamètres de particules primaires et avec : $D_f = 1,8$, $\phi = 10^{-7}$, $T = 800^\circ K$, $\rho_{pp} = 1720 \text{ kg/m}^3$ (d'après Wu & Friedlander, 1993).

4.4.4.2 Effet de la coagulation

On se propose de comparer les informations granulométriques obtenues à l'aide du ELPI et du SMPS pour différentes richesses aux informations granulométriques issues d'un modèle de coagulation. Nous présentons l'approche et les hypothèses inhérentes à cette comparaison.

4.4.4.2.1 Coagulation d'un aérosol monodispersé

Nous présentons tout d'abord la coagulation de manière simplifiée, c'est à dire pour un aérosol qui reste monodispersé au cours du temps. On utilise l'équation de Smoluchowski, qui considère que c'est la diffusion des particules qui limite le processus de coagulation et qui prédit l'évolution au cours du temps de la concentration numérique de particules :

$$\frac{dN}{dt} = -K \cdot N^2 \quad \text{Équation 4-7}$$

Avec :

N : concentration numérique de particules ($\#/m^3$)

K : coefficient de coagulation (m^3/s)

Pour des particules dont le diamètre d_p est supérieur au libre parcours moyen λ du gaz, le coefficient de coagulation K est tel que :

$$K = 4 \cdot \pi \cdot d_p \cdot D = \frac{2 \cdot k \cdot T \cdot C_c}{3 \cdot \eta} \quad \text{Équation 4-8}$$

Avec :

D : coefficient de diffusion des particules (m²/s)

η : viscosité du gaz (Pa.s)

k : constante de Boltzmann : 1,38.10⁻²³ J/K

T : température (K)

C_c : coefficient de Cunningham

On peut, en résolvant cette équation, décrire l'évolution du nombre de particules sur une période t :

$$N(t) = \frac{N_0}{1 + N_0 \cdot K \cdot t} \quad \text{Équation 4-9}$$

Avec :

N(t) : concentration numérique au temps t (#/m³)

N₀ : concentration numérique initiale (#/m³)

On peut de plus calculer l'évolution du diamètre des particules grâce à la conservation de la masse :

$$d(t) = d_0 \cdot \left(\frac{N_0}{N(t)} \right)^{1/3} \quad \text{Équation 4-10}$$

En intégrant cette équation (4-10) dans la relation (4-9), on calcule le diamètre des particules après coagulation en fonction du coefficient de coagulation :

$$d(t) = d_0 \cdot (1 + N_0 \cdot K \cdot t)^{1/3} \quad \text{Équation 4-11}$$

Connaissant la concentration initiale, le diamètre initial et le temps de coagulation des particules on peut donc estimer le diamètre et la concentration de ces particules après coagulation. Cette approche simplifiée reposant sur l'équation de Smoluchowski est ensuite utilisée afin de traiter le cas d'un aérosol polydispersé.

4.4.4.2.2 Coagulation d'un aérosol polydispersé

Dans le cas d'un aérosol polydispersé la principale difficulté dans la résolution de l'équation de Smoluchowski réside dans la détermination du coefficient de coagulation. Dans cette étude nous avons utilisé les travaux de Lee et Chen (1984) qui repose sur l'estimation d'un coefficient de coagulation moyen. Ainsi dans le cas d'une distribution granulométrique de type log-normale avec un diamètre médian d_{median} et un écart-type géométrique σ_g , on peut définir pour l'ensemble des particules composant cet aérosol, un coefficient de coagulation moyen \bar{K} tel que :

$$\bar{K} = \frac{2kT}{3\eta} \cdot \left\{ 1 + \exp(\ln^2 \sigma_g) + \left(\frac{2,49\lambda}{d_{median}} \right) (\exp(0,5 \cdot \ln^2 \sigma_g) + \exp(2,5 \cdot \ln^2 \sigma_g)) \right\} \quad \text{Équation 4-12}$$

Ainsi on peut intégrer cette valeur de K qui tient compte de la dispersion des diamètres dans la relation (4-7). Si on suppose que K ne varie pas beaucoup au cours du processus d'agglomération, on peut utiliser la relation (4-11) :

$$d(t) = d_0 \cdot (1 + N_0 \cdot K \cdot t)^{1/3} \quad \text{Équation 4-13}$$

Cette approche repose sur trois hypothèses fortes. La première qui stipule que la distribution des diamètres de l'aérosol est de type log-normal. La seconde hypothèse repose sur l'utilisation d'un coefficient de coagulation moyen \bar{K} qui sous-entend que cette approche n'est valable que pour des évolutions par coagulation assez faibles et la troisième assume que les particules sont des sphères. Cette approche n'est évidemment pas la meilleure qui soit pour rendre compte des effets de la dispersion. D'autres modèles plus performants existent (Park *et al.*, 1999, Otto *et al.*, 1999, Park et Rogak, 2004) mais ce modèle est censé représenter les processus de coagulation des suies au cours de leur temps de résidence dans le foyer de combustion. Notre démarche n'a qu'un seul but, l'estimation de l'ordre de grandeur des effets de la coagulation.

4.4.4.2.3 Détermination des données initiales du calcul de coagulation

Les informations qu'il convient de connaître sont, pour la distribution des diamètres, le diamètre médian, l'écart type ainsi que le nombre total de particules par unité de volume et, pour le gaz porteur la pression, la température et surtout le temps de résidence. La pression dans notre étude a très peu d'effet car elle est rarement différente de la pression atmosphérique, la température est, elle aussi assez peu influente et induit une variation de 2 % pour une variation de température de 250 °C (Baron et Willeke, 2001). Les calculs ont donc été effectués en considérant une température de 20 °C et la pression atmosphérique. Le temps de résidence est estimé à partir du volume du foyer et du débit de ventilation imposé dans ce foyer grâce à la relation :

$$T_{résidence} = \frac{V_{résidence}}{Q_{ventilation}} \quad \text{Équation 4-14}$$

Ou :

$T_{résidence}$: temps de résidence des particules de suie (s)

$V_{résidence}$: volume de résidence des particules de suie (m³)

$Q_{ventilation}$: débit de ventilation du foyer (m³/h)

Ce qui correspond à des temps de résidence compris entre 5 et 30 s. Les caractéristiques initiales de l'aérosol, le diamètre médian $d_{médian}$, l'écart-type σ_g et le nombre total de particules par unité de volume N , sont prises égales à celles qui ont été observées pour le plus grand débit de ventilation (450 m³/h) et donc le temps de résidence le plus faible. Nous considérons que pour ce temps de résidence l'agglomération a peu agi. Ces informations sont donc directement exploitables pour le calcul du nombre de particules présentes dans le foyer pour les autres débits de ventilation (inférieurs à 450 m³/h). Pour chacun de ces débits le nombre initial N_0 de la relation (4-11) est alors déterminé en considérant l'évolution de la concentration en nombre de particules en fonction du débit de ventilation (loi établie expérimentalement).

Fonction d'évolution de la concentration numérique

Le but de cette approche est de déterminer la concentration numérique N_0 initiale dans la chambre d'essai pour un débit donné, toujours à partir de la concentration mesurée à 450 m³/h. La concentration en nombre étant sensible aux phénomènes de coagulation nous exploitons plutôt les résultats obtenus pour la concentration massique en particules de suie en fonction du débit de ventilation. Pour cela on trace la moyenne des concentrations massiques expérimentales déterminées pour les différents débits de ventilation et

on normalise par la concentration massique à 450 m³/h. On représente sur la Figure 4-24 les trois fonctions d'évolution correspondant à l'acétylène, au toluène et au PMMA.

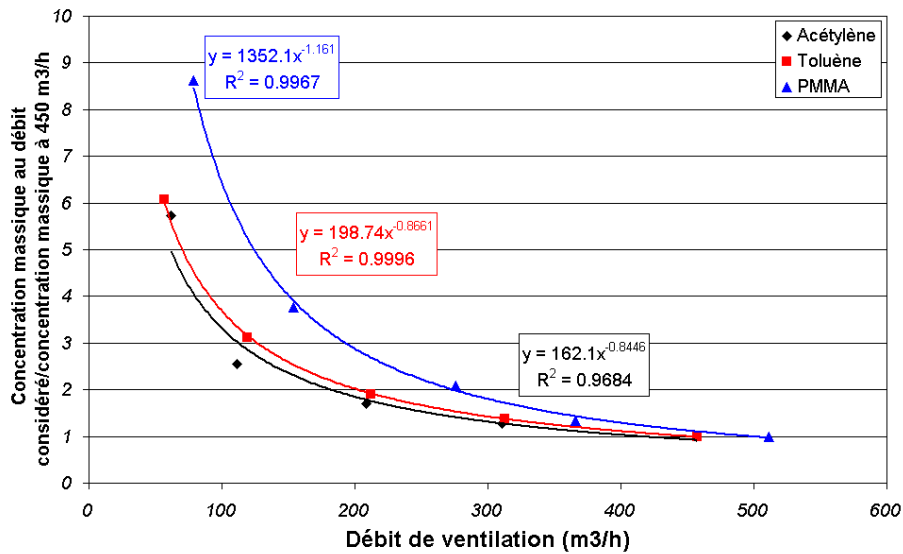


Figure 4-24 : Fonction d'évolution de la concentration en fonction du débit de ventilation

La concentration numérique N_0 au débit de ventilation $Q_{\text{ventilation}}$ à intégrer dans le modèle de coagulation est alors telle que :

$$N_{Q_{\text{ventilation}}} = N_{450 \text{ m}^3/\text{h}} \cdot f(Q_{\text{ventilation}}) \quad \text{Équation 4-15}$$

Ou :

$f(Q_{\text{ventilation}})$: fonction d'évolution de la concentration en fonction du débit

4.4.4.2.4 Comparaison des résultats apportés par le modèle simple de coagulation et les données expérimentales

L'évolution expérimentale du diamètre médian de mobilité électrique et aérodynamique en fonction du temps de résidence dans le foyer est comparée sur la Figure 4-25 aux données issues du modèle simple de coagulation présenté dans le paragraphe précédent. On voit à travers cette figure que les évolutions des diamètres des agrégats sont relativement bien représentées par l'hypothèse de coagulation des agrégats dans le foyer. Il convient cependant de considérer cette évolution d'un simple point de vue qualitatif puisque la notion de coagulation est difficilement applicable à des agrégats. En effet si on effectue une analogie avec des gouttes sphériques, la coagulation de deux gouttes de diamètre D_1 et D_2 donnera toujours lieu à une goutte de diamètre D_3 . A l'inverse si on considère la coagulation d'agrégats de diamètres équivalents D_1 et D_2 on peut alors obtenir une gamme de diamètre et non pas un diamètre final précis. Ce travail sur la coagulation des agrégats a essentiellement été mené afin de souligner les phénomènes engendrant une modification de la granulométrie de ces agrégats.

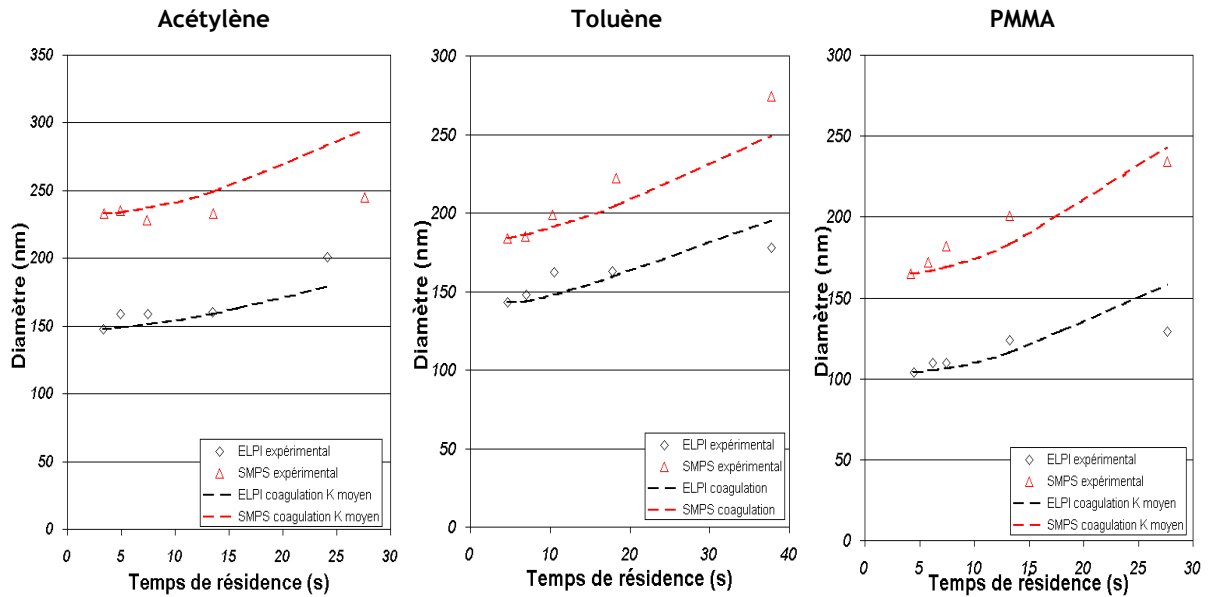


Figure 4-25 : Comparaison entre l'évolution expérimentale des diamètres médians des agrégats et l'évolution calculée à partir du modèle de coagulation (acétylène à gauche, toluène au centre et PMMA à droite)

4.4.5 RELATION ENTRE LE FACTEUR D'EMISSION ET LE DIAMETRE MEDIAN DES AGREGATS, ET ENTRE LE FACTEUR D'EMISSION ET LE DIAMETRE DES PARTICULES PRIMAIRES

Afin de comparer le comportement des différents combustibles nous présentons sur la [Figure 4-26](#) et la [Figure 4-27](#) l'évolution du facteur d'émission de particules de suie en fonction du diamètre médian des agrégats et des particules primaires. Les résultats de la [Figure 4-26](#) soulignent le lien existant entre la quantité de suies émises et le diamètre médian des agrégats, ainsi lorsque l'on produit plus de particules de suie (facteur d'émission important) on produit logiquement des agrégats dont le diamètre médian est plus important.

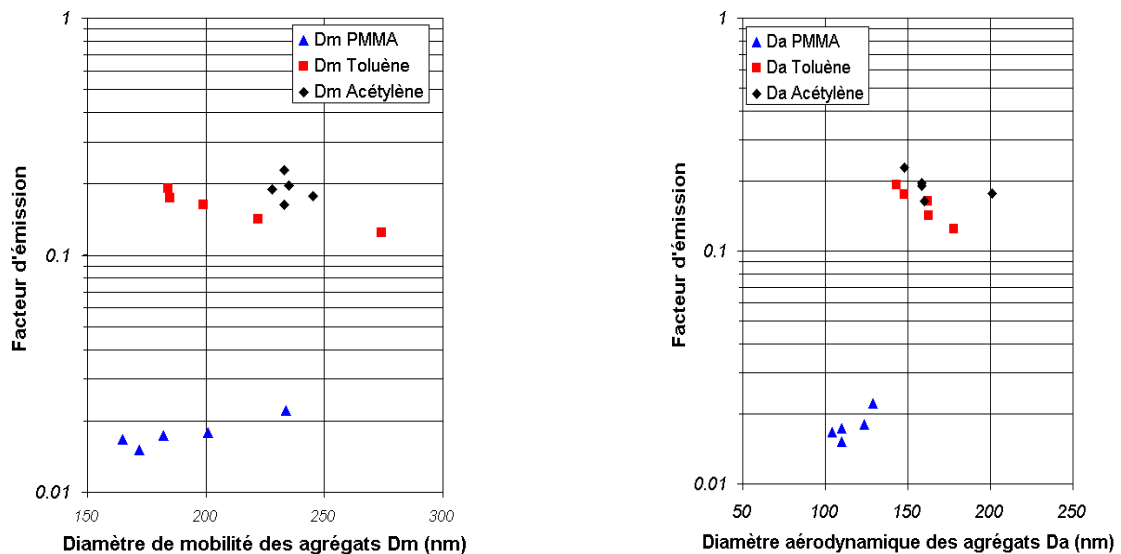


Figure 4-26 : Facteur d'émission en fonction du diamètre des agrégats (gauche : SMPS, droite : ELPI)

On peut cependant noter que dans le cas du Toluène et du PMMA, on observe des comportements opposés lorsque la richesse augmente. Ainsi le diamètre des agrégats s'accroît lorsque la richesse augmente pour le PMMA et diminue pour le cas du toluène. Le même type de résultat peut être obtenu en considérant le facteur d'émission en fonction du diamètre des particules primaires, on voit ainsi que pour les forts facteurs d'émission, on dispose de plus d'atomes de carbone afin de former des particules primaires dont le diamètre est plus important (cf. [Figure 4-27](#)).

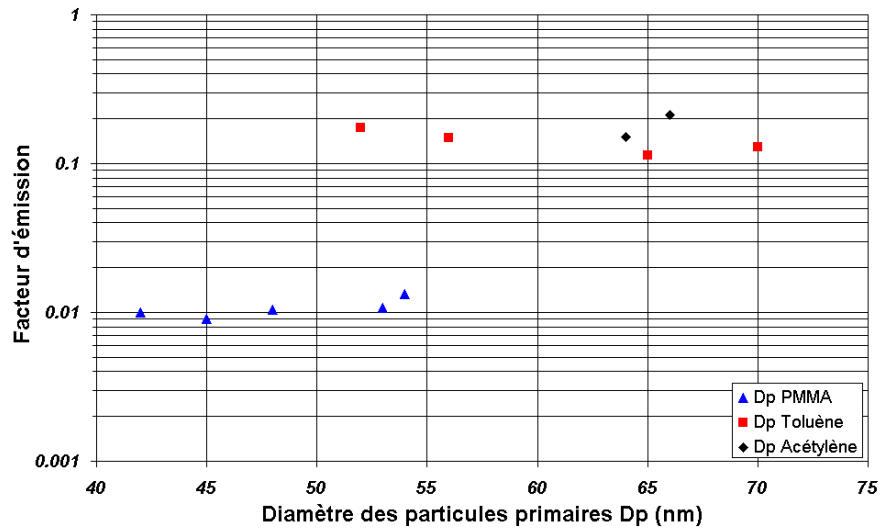


Figure 4-27 : Facteur d'émission en fonction du diamètre des particules primaires

4.5 UTILISATION DES DONNEES GRANULOMETRIQUES ET MORPHOLOGIQUES POUR LE CALCUL DE L'EVOLUTION DU FACTEUR D'EMISSION EN FONCTION DE LA RICHESSE GLOBALE

Dans ce paragraphe nous détaillons une méthode de calcul qui permet d'expliquer l'évolution du facteur d'émission de suie en fonction de la richesse. Pour cela nous utilisons les relations expérimentales qui lient les caractéristiques morphologiques et granulométriques des agrégats à la richesse. Nous avons, dans les paragraphes précédents, détaillé l'influence de la richesse sur les divers paramètres que sont la dimension fractale, le préfacteur, le diamètre des particules primaires et des agrégats ainsi que le débit de production en nombre d'agrégat. A partir de ces différentes informations nous allons estimer l'évolution de la masse réelle des agrégats en fonction de la richesse et par la même occasion nous établirons une fonction d'évolution du facteur d'émission également en fonction de la richesse :

- Détermination du diamètre de giration D_g moyen pour chaque richesse en utilisant la relation expérimentale $D_m=f(\text{GER})$ (cf. [Figure 4-19](#)) et la relation théorique $D_g = \beta \cdot D_m$ (Rogak *et al.*, 1990), avec le paramètre β constant étant pris égal à 1,5 (cf. 5.6.2).
- Détermination du nombre moyen de particules primaires N_p composant l'agrégat en déterminant le diamètre des particules primaires à chaque richesse ($D_{pp}=f(\text{GER})$ cf.4.4.2) et à l'aide de la relation

fractale et des caractéristiques morphologiques issues de l'analyse de clichés MET (cf. 4.4.2) .

- Détermination de la masse d'un agrégat M_{ag} pour chaque richesse :

$$M_{ag} = \frac{\pi}{6} \cdot D_{pp}^3 \cdot \rho_{pp} \cdot N_p \quad \text{Équation 4-16}$$

La masse volumique des particules primaires ρ_{pp} est déterminée à l'aide de la méthode détaillée dans l'annexe 3 et a été déterminée pour les suies issues de chacun des combustibles.

- Détermination du facteur d'émission pour chaque richesse à partir de la relation expérimentale liant le débit de production en nombre d'agrégats et la richesse $Q_{ag}=f(GER)$ (cf.4.4.3, Figure 4-22) :

$$\eta_{suies} = \frac{Q_{ag} \cdot M_{ag}}{Q_{C_{combustible}}} \quad \text{Équation 4-17}$$

On peut donc à partir de cette analyse établir l'évolution de la masse moyenne des agrégats en fonction de la richesse (Figure 4-28) ainsi qu'estimer l'évolution du facteur d'émission en fonction de cette même richesse (Figure 4-29). On observe que la masse des agrégats est très sensible à la richesse dans le cas du toluène et du PMMA. On observe de plus sur la Figure 4-29 une bonne cohérence entre notre calcul et les données expérimentales. On peut ainsi souligner que dans le cas de la flamme d'acétylène et de toluène, une richesse croissante tend à diminuer le nombre d'agrégats produits, diminution qui sur cette gamme de richesse ne peut pas être compensée par l'augmentation progressive de la masse des agrégats. A l'inverse, pour le PMMA, il semble que la masse des agrégats de plus en plus importante dans la gamme de richesse étudiée compense la diminution du nombre d'agrégats produits. Dans ce cas on produit moins d'agrégats mais on produit aussi des agrégats beaucoup plus massifs qui expliquent l'augmentation observée du taux de production. Cette fonction d'évolution repose sur les évolutions lissées des résultats expérimentaux.

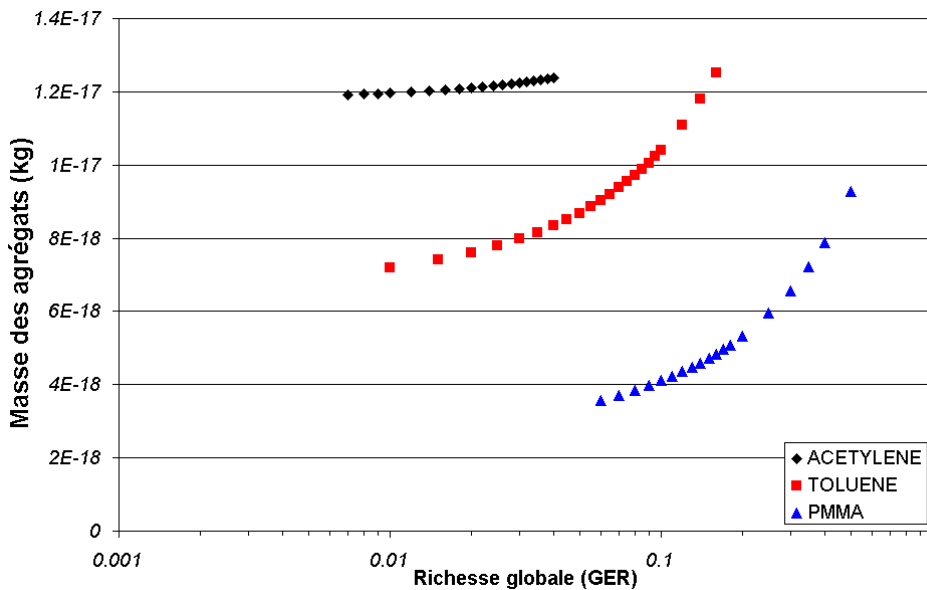


Figure 4-28: Evolution de la masse des agrégats en fonction de la richesse globale

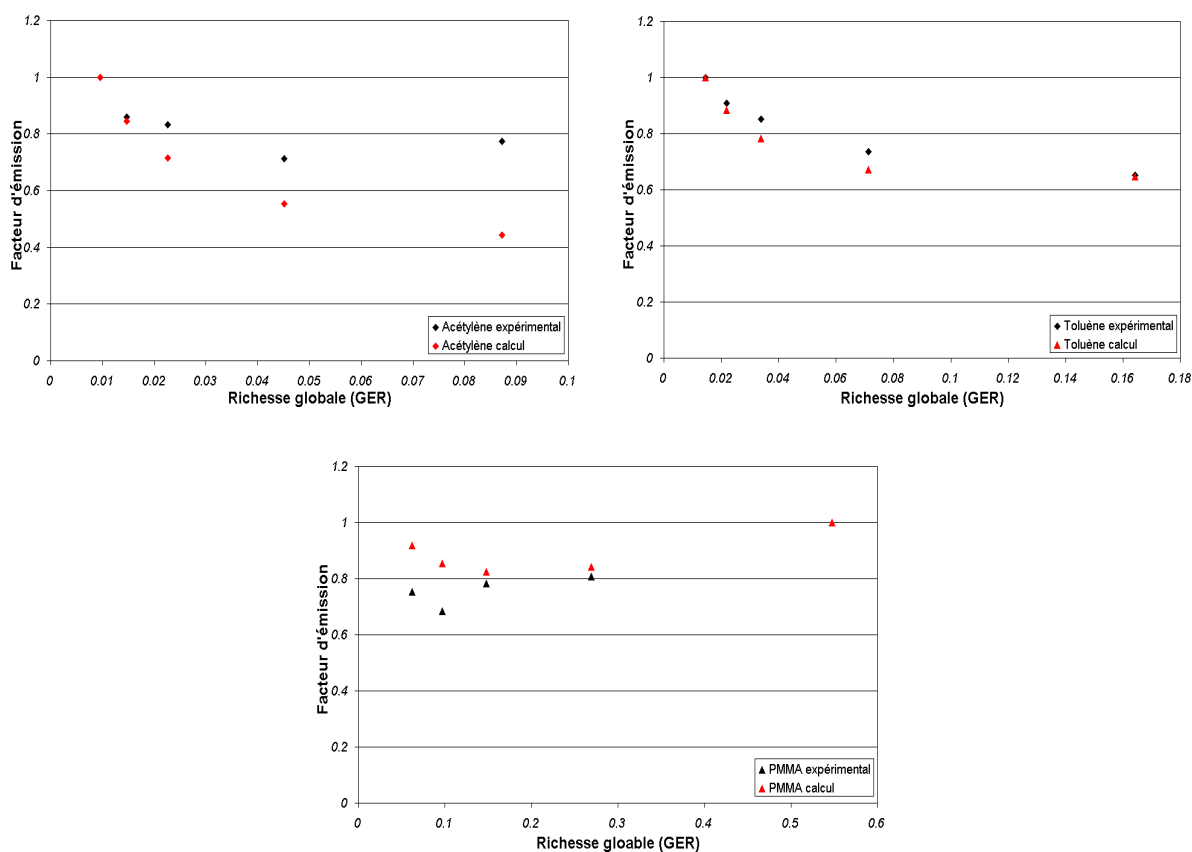


Figure 4-29: Comparaison de l'évolution du facteur d'émission expérimental et calculé en fonction de la richesse pour l'acétylène, le toluène et le PMMA

4.6 CONCLUSIONS DE L'ANALYSE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

La morphologie et la taille des particules émises lors d'un incendie est donc sensible à la nature du combustible et au mode de production (richesse). A l'inverse son évolution dans une ligne de ventilation apparaît assez limitée. Tout d'abord il semble que dans le cas de foyer sur-ventilé, la richesse joue un rôle important sur le facteur d'émission des particules, diminuant d'une part cette émission pour des richesses inférieures à 0,2, l'augmentant d'autre part, lorsque les richesses sont supérieures à 0,2 (cf. [Figure 4-6](#)). Cette influence sur la production se retrouve sur les caractéristiques granulométriques des particules de suie. En effet, si la richesse ne semble pas influencer la dimension fractale ni le préfacteur des agrégats, le diamètre des particules primaires et le diamètre des agrégats sont très sensibles aux conditions de combustion. On observe ainsi une augmentation de ces diamètres lorsque la richesse augmente traduisant une augmentation significative de la masse des agrégats. Cette augmentation en masse des agrégats pourrait se traduire par une augmentation du facteur d'émission de particules de suie pour les trois combustibles étudiés mais il faut cependant considérer de plus l'évolution du nombre d'agrégats en fonction de la richesse. Ainsi la production en nombre d'agrégats diminue lorsque la richesse augmente compensant l'augmentation de la masse des agrégats observée pour l'acétylène et le toluène. Pour le PMMA, cette diminution du nombre d'agrégats

produits ne suffit cependant pas à compenser l'accroissement de la masse des agrégats et on observe une augmentation du facteur d'émission de suie lorsque la richesse augmente. Il serait intéressant d'étendre la gamme de richesse afin de couvrir à la fois des richesses très pauvres en combustible ($\ll 1$) mais aussi très riches ($\gg 1$).

Les propriétés des particules de suie sont donc particulièrement influencées par les conditions de combustion imposées dans le foyer et une étude a été menée afin d'isoler l'évolution de ces particules dans la ligne de ventilation. Cette évolution hors foyer s'est révélée très faible sur des temps de passage correspondant à la présente installation (inférieurs à 5s) et nous permet de considérer les résultats obtenus au plus proche du foyer comme applicable à toute la ligne de ventilation utilisée dans cette étude.

La principale conclusion de cette étude réside dans l'influence des conditions de combustion sur la nature et la production des particules de suie. En effet ce travail trouve son origine dans l'étude du comportement des éléments de filtration (filtres THE) en situation accidentelle d'incendie. Initialement les granulométries en masse établies à l'aide d'impacteurs ANDERSEN ne permettaient pas d'expliquer les disparités comportementales observées. Dans la présente étude nous avons souligné à la fois l'influence de la nature du combustible et des conditions de ventilation. Ainsi le taux de production, la taille des particules primaires et des agrégats sont essentiellement fonction du combustible et ces paramètres se trouvent ensuite influencés par le mode de combustion en présence. Il faut cependant souligner le fait que la morphologie de ces particules est proche pour chacun des combustibles et pour les différentes richesses étudiées.

5 PROPRIETES OPTIQUES DES PARTICULES DE SUIE : MODELES DE CALCUL ET DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

5.1 OBJECTIFS DE L'ETUDE

La connaissance des propriétés optiques des particules émises lors d'un incendie est un sujet important qui a déjà fait l'objet de nombreuses études (Dalzell et Sarofim, 1969, Lee et Tien, 1981, Charalampopoulos et Fleske, 1987, Habib et Vervisch, 1988, Van-Hulle *et al.*, 2002). En effet la détermination de ces propriétés, et tout particulièrement de l'indice de réfraction, permet l'établissement de grandeurs fondamentales telles que la fraction volumique de suie dans une flamme ou bien encore de modéliser les transferts d'énergie par rayonnement dans les foyers confinés. Dans la première partie de ce chapitre nous allons introduire et détailler les propriétés optiques de ces particules ainsi que les modèles décrivant l'interaction lumière-particule. Nous présenterons dans la partie suivante le principe de mesure des coefficients d'extinction et de diffusion de la lumière ainsi que la méthode d'inversion permettant de déterminer l'indice de réfraction des particules de suie.

5.2 DIFFUSION DE LA LUMIERE PAR DES PARTICULES DE SUIE

En premier lieu, il est rappelé les notions fondamentales qui permettent de bien comprendre les phénomènes d'extinction et de diffusion de la lumière par une particule. Ensuite les modèles qui permettent de calculer ces processus pour une sphère et des agglomérats de suie sont présentés.

5.2.1 INTERACTIONS ONDE - PARTICULE

5.2.1.1 Expression du champ incident et diffusé

Considérons une particule éclairée par une onde plane (cf. [Figure 5-1](#)). Cette onde monochromatique incidente E_i se décompose en deux états de polarisation $E_{//}$ et E_{\perp} . L'interaction avec une particule donne lieu à une onde diffusée E_d définie elle aussi par deux composantes (Bohren et Huffman, 1983) :

$$\begin{pmatrix} E_{//} \\ E_{\perp} \end{pmatrix}_d = \frac{\exp(-ikr)}{-ikr} \begin{pmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{//} \\ E_{\perp} \end{pmatrix}_i \quad \text{Équation 5-1}$$

En général, l'état de polarisation d'une onde est modifié lors de l'interaction avec un élément optique. Les éléments S_1, S_2, S_3 et S_4 sont des éléments complexe de la matrice de diffusion et ils dépendent généralement des angles θ et ϕ de diffusion. On peut alors définir des grandeurs caractérisant les phénomènes intervenant lors de ces interactions.

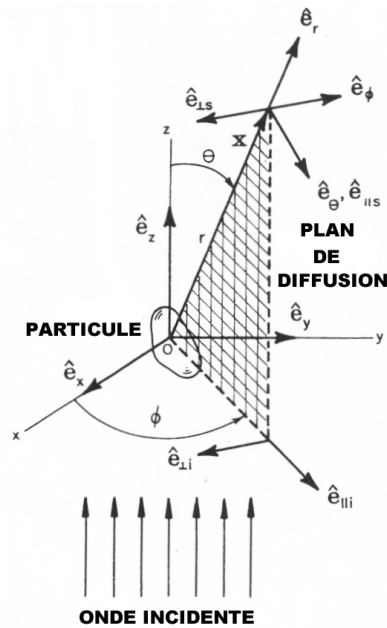


Figure 5-1 : Représentation du champ incident et du champ diffusé

5.2.1.2 Extinction, diffusion, absorption, albédo

Lorsqu'une particule est éclairée par une onde lumineuse, l'énergie reçue peut être absorbée ou diffusée. Sur l'axe de propagation de la lumière, la perte d'énergie est due à la conjugaison de ces deux phénomènes, c'est ce qu'on appelle l'extinction. On définit pour caractériser ces phénomènes plusieurs grandeurs caractéristiques. Tout d'abord, on définit W_a l'énergie absorbée par la particule, W_d l'énergie diffusée par cette même particule et W_e l'énergie éteinte par la particule considérée :

$$W_e = W_a + W_d \quad \text{Équation 5-2}$$

A partir de ces énergies on peut définir les sections efficaces (m^2) représentant le rapport entre les précédentes énergies et l'intensité incidente. Nous avons donc respectivement pour l'absorption, la diffusion et l'extinction :

$$C_a = \frac{W_a}{I_i} \quad \text{Équation 5-3}$$

$$C_d = \frac{W_d}{I_i} \quad \text{Équation 5-4}$$

$$C_e = \frac{W_e}{I_i} \quad \text{Équation 5-5}$$

Avec évidemment :

$$C_e = C_a + C_d \quad \text{Équation 5-6}$$

Pour établir les propriétés optiques de particules il convient donc de connaître ces sections efficaces. Comme nous le verrons par la suite, notre méthode expérimentale repose sur la mesure des sections efficaces d'extinction et de diffusion "verticale-verticale". Cette dernière correspond à une diffusion angulaire

particulière. Pour la définir on introduit la fonction de phase dépendant des deux angles de diffusion θ et Φ . Cette fonction caractérise l'intensité $I_s(\theta, \Phi)$ diffusée selon une direction définie par θ et Φ (voir [Figure 5-1](#)):

$$P_d(\theta, \Phi) = \frac{I_s(\theta, \Phi) k^2 r^2}{I_i} \quad \text{Équation 5-7}$$

La section efficace de diffusion verticale-verticale $C_{vv}(\theta)$ est définie pour une polarisation incidente et diffusée perpendiculaire au plan d'incidence (\vec{k}, \vec{r}) . Pratiquement dans notre approche expérimentale cette section efficace est mesurée pour un angle $\theta = 90^\circ$ et elle est définie à l'aide du premier élément S_1 de la matrice de diffusion :

$$C_{vv}(\theta) = \frac{1}{k^2} |S_1(\theta)|^2 \quad \text{Équation 5-8}$$

On peut de plus définir l'albédo d'une particule qui correspond aux rapports des sections efficaces de diffusion et d'extinction. Cet albédo représente la capacité de la particule à ré-émettre la lumière :

$$\alpha = \frac{C_d}{C_{ext}} \quad \text{Équation 5-9}$$

Ces différentes sections ne sont pas directement mesurées dans la présente étude. Ce qui est accessible à la mesure ce sont les coefficients d'extinction K_{ext} et de diffusion K_{vv} qui sont reliés aux sections efficaces grâce aux relations :

$$K_{ext} = N_p \cdot C_{ext} \quad \text{Équation 5-10}$$

$$K_{vv} = N_p \cdot C_{vv} \quad \text{Équation 5-11}$$

Où N_p représente le nombre de particules par unité de volume. Ces formules sont valables pour un échantillon de particules mono-dispersées. La principale difficulté du calcul des sections efficaces réside dans la prise en compte de la morphologie complexe des agrégats.

5.2.2 MODELES DE CALCUL DE LA DIFFUSION DE LA LUMIERE

Dans cette partie nous allons décrire les différents modèles utilisés afin d'estimer la diffusion de la lumière par des particules sphériques et par des agrégats de suie. De nombreux modèles existent et nous ne nous attarderons pas sur une comparaison de ces modèles. Le lecteur pourra trouver de plus amples informations dans le livre de Bohren et Huffman (1983) et dans le travail de Van-Hulle (2002) qui est à l'origine de la méthode d'inversion employée pour la détermination de l'indice des particules de suie. Nous présenterons tout d'abord les modèles de diffusion de la lumière applicable au cas de la sphère, la théorie de Mie et la théorie de Rayleigh. Nous aborderons ensuite les développements possibles à un cas plus complexe, celui des agrégats et nous traiterons donc de la théorie de Rayleigh-Debye-Gans appliquée aux agrégats de nature fractale (RDG-FA).

5.2.2.1 Cas des sphères : Théorie de Mie et approximation de Rayleigh

Il nous est apparu nécessaire de donner succinctement les fondements théoriques de la théorie de Mie et pour de plus amples détails, le lecteur pourra se reporter à l'ouvrage de Bohren et Huffman (1983). A partir du système de coordonnées présenté sur la [Figure 5-1](#), on peut définir les intensités diffusées polarisées

verticalement (I_θ) et horizontalement (I_ϕ) par rapport au plan de diffusion. Ces deux intensités sont déterminées grâce à la résolution des équations de Maxwell et des équations de continuité des champs à la surface des sphères. La solution est donnée sous forme de séries polynomiales qui dépendent des coordonnées (r , θ et ϕ) mais aussi du paramètre de taille x :

$$x = \frac{\pi \cdot d}{\lambda} \quad \text{Équation 5-12}$$

Où d est le diamètre de la sphère et λ la longueur d'onde de l'onde incidente. Nous avons donc pour ces deux intensités :

$$I_\phi = I_i \cdot \frac{\lambda^2}{4\pi^2 r^2} \cdot S_1^2 \cdot \sin^2(\phi) \quad \text{Équation 5-13}$$

$$I_\theta = I_i \cdot \frac{\lambda^2}{4\pi^2 r^2} \cdot S_2^2 \cdot \cos^2(\phi) \quad \text{Équation 5-14}$$

Dans ces deux relations, I_i représente l'intensité incidente, et les éléments de la matrice de diffusion S_1 et S_2 sont des séries polynomiales tels que :

$$S_1 = \left[\sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} [a_n \pi_n(\cos\theta) + b_n \tau_n(\cos\theta)] \right] \quad \text{Équation 5-15}$$

$$S_2 = \left[\sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} [a_n \tau_n(\cos\theta) + b_n \pi_n(\cos\theta)] \right] \quad \text{Équation 5-16}$$

Les fonctions π_n et τ_n sont dépendantes de l'angle θ et elles sont exprimées à partir de polynômes de Legendre :

$$\pi_n(\cos\theta) = \frac{P_n^{(1)}(\cos\theta)}{\sin\theta} \quad \text{Équation 5-17}$$

$$\tau_n(\cos\theta) = \frac{dP_n^{(1)}(\cos\theta)}{d\theta} \quad \text{Équation 5-18}$$

Les coefficients a_n et b_n sont quant à eux définis à partir de fonctions de Ricatti-Bessel :

$$a_n = \frac{\Psi_n(x) \cdot \Psi_n'(m \cdot x) - m \cdot \Psi_n(m \cdot x) \cdot \Psi_n'(x)}{\xi_n(x) \cdot \xi_n'(m \cdot x) - m \cdot \xi_n(m \cdot x) \cdot \xi_n'(x)} \quad \text{Équation 5-19}$$

$$b_n = \frac{m \cdot \Psi_n(x) \cdot \Psi_n'(m \cdot x) - \Psi_n(m \cdot x) \cdot \Psi_n'(x)}{m \cdot \xi_n(x) \cdot \xi_n'(m \cdot x) - \xi_n(m \cdot x) \cdot \xi_n'(x)} \quad \text{Équation 5-20}$$

Avec ψ défini à partir de la fonction de Bessel de premier ordre $J_{n+1/2}$:

$$\Psi_n(x) = \sqrt{\frac{\pi \cdot x}{2}} J_{n+1/2}(x) \quad \text{Équation 5-21}$$

Et ξ défini à partir d'une fonction de Hankel du second ordre $H_{n+1/2}$:

$$\xi_n(x) = \sqrt{\frac{\pi \cdot x}{2}} \cdot H_{n+1/2}(x) = \Psi_n(x) + i \cdot X_n(x) \quad \text{Équation 5-22}$$

Où X_n est défini à partir d'une fonction de Bessel de second ordre $Y_{n+1/2}$:

$$X_n(x) = -\sqrt{\frac{\pi \cdot x}{2}} \cdot Y_{n+1/2}(x) \quad \text{Équation 5-23}$$

A partir de ces relations on trouve les coefficients d'extinction, de diffusion, d'absorption et de diffusion vertical-vertical. Ils sont donnés par :

$$C_e = \frac{\lambda^2}{2\pi} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \operatorname{Re}(a_n + b_n) \quad \text{Équation 5-24}$$

$$C_d = \frac{\lambda^2}{2\pi} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2) \quad \text{Équation 5-25}$$

$$C_a = C_e - C_d \quad \text{Équation 5-26}$$

$$C_{vv} = \frac{\lambda^2}{4\pi^2} S_1^2 \quad \text{Équation 5-27}$$

La principale difficulté réside dans le calcul des coefficients de diffusion a_n et b_n ainsi que dans le calcul des éléments S_1 et S_2 de la matrice de diffusion. Dans le cas où le paramètre de taille est tel que $x \ll 1$, on obtient l'approximation de Rayleigh. Elle correspond donc aux cas où la longueur d'onde est grande devant le diamètre de la particule sphérique. Le formalisme de cette approche est assez simple. Les sections efficaces d'absorption (a), de diffusion (d), d'extinction (e) et de diffusion verticale-verticale (vv) deviennent :

$$C_a = \frac{\pi^2 D_p^3 E(m)}{\lambda} \quad \text{Équation 5-28}$$

$$C_d = \frac{2\pi^5 D_p^6 F(m)}{3\lambda^4} \quad \text{Équation 5-29}$$

$$C_{vv} = \frac{\pi^4 D_p^6 F(m)}{4\lambda^4} \quad \text{Équation 5-30}$$

Et toujours :

$$C_e = C_a + C_d \quad \text{Équation 5-31}$$

$E(m)$ et $F(m)$ sont deux fonctions de l'indice complexe m de la matière :

$$E(m) = -\operatorname{Im} \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right) \quad F(m) = \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2 \quad \text{Équation 5-32}$$

On trouvera en annexe les fonctions $E(m)$ et $F(m)$ tracées en fonction des parties réelles et imaginaires de l'indice de réfraction.

Une première approximation pour l'estimation de la diffusion de la lumière par des agrégats est de les remplacer dans le calcul par une sphère équivalente. Sous cette hypothèse on peut utiliser la théorie de Mie mais il apparaît évident que la compacité d'un agrégat et d'une sphère ne sont pas les mêmes et les résultats obtenus par la théorie de Mie sont donc loin d'être satisfaisants. Par contre la théorie de Mie peut être appliquée aux particules primaires des agrégats. Étant donné leurs diamètres (quelques dizaines de nm) et pour la gamme de longueurs d'ondes utilisées (visible et proche I.R.), le paramètre de taille x de ces particules est inférieur à 1 et donc l'approximation de Rayleigh est assez bonne.

Pour le calcul de la section efficace des agrégats on peut considérer que la contribution des particules primaires est identique (diamètre de sphérules quasiment identique). On peut alors se demander s'il suffit de multiplier la section efficace d'une particule primaire par le nombre de particules primaires dans l'agrégat. Sous cette hypothèse de calcul on aurait :

$$C_d^a = N_p \cdot C_d^p \quad \text{Équation 5-33}$$

$$C_d^g = N_p \cdot C_d^p \quad \text{Équation 5-34}$$

$$C_{\text{ext}}^a = N_p \cdot C_{\text{ext}}^p \quad \text{Équation 5-35}$$

Les exposants (a) et (p) servent à identifier les agrégats et les particules primaires. La section efficace d'extinction est encore une fois déterminée en sommant la section efficace d'absorption et de diffusion. Cette approche très simple n'intègre cependant pas la morphologie complexe des particules de suie. Elle est assez bien justifiée pour l'absorption et l'extinction mais elle est fautive pour la diffusion.

5.2.2.2 La théorie de Rayleigh-Debye-Gans (RDG)

La théorie de Rayleigh-Debye-Gans est une extension de l'approximation de Rayleigh à des particules de formes non sphériques (Bohren et Huffman, 1983). Ce n'est donc pas une théorie en ce sens qu'elle ne correspond pas à une résolution des équations de Maxwell. Deux critères doivent être vérifiés si l'on souhaite avoir des résultats précis avec cette approximation :

$$|m-1| \ll 1 \quad \text{et} \quad 2 \cdot x \cdot |m-1| \ll 1 \quad \text{Équation 5-36}$$

Pour les agrégats de suie, elle se fonde sur les hypothèses suivantes :

- Les particules primaires possèdent toutes le même diamètre et sont en contact avec une seule particule primaire
- Les particules primaires n'interagissent pas entre elles et les différences de phase sont négligeables dans l'agrégat

Une analyse des limites de la RDG, en fonction de la dimension fractale, du nombre de particules primaires et du paramètre de taille, a été faite par Berry et Percival (1986). Il a été trouvé que les caractéristiques de l'agrégat devaient vérifier :

$$D_f < 2 \quad \text{et} \quad N_p \ll x^{-D_f} \quad \text{Équation 5-37}$$

Ces conditions sont généralement difficiles à vérifier puisque l'on rencontre couramment des agrégats de plusieurs centaines de particules primaires et avec une dimension fractale de 1,8. En considérant un diamètre de particules primaires de 50 nm et une longueur d'onde de 632 nm, le nombre de particules primaires attendus doit être inférieur à 100 ce qui, dans la réalité, est couramment dépassé. Köylü et Faeth (1993) ont montré que, sous l'approximation RDG, les sections efficaces deviennent :

$$C_d^a = N_p \cdot C_d^p \quad \text{Équation 5-38}$$

$$C_d^a = N_p^2 \cdot C_d^p \quad \text{Équation 5-39}$$

$$C_w^a = N_p^2 \cdot C_w^p \quad \text{Équation 5-40}$$

5.2.2.3 La RDG-FA (Rayleigh-Debye-Gans-for-Fractal-Agregates)

La RDG est apparue plus adéquate que la théorie de Rayleigh au cas des agrégats cependant elle ne semble pas bien rendre compte des phénomènes de multi-diffusion que l'on peut observer à l'aide de théories plus précises. Cette multi-diffusion se caractérise par la convergence du rapport C_d/C_a vers une limite asymptotique (Köylü *et al.*, 1993). Les relations nous permettent de déterminer ce rapport pour la RDG et il apparaît que ce rapport est proportionnel à N_p alors que dans la réalité il tend vers une limite du fait de la multi-diffusion. C'est ce comportement que Köylü a souhaité compenser à l'aide de facteurs correcteurs introduisant ainsi la RDG-FA (Rayleigh-Debye-Gans theory for Fractal Agregate). Les sections efficaces correspondantes sont alors telles que :

$$C_d^a = N_p \cdot C_d^p \quad \text{Équation 5-41}$$

$$C_d^a = N_p^2 \cdot C_d^p \cdot g(k \cdot D_f) \quad \text{Équation 5-42}$$

$$C_w^a = N_p^2 \cdot C_w^p \cdot f(w) \quad \text{Équation 5-43}$$

Définition du facteur de forme f

Pour définir le facteur de forme f il convient d'introduire un paramètre de taille w dépendant du rayon de giration et du module du vecteur q de diffusion :

$$w = q^2 R_g^2 \quad \text{Équation 5-44}$$

$$q = 2k \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad \text{Équation 5-45}$$

On peut alors introduire deux régimes de diffusion qui permettent de définir deux expressions du facteur de forme (Dobbins et Megaridis, 1991). Pour le premier régime, le régime de Guinier définit pour $w < 1,5 D_f$, le facteur de forme est tel que :

$$f_G(w) = \exp\left(-\frac{w}{3}\right) \quad \text{Équation 5-46}$$

Pour le régime de puissance défini pour $w > 1,5 D_f$ on a :

$$f_P(w) = \left(\frac{3 \cdot D_f}{2 \cdot w \cdot \exp(1)}\right)^{D_f/2} \quad \text{Équation 5-47}$$

Le passage d'un régime à l'autre s'effectuant sans discontinuité à la valeur $w = 1,5 D_f$ par :

$$f(1,5 D_f) = \exp\left(-\frac{D_f}{2}\right) \quad \text{Équation 5-48}$$

De plus à faible w (faible θ) on a :

$$f(w) \approx 1 - \frac{w}{3}$$

Équation 5-49

Définition du facteur g

Le coefficient correcteur g présent dans l'expression de la section efficace de diffusion a été défini par Dobbins et Megaridis (1991).

$$g(w) = \left(1 + \frac{4}{3D_f} w\right)^{-D_f/2}$$

Équation 5-50

Des limites de validité ont été proposées pour la RDG-FA. Celles-ci ont été établies par Farias *et al.* (1996) et selon eux la RDG-FA donne des résultats satisfaisants pour $|m-1| < 1$ et $2.x|m-1| < 0,6$. D'autre part selon Van-Hulle (2002), les sections efficaces d'extinction et de diffusion verticale-verticale déterminées à l'aide de la RDG-FA sont en accord avec les résultats obtenus à partir d'une approche dipolaire (Draine et Flatau, 1994).

5.3 L'INDICE OPTIQUE DES PARTICULES DE SUIE

Nous allons détailler ici un paramètre important des particules de suie : l'indice complexe de réfraction $m=n-ik$. Comme cela a été vu précédemment, les propriétés d'absorption et de diffusion de la lumière dépendent de ce paramètre. Ainsi la partie réelle n de l'indice, est défini comme étant le rapport entre la vitesse de la lumière dans le vide et la vitesse de la lumière dans le milieu considéré. Cet indice absolu caractérise donc la vitesse de phase du milieu. On peut se rappeler que le phénomène de réfraction optique au passage d'un dioptré est due à une valeur n inférieure à un, comme le montre la loi de Snell-Descartes. La partie imaginaire k correspond à l'absorption de la lumière dans un milieu. Il convient de préciser que l'indice varie selon la longueur d'onde considérée. Nous présentons sur la [Figure 5-2](#) les variations des parties réelle et imaginaire de l'indice complexe de particules de suie, en fonction de la longueur d'onde et obtenues au cours de plusieurs études.

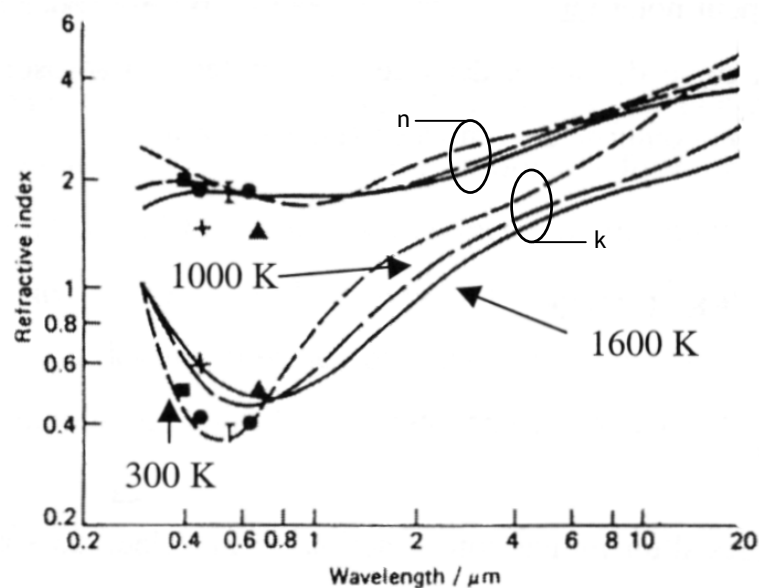


Figure 5-2 : Evolution de l'indice en fonction de la longueur d'onde (Mullins *et al.*, 1987). Courbes du haut pour la partie réelle n , celles du bas pour la partie imaginaire k

La plupart des études connues sur l'indice des suies ont été réalisées à quelques longueurs d'onde particulières, et plus particulièrement dans le visible. C'est ce que résume le Tableau 5-1. A travers ce tableau on peut souligner la dispersion des résultats qui sont aussi représentés en fonction de la longueur d'onde sur la Figure 5-3. Cette dispersion s'explique essentiellement à la fois par les divers combustibles employés mais aussi par la diversité des méthodes et approches à la fois expérimentales et numériques utilisées.

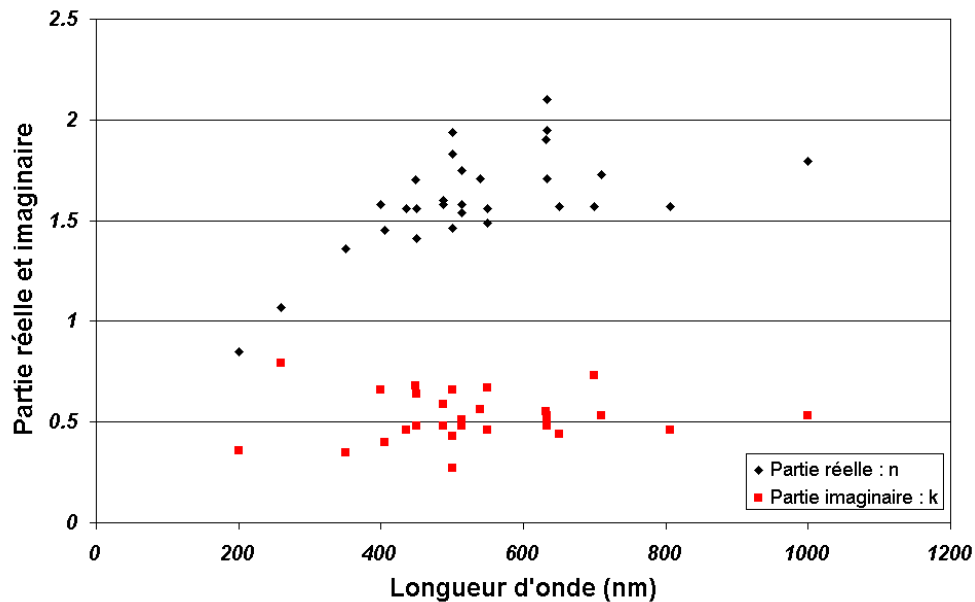


Figure 5-3 : Dispersion des valeurs d'indice issues de la littérature

Tableau 5-1 : Indices de réfraction établis au cours de différentes études

DLS : Dynamic Light Scattering, MFT : Model and Flame Transmission, MVLR : Model and Value Literature Review, LR : Literature Review, E-S : Extinction - Scattering, E-A : Extinction - Absorption, R : Refractometry

Longueur d'onde (nm)	n	k	Combustible	Auteurs, date	Methode
488	1.60	0.59	Premixed methane/oxygen flame	Charalampopoulos & Felske (1987)	DLS
200	0.85	0.36	Premixed propane/oxygen flame	Chang & Charalampopoulos (1990)	DLS
260	1.07	0.79	Premixed propane/oxygen flame	Chang & Charalampopoulos (1990)	DLS
400	1.58	0.66	Premixed propane/oxygen flame	Chang & Charalampopoulos (1990)	DLS
540	1.71	0.56	Premixed propane/oxygen flame	Chang & Charalampopoulos (1990)	DLS
710	1.73	0.53	Premixed propane/oxygen flame	Chang & Charalampopoulos (1990)	DLS
1000	1.80	0.53	Premixed propane/oxygen flame	Chang & Charalampopoulos (1990)	DLS
632	1.90	0.56		Lee & Tien (1981)	MFT
514	1.75	0.50	Acetylene-air flame	Roessler & Faxvog (1980)	MVLR
500	1.94	0.66	butane-air flame	Colbeck et al. (1989)	LR
448	1.70	0.68	butane-air flame	Colbeck et al. (1989)	LR
514	1.54	0.48	Acetylene air-flame	Koylu & Faeth (1996)	E-S
351	1.36	0.35	Acetylene-propylene-ethylene-propane	Wu & al. (1997)	E-S
405	1.45	0.40	Acetylene-propylene-ethylene-propane	Wu & al. (1997)	E-S
488	1.58	0.48	Acetylene-propylene-ethylene-propane	Wu & al. (1997)	E-S
514	1.58	0.51	Acetylene-propylene-ethylene-propane	Wu & al. (1997)	E-S
633	1.71	0.53	Acetylene-propylene-ethylene-propane	Wu & al. (1997)	E-S
450	1.41	0.64	Diesel soot	Schnaiter et al. (2003)	E-A
550	1.49	0.67	Diesel soot	Schnaiter et al. (2003)	E-A
700	1.57	0.73	Diesel soot	Schnaiter et al. (2003)	E-A
500	1.46	0.27	methane-propane	Habib & Vervisch (1988)	Extinction
500	1.83	0.43	ethylene	Habib & Vervisch (1988)	Extinction
436	1.56	0.46	acetylene diffusion flame	Dalzell & Sarofim (1969)	R
450	1.56	0.48	acetylene diffusion flame	Dalzell & Sarofim (1969)	R
550	1.56	0.46	acetylene diffusion flame	Dalzell & Sarofim (1969)	R
650	1.57	0.44	acetylene diffusion flame	Dalzell & Sarofim (1969)	R
806	1.57	0.46	acetylene diffusion flame	Dalzell & Sarofim (1969)	R
633	1.95	0.51	methane-oxygen	Van-Hulle & al. (2002)	E-S
633	2.10	0.48	methane-air	Van-Hulle & al. (2002)	E-S

5.4 PRINCIPE DE DETERMINATION DE L'INDICE OPTIQUE

La détermination de l'indice optique m repose sur une méthode d'inversion qui recherche la meilleure valeur de m permettant de retrouver par calcul les valeurs expérimentales de K_{ext} et K_{vv} . Nous présentons dans cette partie le banc optique utilisé pour mesurer les coefficients d'extinction et de diffusion puis la méthode d'étalonnage de ce banc et enfin la méthode d'inversion et de calcul de l'indice optique.

5.4.1 MESURES DES COEFFICIENTS D'EXTINCTION K_{EXT} ET DE DIFFUSION K_{VV}

5.4.1.1 Le dispositif expérimental

Le dispositif expérimental, dénommé EXSCA pour EXtinction - SCAttering, repose sur la mesure en parallèle du coefficient d'extinction et de diffusion verticale-verticale des agrégats de suie. Ce dispositif, initialement développé afin d'estimer les fractions volumiques de suie en sortie de réacteur par Gouriou (1999), a été modifié par Van-Hulle (2002) afin de permettre la détermination de l'indice optique des agrégats de suie dans des flammes de diffusion d'hydrocarbures. Les mesures ont alors été effectuées principalement dans le visible (633 et 442 nm) et elles ont montré la validité du dispositif et de la méthode d'inversion employée. Par rapport à ces travaux, des modifications importantes ont été apportées au banc EXSCA pour améliorer sa sensibilité et sa précision, en particulier pour permettre la réalisation de mesures dans le proche infrarouge (1064 nm). Un schéma de principe de ce banc est présenté sur la [Figure 5-4](#) ainsi qu'une photographie sur la [Figure 5-5](#). Le banc EXSCA est composé de deux cellules, une d'extinction et une de diffusion. La cellule d'extinction est une cavité optique multi-passages permettant, à l'aide de deux miroirs hémisphériques, d'obtenir des trajets optiques de 1 à 20 mètres avec une cavité de seulement 1 mètre de long. Cette cavité s'est révélée indispensable pour effectuer des mesures dans le proche infrarouge. En effet, les sections efficaces d'absorption et de diffusion composant la section efficace d'extinction sont inversement proportionnelles à la longueur d'onde, le signal d'extinction est donc plus faible dans l'infrarouge que dans le visible. Cette diminution a été compensée en augmentant le trajet optique, le nombre d'aller et retour étant ajustable en modifiant la longueur de la cellule ainsi que l'orientation des miroirs. Pour le proche infrarouge (1064 nm), le laser utilisé est une diode-laser fibrée KEOPSYS émettant 1 W en pleine puissance. En sortie de diode le signal est divisé en trois parties à l'aide d'un coupleur. On injecte ainsi environ 100 mW dans la cellule d'extinction, environ 900 mW dans la cellule de diffusion et une faible part est envoyée sur une diode fournissant un signal de référence pour suivre les variations d'intensité du laser. Le signal éteint est mesuré en sortie de cellule à l'aide d'une fibre optique reliée à une photodiode. La cellule de diffusion est composée d'un volume beaucoup plus faible (environ 1 litre), le faisceau laser est injecté à une extrémité de la cellule et il est stoppé à l'autre extrémité de la cellule à l'aide d'un piège à lumière. Ce piège à lumière s'est révélé indispensable afin d'éviter une trop grande réflexion parasite dans la cellule. Le signal diffusé est recueilli à 90° du rayon laser à l'aide d'un faisceau de 6 fibres optiques. Le signal des fibres est recueilli à l'aide d'un dispositif optique focalisé sur une photodiode (Hamamatsu APD C4777-01SPL 3197). En entrée de la cellule de diffusion le faisceau laser est polarisé verticalement à l'aide d'un polariseur et un analyseur lui aussi polarisé verticalement est placé devant le faisceau de fibres. Le remplissage en gaz et en particules est assuré par un jeu d'électrovannes piloté à partir d'un logiciel d'acquisition développé sous environnement Labview.

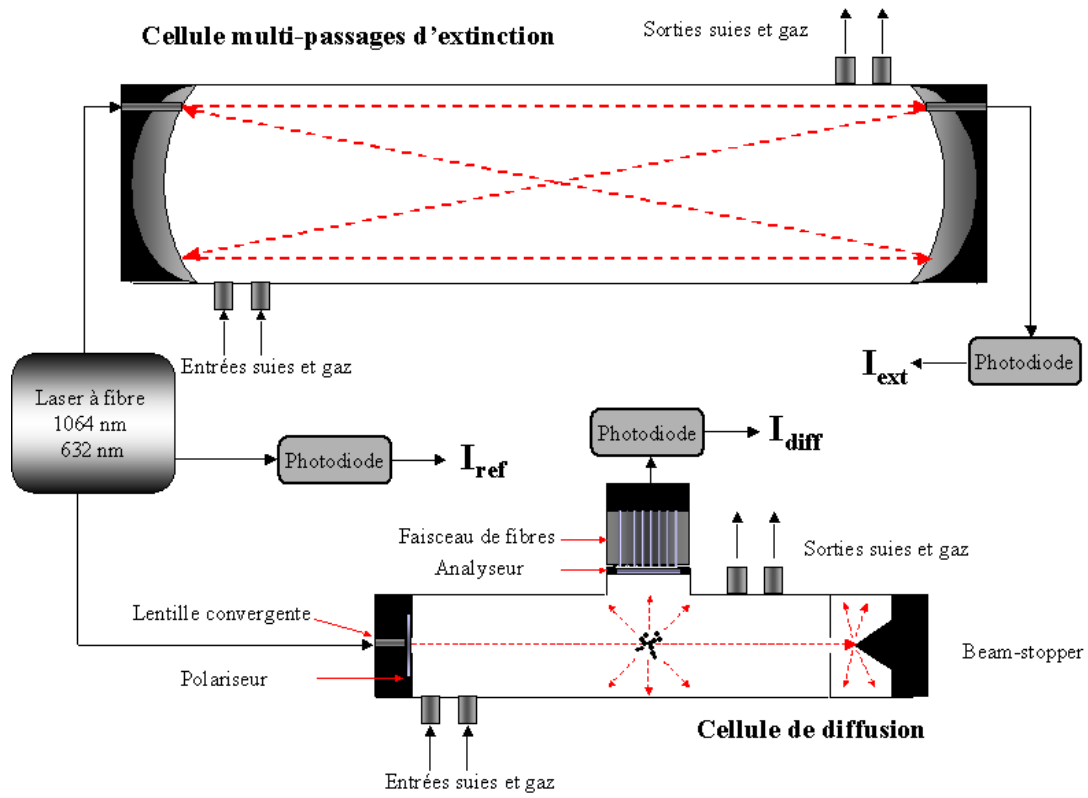


Figure 5-4 : Schéma descriptif du dispositif EXSCA

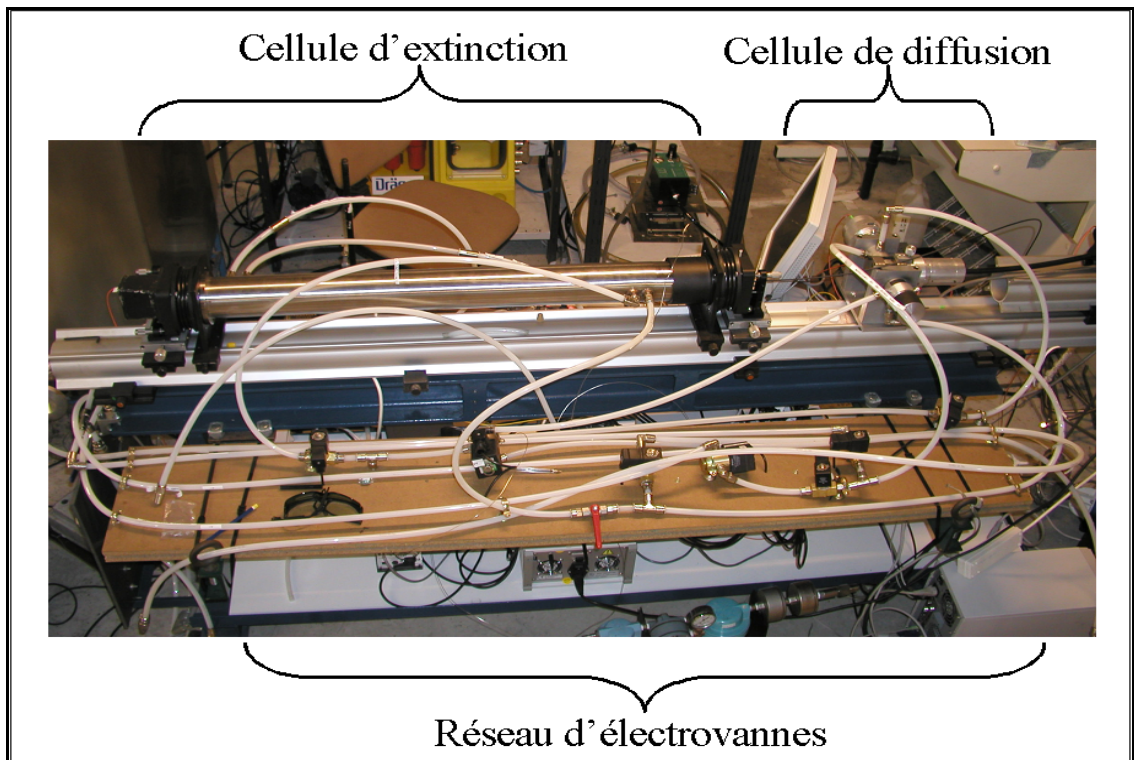


Figure 5-5 : Banc EXSCA avec son système d'alimentation et de purge

5.4.1.2 Protocole de mesure des coefficients d'extinction et de diffusion

La première phase, ϕ_1 correspond au remplissage de la cellule (extinction ou diffusion) par les fumées. Cette phase de remplissage dure généralement 5 minutes afin de permettre que deux mesures de distribution des diamètres de mobilité en sortie de cellule soient faites par le SMPS. Suite à cette phase de remplissage on opère une phase de stabilisation ϕ_2 des fumées dans la cellule. Cette phase dure généralement 60 secondes et précède la phase de mesure ϕ_3 au cours de laquelle l'on acquiert les signaux. Les mesures des signaux d'extinction et de diffusion s'effectuent respectivement sur 90 et 60 secondes. On opère ensuite une phase de remplissage ϕ_4 , de stabilisation ϕ_5 et de mesure ϕ_6 avec l'air de référence. Une mesure totale du coefficient d'extinction et de diffusion dure donc environ 30 minutes. Les différentes phases sont représentées sur le Tableau 5-2 et la Figure 5-6 présente un exemple de signaux d'extinction et de diffusion mesurés dans des fumées et pour l'air de référence.

Tableau 5-2 : Différentes phases de la mesure des coefficients d'extinction et de diffusion

Nom phase	Φ_1 remplissage	Φ_2 stabilisation	Φ_3 mesure	Φ_4 remplissage	Φ_5 stabilisation	Φ_6 mesure
Durée (s)	300	60	90	300	60	60
Prélèvement	Fumées	Fumées	Fumées	Air	Air	Air

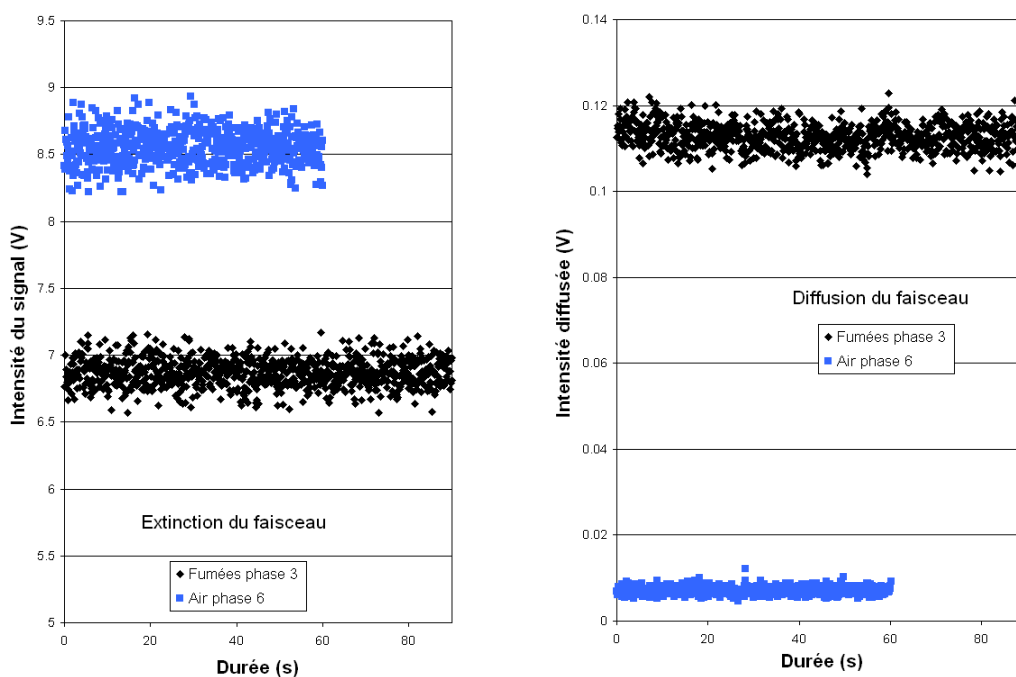


Figure 5-6 : Exemples de signaux d'extinction et de diffusion obtenus avec le banc EXSCA

5.4.1.3 Détermination du coefficient d'extinction

D'après la loi de Beer-Lambert, l'intensité éteinte après un trajet optique de longueur L est :

$$I_{ext} = I_{inc} \cdot \exp(-K_{ext} \cdot L) \quad \text{Équation 5-51}$$

avec :

I_{ext} : intensité du signal éteint (V)

I_{inc} : intensité du signal incident (V)

K_{ext} : coefficient d'extinction (m^{-1})

L_{opt} : longueur du trajet optique (m)

On peut donc facilement définir le coefficient d'extinction à partir de cette loi, il vient ainsi :

$$K_{ext} = -\frac{1}{L_{opt}} \cdot \ln\left(\frac{I_{ext}}{I_{inc}}\right) \quad \text{Équation 5-52}$$

Dans notre configuration les intensités I_{ext} et I_{inc} correspondent respectivement aux intensités lumineuses mesurées lorsque le faisceau traverse la cellule remplie de particules de suie et lorsque cette cellule est remplie par l'air de référence. La longueur optique L_{opt} quant à elle est déterminée à partir de la mesure de la longueur de notre cellule multi-passages et du nombre de trajet observé dans la cellule. Les signaux d'extinction et de diffusion sont normalisés par le signal de référence, détecté en amont de la cellule d'extinction afin de compenser les variations d'émission de la diode-laser. Le coefficient d'extinction se définit donc de la manière suivante :

$$K_e^f = -\frac{1}{L_{opt}} \cdot \ln\left(\frac{\left(\frac{I_e^f}{I_{ref}^f}\right)}{\left(\frac{I_e^{air}}{I_{ref}^{air}}\right)}\right) \quad \text{Équation 5-53}$$

Avec :

I_e^f : intensité lumineuse du signal éteint par les fumées (V)

I_{ref}^f : intensité lumineuse du signal de référence pendant la mesure des fumées (V)

I_e^{air} : intensité lumineuse du signal de l'air de référence (V)

I_{ref}^{air} : intensité lumineuse du signal de référence pendant la mesure de l'air (V)

Afin de simplifier les formulations des différents coefficients, les intensités divisées par l'intensité du signal de référence sont représentées entre crochets :

$$K_e^f = -\frac{1}{L} \cdot \ln\left(\frac{\langle I_e^f \rangle}{\langle I_e^{air} \rangle}\right) \quad \text{Équation 5-54}$$

Avec :

$\langle I_e^f \rangle$: valeur moyenne normalisée de l'intensité lumineuse du signal éteint par les fumées

$\langle I_e^{air} \rangle$: valeur moyenne normalisée de l'intensité lumineuse du signal éteint par l'air

5.4.1.4 Détermination du coefficient de diffusion vertical-vertical

Le signal de diffusion qui est recueilli est proportionnel au coefficient K_{vv} des particules de suie. Pour connaître cette proportionnalité, on réalise une mesure supplémentaire sur un corps particulier, dont la valeur de K_{vv} est bien connue. Dans la détermination de K_{vv} des suies et de ce corps étalon, il intervient des termes correctifs qui prennent en considération le bruit des photomultiplicateurs ainsi que les diffusions parasites inévitables dans la cellule de diffusion. Pour cela nous effectuons systématiquement une mesure du bruit des capteurs avant chaque série de mesures ainsi qu'une mesure du bruit de la cellule (réflexions parasites du rayon laser incident) avec un gaz très peu diffuseur. Initialement nous utilisons de l'hélium, cependant en filtrant l'air on peut considérer les signaux de diffusion de l'air et de l'hélium très proches. Nous avons finalement porté notre choix sur l'air pour la mesure du bruit de fond de la cellule :

$$K_{VV}^f = \frac{\langle I_d^f \rangle - \langle I_d^{Air} \rangle}{\langle I_d^{etal} \rangle - \langle I_d^{Air} \rangle} K_{VV}^{etal} e^{(K_{ext}^f - K_{ext}^{etal})(R+x_1)} \quad \text{Équation 5-55}$$

Avec :

- K_{vv}^f : coefficient de diffusion vertical-vertical des fumées (m^{-1})
- K_{VV}^{etal} : coefficient de diffusion vertical-vertical du corps étalon (m^{-1})
- K_{ext}^f : coefficient d'extinction des fumées (m^{-1})
- K_{ext}^{etal} : coefficient d'extinction du corps étalon (m^{-1})
- R : trajet du faisceau incident entre la source laser et le volume de diffusion
- x_1 : trajet du faisceau diffusé entre le volume de diffusion et le volume de détection
- $\langle I_d^f \rangle$: valeur la plus probable de l'intensité normalisée du signal de diffusion des fumées
- $\langle I_d^{etal} \rangle$: valeur la plus probable de l'intensité normalisée du signal de diffusion du corps étalon
- $\langle I_d^{Air} \rangle$: valeur la plus probable de l'intensité normalisée du signal de diffusion de l'air

Pour les mesures dans le visible, le propane peut être utilisé comme corps étalon mais les premiers essais dans l'infrarouge ont rapidement souligné la faiblesse du signal diffusé et généralement proche de celui du bruit de fond de la cellule. Nous avons suite à ces essais décider d'utiliser des billes de latex comme corps étalon.

5.5 ETALONNAGE DU BANC EXSCA SUR DES BILLES DE LATEX

5.5.1 PROTOCOLE D'ETALONNAGE

L'étalonnage du banc EXSCA avec des billes de latex est indispensable pour la cellule de diffusion mais l'utilisation de ces billes dans la cellule d'extinction permet aussi une vérification supplémentaire de la précision des mesures de K_{ext} . C'est pourquoi, il est question ici à la fois de l'étalonnage de la cellule de diffusion mais aussi de celle d'extinction. Nous avons généré un aérosol de billes de latex (DUKE SCIENTIFIC) de 200 nm dans des concentrations de l'ordre de 10^5 particules/cm³ et ce à l'aide d'un atomiseur (TSI). Le schéma descriptif du protocole d'étalonnage de la cellule d'extinction et diffusion est présenté sur la [Figure 5-7](#). Les conditions opératoires sont détaillées dans le [Tableau 5-3](#).

Tableau 5-3 : Conditions opératoires de l'étude de validation

Pression air atomiseur	Diamètre billes (CV)	Nb gouttes latex / 10 ml d'eau	Concentration aérosol (#/cm ³)	Débit SMPS (Sheath/Sample)
30 PSI	200 nm (1,3 %)	8 – 20	1.10 ⁵ – 1.10 ⁶	2,0 / 0,2

Le protocole d'étalonnage est composé de deux phases. On remplit en premier lieu la cellule d'extinction avec les billes de latex, on mesure alors le coefficient d'extinction de l'aérosol de billes de latex. On remplit ensuite la cellule de diffusion avec ces mêmes billes de latex, la distribution granulométrique de cet aérosol est déterminée à l'aide d'un SMPS en sortie de la cellule et le signal de diffusion est alors mesuré. On calcule ensuite, à l'aide d'un programme basé sur la théorie de Mie et à l'aide de la distribution granulométrique SMPS, les coefficients d'extinction et de diffusion des billes de latex.

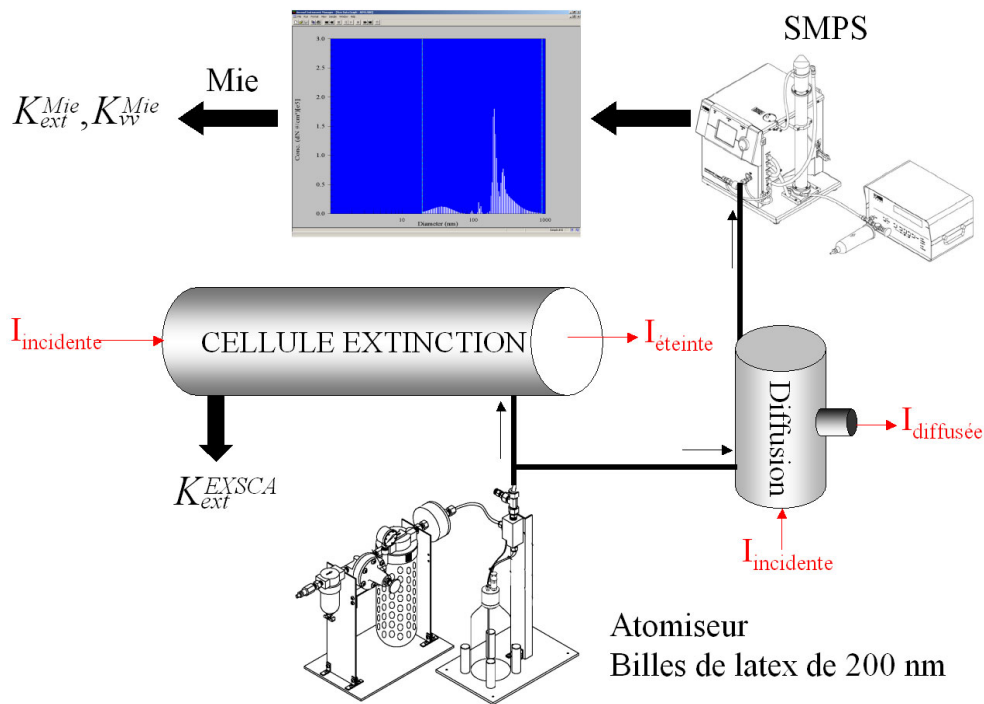


Figure 5-7 : Schéma de principe du protocole d'étalonnage du banc EXSCA avec des billes de latex

5.5.2 RESULTATS DE L'ETUDE DE VALIDATION

On peut donc déterminer le coefficient d'extinction expérimental $K_{ext}^{bille\ mes}$ des billes de latex. En parallèle on utilise la distribution des diamètres de mobilité (SMPS) de l'aérosol afin de calculer avec la théorie de MIE ce même coefficient d'extinction $K_{ext}^{bille\ MIE}$. La valeur de l'indice optique des billes est celle donnée par Ma *et al.* (2003). Les résultats de cette étude comparative sont présentés sur la [Figure 5-8](#), on a de plus représenté les coefficients calculés à l'aide de la théorie de Rayleigh.

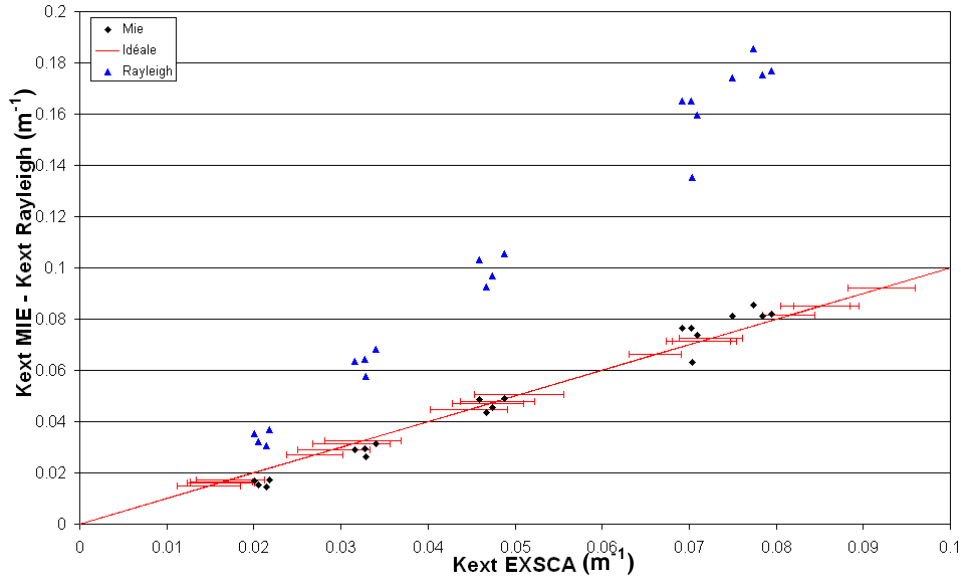


Figure 5-8 : Etude comparative entre les coefficients d'extinction numériques et expérimentaux pour les billes de latex

Les coefficients d'extinction calculés à l'aide de la théorie de Mie apparaissent particulièrement cohérents avec les coefficients établis expérimentalement. A l'inverse les coefficients issus de la théorie de Rayleigh sont systématiquement supérieurs aux coefficients expérimentaux, cette divergence entre ces deux résultats souligne la limite de validité de Rayleigh pour des billes de latex de 200 nm. Pour une longueur d'onde de 1064 nm on atteint un paramètre de taille de 0,38, valeur proche de la limite de Rayleigh ($X_p \ll 1$). Afin de déterminer une incertitude sur le coefficient de diffusion, on compare la valeur expérimentale et la valeur calculée à l'aide de la théorie de Mie. On obtient une incertitude de l'ordre de 10 %.

5.6 INVERSION DES DONNEES

5.6.1 PRINCIPE DE LA METHODE D'INVERSION

Le dispositif EXSCA permet de déterminer les coefficients expérimentaux d'extinction et de diffusion des particules de suie. Ces valeurs servent à déterminer l'indice optique des particules de suie. Ce paragraphe introduit la méthode d'inversion des données expérimentales.

La [Figure 5-9](#) détaille le principe de cette méthode d'inversion, on mesure d'une part les coefficients d'extinction et de diffusion à l'aide du dispositif EXSCA. On détermine en parallèle les propriétés morphologiques D_f , k_f et D_{pp} des agrégats à l'aide de l'analyse des clichés de microscopie électronique. La distribution de diamètres de mobilité de ces agrégats est connue grâce à un granulomètre SMPS. Toutes ces informations constituent les données d'entrée de la méthode d'inversion et on détermine alors à l'aide de la RDG-FA les coefficients d'extinction et de diffusion théoriques qui sont alors comparés aux coefficients expérimentaux. On effectue des itérations en modifiant l'indice de réfraction afin de faire converger les résultats numériques vers les résultats expérimentaux.

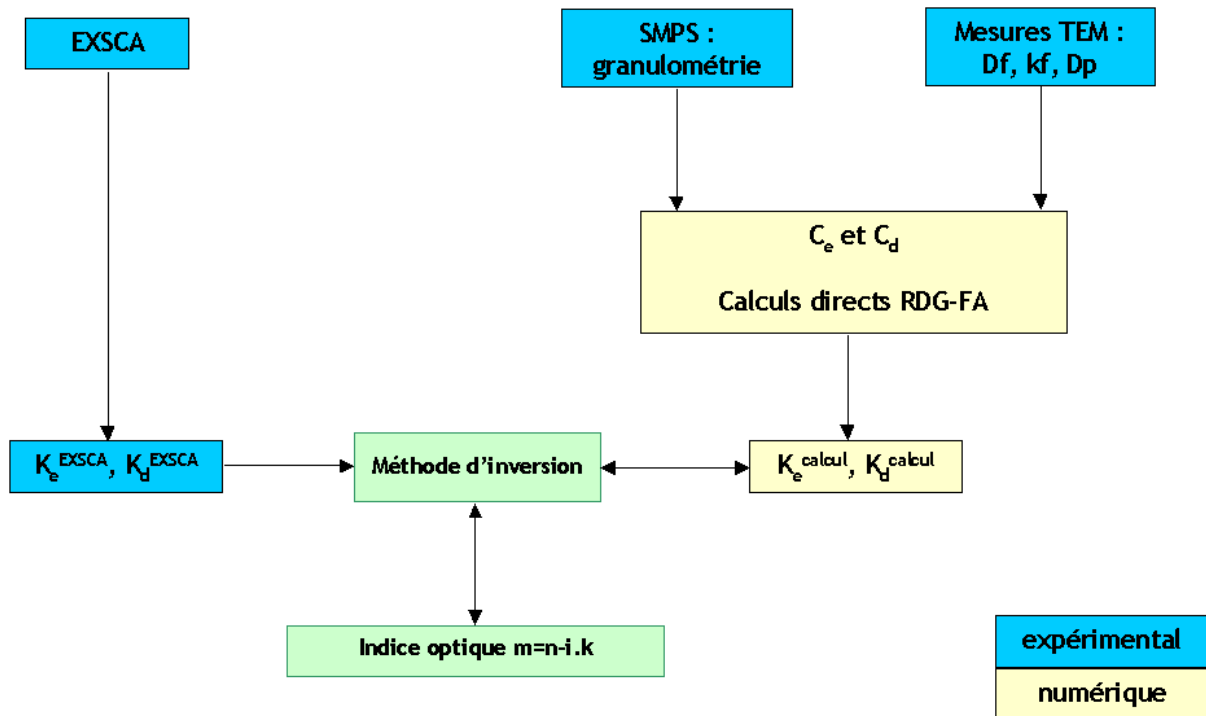


Figure 5-9 : Principe de détermination de l'indice optique à l'aide de la méthode d'inversion

On rappelle que la RDG-FA, fondée sur la théorie de Rayleigh-Debye-Gans, repose sur la détermination des sections efficaces des particules primaires, sections efficaces qui sont ensuite étendues aux agrégats de suie en tenant compte de leurs caractéristiques morphologiques. Le principe de calcul des coefficients théoriques d'extinction et de diffusion est présenté sur la [Figure 5-10](#).

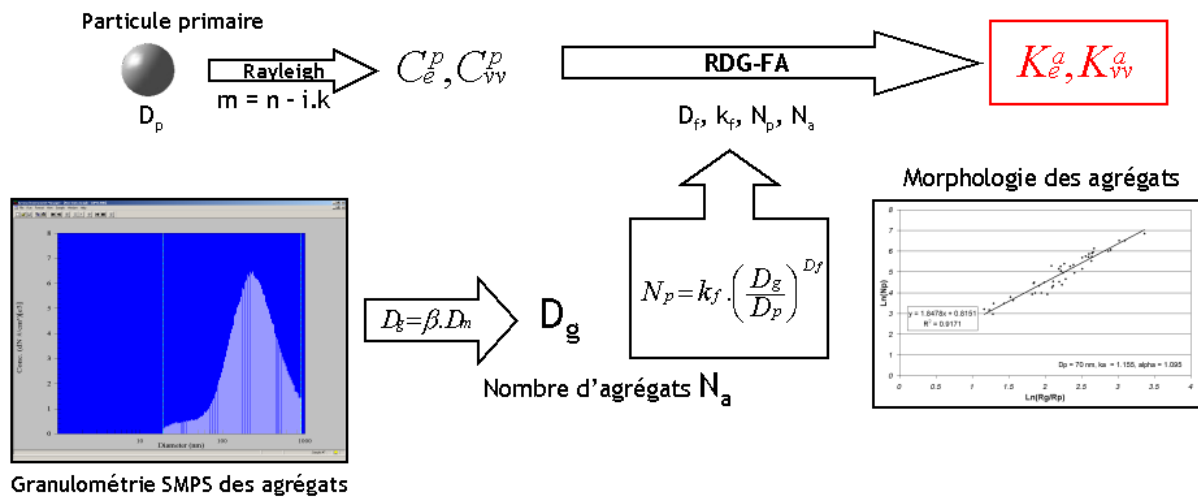


Figure 5-10 : Principe du calcul des coefficients d'extinction et de diffusion des suies

On retrouve dans ce schéma les données morphologiques indispensables au calcul. En particulier, le SMPS fournit la distribution des diamètres de mobilité D_m . Or l'information qui est nécessaire pour les calculs de K_{ext} et K_{vv} porte sur le diamètre de giration D_g et sa distribution. Le paramètre β qui représente le rapport de ces deux diamètres doit être connu. Il faut rappeler qu'une analyse des clichés obtenus par MET n'est pas envisageable pour chaque essai, cela représenterait une quantité de données à analyser trop importante. Car

pour pouvoir reconstituer une distribution de diamètre de giration, il faudrait effectuer l'analyse sur plusieurs centaines d'agrégats. Donc, la distribution des diamètres de giration est calculée à partir des informations fournies par le SMPS. Comme cela a été détaillé dans le paragraphe 3.2.4, Rogak et Flagan (1990) ont été les premiers à introduire la relation liant le diamètre de mobilité électrique D_m au diamètre de giration D_g . Ils montrent que pour des agrégats de plus de 10 particules primaires, il existe une relation de proportionnalité entre ces deux diamètres :

$$D_g = \beta \cdot D_m \quad \text{avec } 1,3 < \beta < 1,5 \text{ pour des } D_f \text{ comprises entre } 1,7 \text{ et } 2. \quad \text{Équation 5-56}$$

Ce paramètre β est donc une grandeur sensible dans le processus d'inversion des données. C'est pourquoi sa valeur a été déterminée pour les agrégats de suie rencontrés dans cette étude.

5.6.2 RELATION ENTRE DIAMETRE DE MOBILITE ET DIAMETRE DE GIRATION : DETERMINATION EXPERIMENTALE DU RAPPORT β

Dans le paragraphe 3.2.4 une méthode a été présentée et utilisée pour déterminer le rapport β . Elle est inspirée des travaux de Van-Gulijk *et al.* (2004) et elle passe par la notion de densité effective ρ_e des agrégats. Elle a permis de retrouver des valeurs de dimension fractale cohérentes avec celles obtenues en analysant les clichés MET. Par contre il a été remarqué dans le paragraphe 3.2.4 que le rapport β obtenu ($\beta < 1$) par cette méthode n'est pas en accord avec les valeurs des travaux de Rogak et Flagan (1990) ($\beta > 1$). Il a été indiqué que cela peut être expliqué en partie par l'incertitude qui existe sur la valeur expérimentale du préfacteur k_f . C'est pourquoi, il a été décidé de développer une autre approche pour déterminer ce rapport β .

Elle se compose de deux phases distinctes. La première phase consiste en un "lissage" de la granulométrie SMPS par une fonction de distribution log-normale. Dans un deuxième temps, cette distribution sert à calculer une concentration massique en suie C_{calcul} en considérant la morphologie fractale des agrégats et plus particulièrement le rapport existant entre le diamètre de mobilité et le nombre de particules primaires d'un agrégat. Ce calcul fait partie d'un processus itératif qui aboutit à déterminer le meilleur paramètre β qui minimise la différence entre la concentration précédente C_{calcul} et la concentration massique mesurée à l'aide du TEOM. On a ainsi une détermination expérimentale du rapport β à l'aide de la concentration massique qui, dans sa détermination, ne repose pas sur la valeur du préfacteur fractal k_f qui présente une forte incertitude.

5.6.2.1 "Lissage" des distributions granulométriques SMPS

La distribution des diamètres de mobilité est tronquée à 660 nm à cause de l'impacteur d'entrée du SMPS. Le "lissage" de la distribution expérimentale par une fonction log-normale va permettre d'extrapoler les valeurs au-delà de cette coupure. Ce "lissage" est effectué sur la distribution SMPS corrigée à partir de l'approche présentée dans la partie 3.3.4. A partir de la distribution log-normale "lissée", on calcule une concentration massique. Mais, de par sa nature, une distribution log-normale est étendue indéfiniment et les valeurs de cette distribution théorique pour les grandes particules ne reflètent peut être pas la distribution réelle. Il convient alors d'établir une limite supérieure à la fonction log-normale théorique que l'on peut estimer à partir des analyses de clichés de microscopie électronique. L'analyse morphologique des particules de suie nous permet de déterminer quelques distributions des diamètres de giration des agrégats de suie. On

peut ainsi déduire les distributions des diamètres de mobilité à l'aide du rapport β introduit par Rogak et Flagan (1990). La [Figure 5-11](#) présente les distributions cumulées en diamètre de mobilité déterminées à partir de l'analyse des clichés de microscopie électronique.

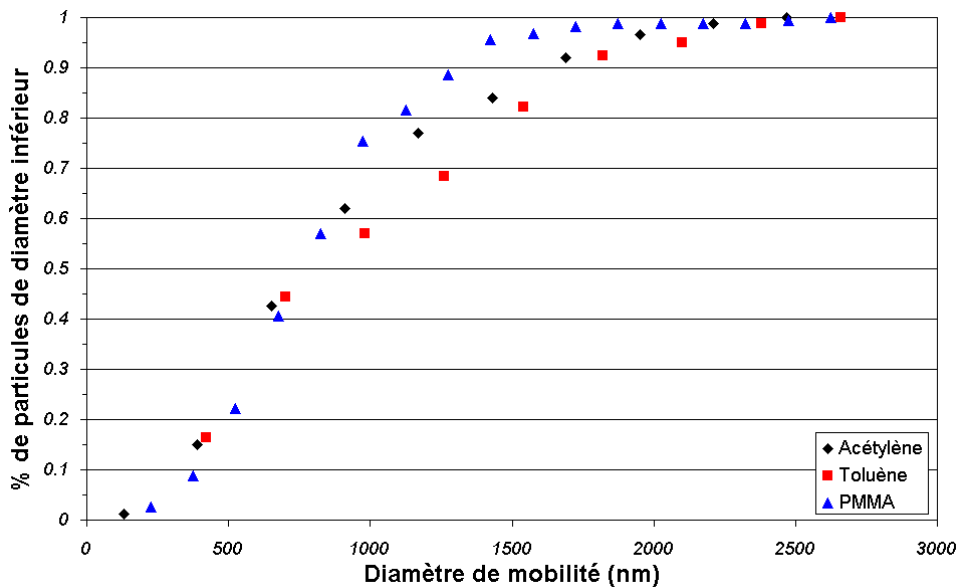


Figure 5-11: Distributions cumulées en mobilité électrique déterminées à partir des clichés MET

Le choix du diamètre de coupure a été guidé par l'analyse de cette figure. Nous avons ainsi considéré que le choix de 2 μm était correct.

5.6.2.2 Détermination expérimentale du rapport β

Comme cela a été indiqué au paragraphe 5.6.1, il est nécessaire de connaître la valeur du rapport β pour déterminer l'indice complexe des suies. On utilise pour cela les relations introduites par Rogak et Flagan (1990) et Van-Gulijk *et al.* (2004). Rogak et Flagan (1990) introduisent le paramètre α , lié au facteur β :

$$\frac{D_m}{D_{pp}} = \alpha \cdot N_p^{1/D_f} \quad \text{Équation 5-57}$$

avec la relation entre α et β :

$$\alpha = \frac{1}{\beta} \cdot \sqrt{\frac{d_f}{d_f + 2}} \quad \text{Équation 5-58}$$

On peut donc à partir de l'équation (5-55) déterminer pour chaque diamètre de mobilité, le nombre correspondant de particules primaires :

$$N_p = \left(\frac{D_m}{\alpha \cdot D_{pp}} \right)^{D_f} \quad \text{Équation 5-59}$$

La masse d'un agrégat étant définie telle que :

$$m_{agrégat} = N_p \cdot \frac{\pi}{6} \cdot \rho_{pp} \cdot D_{pp}^3 \quad \text{Équation 5-60}$$

Pour calculer la masse d'un agrégat, on intègre la relation (5-57) à la relation (5-58) et on détermine la masse de l'agrégat de la classe D_{mi} :

$$m_{ai} = \frac{\pi}{6} \cdot \rho_{pp} \cdot D_{pp}^{3-D_f} \cdot \left(\frac{D_{mi}}{\alpha}\right)^{D_f} \quad \text{Équation 5-61}$$

La concentration massique d'une classe D_{mi} de la distribution SMPS comportant N_i agrégats est alors telle que :

$$dM_i = N_i \cdot \frac{\pi}{6} \cdot \rho_{pp} \cdot D_{pp}^{3-D_f} \cdot \left(\frac{D_{mi}}{\alpha}\right)^{D_f} \quad \text{Équation 5-62}$$

On applique cette relation à chaque classe de la distribution SMPS "lissée" log-normale. Le paramètre α final est celui qui permet d'égaliser la concentration massique calculée à partir de la distribution à la concentration massique obtenue expérimentalement à l'aide du TEOM :

$$M_{totale\ SMPS} = \sum_{i=1}^n N_i \cdot \frac{\pi}{6} \cdot \rho_{pp} \cdot D_{pp}^{3-D_f} \cdot \left(\frac{D_{mi}}{\alpha}\right)^{D_f} = M_{TEOM} \quad \text{Équation 5-63}$$

Ensuite le coefficient β est obtenu à l'aide de la relation (5-61). Cette valeur est une valeur moyenne sur la distribution des diamètres de mobilité. Car nous avons vu au paragraphe 3.2.4.1, que le rapport β dépend du diamètre de mobilité jusqu'à environ 250 nm pour atteindre ensuite une valeur asymptotique pour les grands diamètres. Nous présentons dans le [Tableau 5-4](#) les valeurs du coefficient β obtenues pour les trois combustibles de cette étude ainsi que les dimensions fractales associées à chaque combustible.

Tableau 5-4 : Valeurs du rapport β utilisées pour le calcul de l'indice optique des suies

Combustible	D_f	$\beta = D_g/D_m$
Acétylène	1,85 - 1,93	1,3
PMMA	1,72 - 1,78	1,7
Toluène	1,81 - 1,86	1,6
Moyenne	1,82	1,5

Pour les trois combustibles, la valeur moyenne du rapport $\beta = D_g/D_m$ est de l'ordre de 1,5 pour une dimension fractale moyenne correspondante de l'ordre de 1,82. On peut comparer cette valeur de 1,5 à la valeur moyenne de 1,5 présentée par Rogak et Flagan (1990) pour une dimension fractale de 1,79 (cf. [Figure 5-12](#)).

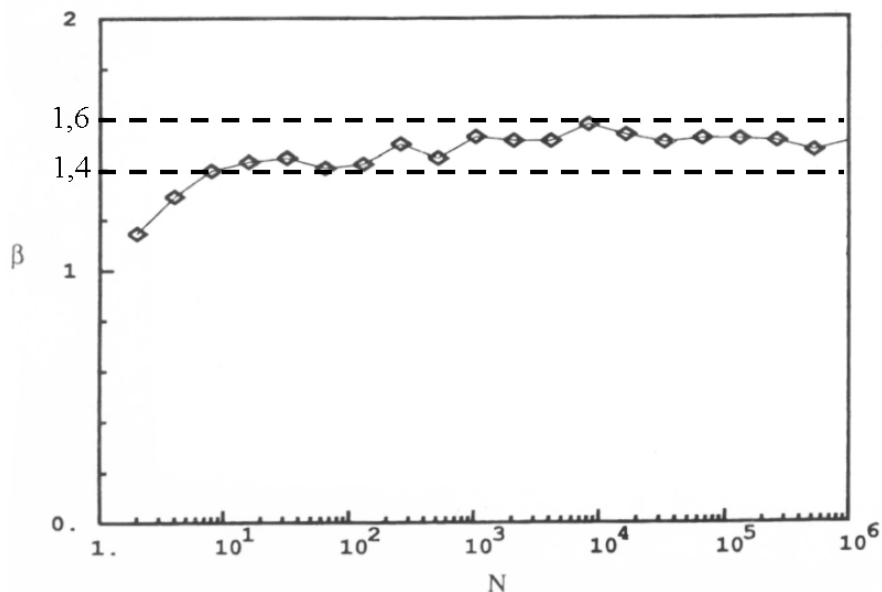


Figure 5-12 : Evolution du rapport $\beta = D_g/D_m$ en fonction du nombre de particules primaires d'après Rogak et Flagan (1990)

La valeur moyenne obtenue expérimentalement est particulièrement cohérente avec la valeur asymptotique présentée dans la littérature. Cela n'est pas étonnant, car la présente valeur de β est extraite à partir d'une égalité sur des masses, donc dans la vérification il y a une contribution très importante des grands diamètres par rapport aux petits diamètres, entraînant une valeur β proche de l'asymptote. Nous avons utilisé pour l'inversion des données la valeur de β de 1,5 pour la valeur asymptotique couplée à la fonction d'évolution de ce rapport issue du paragraphe 3.2.4.1. Une étude de sensibilité de l'indice de réfraction a été tout de même menée sur ce paramètre et elle sera présentée dans la partie 6.2.4.2.

5.6.2.3 Sensibilité du paramètre β à la limite supérieure de la distribution SMPS

Nous présentons sur la [Figure 5-13](#) l'évolution de ce rapport en fonction du diamètre de coupure de la distribution log-normale théorique. On voit ainsi qu'une incertitude de 50% sur ce diamètre de coupure n'engendre qu'une variation maximale de l'ordre de 15% sur le rapport β , on se reportera alors à l'étude de sensibilité de l'indice de réfraction au rapport β afin d'appréhender l'influence de cette incertitude.

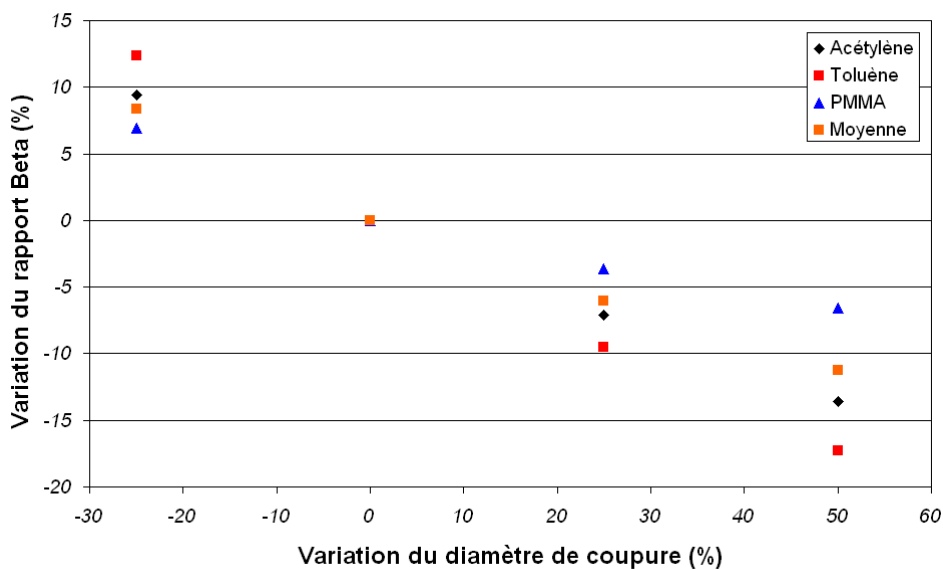


Figure 5-13 : Sensibilité du rapport β au diamètre de coupure de la distribution SMPS

6 DETERMINATION EXPERIMENTALE DES PROPRIETES OPTIQUES DES AGREGATS DE SUIE

6.1 DETERMINATION DES PROPRIETES D'EXTINCTION ET DE DIFFUSION DES AGREGATS DE SUIE

6.1.1 COEFFICIENTS D'EXTINCTION ET DE DIFFUSION MASSIQUE

Notre méthode d'inversion reposant sur les coefficients d'extinction et de diffusion "vertical-vertical" déterminés expérimentalement nous présentons dans la partie suivante les résultats obtenus pour ces deux coefficients. La [Figure 6-1](#) présente l'évolution du coefficient d'extinction en fonction de la concentration massique de suie déterminée à l'aide du TEOM. Les mesures ont été effectuées pour chacun des combustibles à deux débits de ventilation extrêmes : 100 et 450 m³/h.

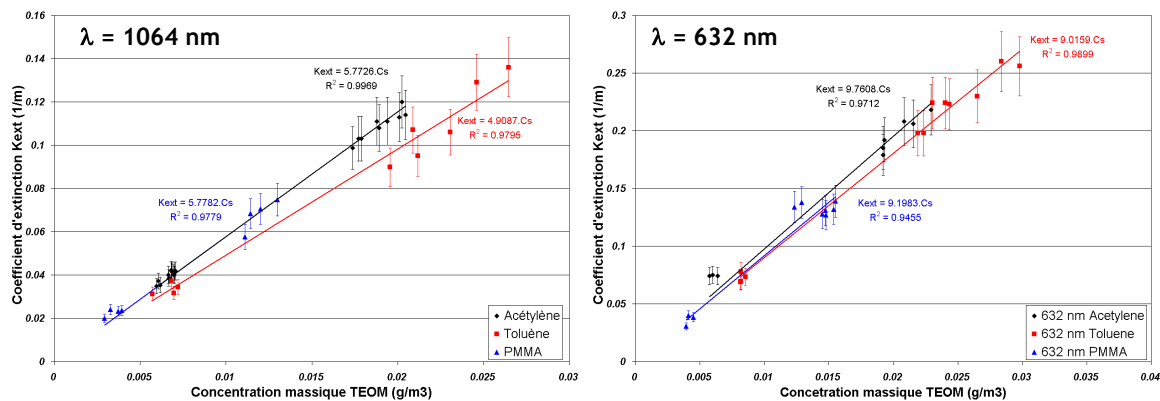


Figure 6-1 : Evolution du coefficient d'extinction en fonction de la concentration TEOM

A la vue des résultats reportés sur la [Figure 6-1](#), on s'aperçoit que les résultats d'extinction pour les trois combustibles peuvent être alignés sur une courbe unique. La relation du paragraphe 5.2.2.3 montre que la section efficace d'absorption C_a est proportionnelle au nombre de particules primaires composant les agrégats (équation 5-41) et donc que le coefficient d'absorption est proportionnel à la fraction volumique des particules de suie. La relation entre le coefficient d'absorption K_{abs} et la concentration massique C_s de suie est donc de la forme :

$$K_{abs} = \frac{6 \cdot \pi \cdot E(m) \cdot C_s}{\lambda \cdot \rho_{pp}} \quad \text{Équation 6-1}$$

La section efficace de diffusion n'est pas proportionnelle au nombre de particules primaires composant l'agrégat (équation 5-43), il n'y a donc pas proportionnalité entre le coefficient total de diffusion K_d et la concentration massique. L'extinction étant la somme de l'absorption et de la diffusion, il ne devrait pas y avoir théoriquement de relation linéaire entre le coefficient d'extinction K_{ext} et la concentration massique C_s . Les résultats de la [Figure 6-1](#) montrent qu'une relation linéaire est assez bien vérifiée. Ceci nous permet d'affirmer que, dans la cellule d'extinction et pour les conditions expérimentales choisies, le phénomène de diffusion était faible devant l'absorption au sein des particules de suie. Ce point sera à nouveau discuté dans le paragraphe 6.2.5 où il sera question de la mesure de la fraction volumique des particules de suie au moyen de leurs extinctions optiques.

Le coefficient spécifique massique d'extinction est défini par la pente des courbes reportées sur la Figure 6-1. On s'aperçoit qu'il est proche pour les trois combustibles.

La Figure 6-2 présente l'évolution du coefficient de diffusion "vertical-vertical" en fonction de la concentration massique de suies déterminées à l'aide du TEOM. Les résultats pour la diffusion présentent en revanche une dispersion plus importante entre les combustibles et il convient de les dissocier entre eux afin de souligner la relation linéaire, non-attendue théoriquement, existant entre le coefficient de diffusion et la concentration massique en suie.

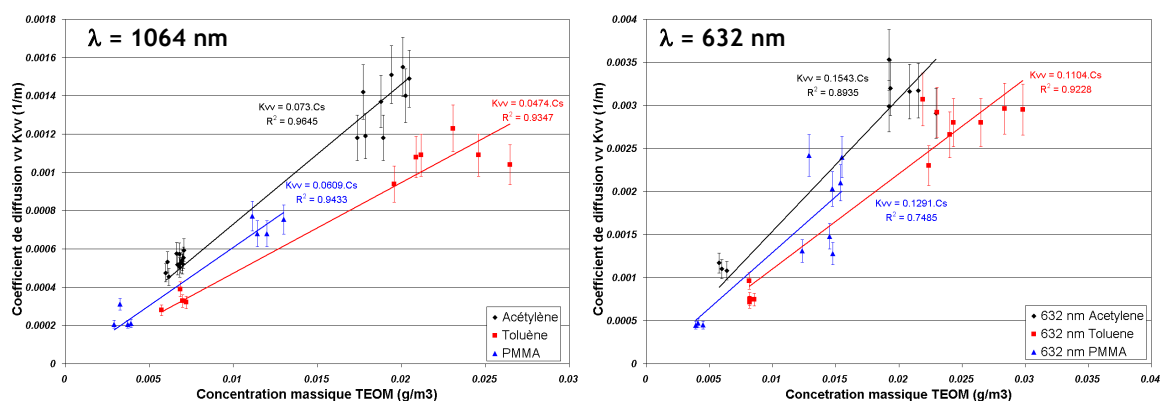


Figure 6-2 : Evolution du coefficient de diffusion vertical-vertical pour chaque combustible

Cette étude comparative entre les coefficients d'extinction, diffusion et la concentration massique TEOM nous permet d'apporter les conclusions suivantes :

- le dispositif expérimental et le protocole associé produisent des résultats reproductibles pour les trois combustibles et pour les deux longueurs d'onde d'étude (1064 et 632 nm)
- les suies produites par les trois combustibles présentent les mêmes coefficients spécifiques massiques d'extinction à ces deux longueurs d'onde
- les coefficients de diffusion présentent en revanche des disparités significatives entre les combustibles

6.1.2 EVOLUTION DES COEFFICIENTS SPECIFIQUES EN FONCTION DE LA LONGUEUR D'ONDE : COMPARAISON AVEC LES DONNEES DE LA LITTERATURE

Le coefficient spécifique massique d'extinction est, comme cela a été vu précédemment, défini par la pente des courbes reportées sur la Figure 6-1. De nombreuses valeurs sont disponibles dans la littérature, car sa connaissance permet de déterminer aisément, par des mesures d'extinction, la concentration massique en suies dans les fumées. Les travaux de Mulholland et Croarkin (2000) et Newman et Steciak (1987) sont particulièrement exhaustifs sur le sujet. Ils ont rassemblé un grand nombre de valeurs obtenues dans des fumées de flammes sur-ventilées comme c'est le cas pour la présente étude. La Figure 6-3 présente les valeurs de coefficients spécifiques massiques d'extinction issues de ces études ainsi que les résultats expérimentaux de la présente étude.

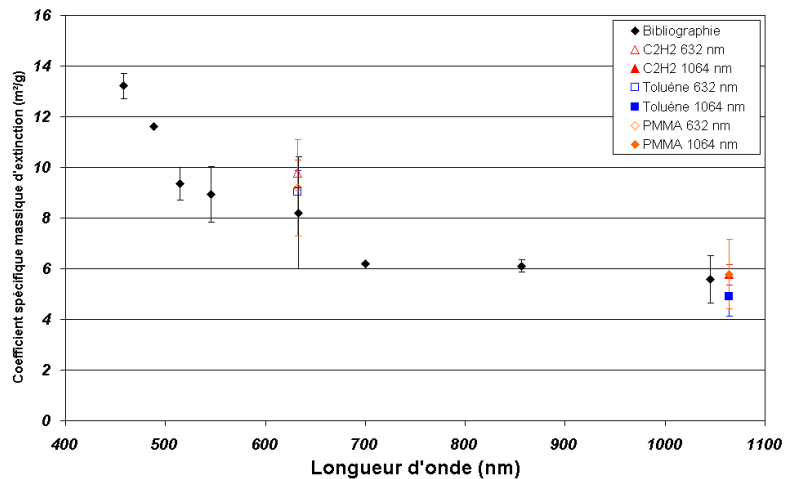


Figure 6-3 : Evolution du coefficient spécifique massique d'extinction en fonction de la longueur d'onde, les résultats issus de la littérature sont les valeurs moyennes tirées des analyses de Mulholland et Croarkin (2000) et Newman et Steciak (1987)

Les résultats expérimentaux apparaissent cohérents avec ceux issus de la littérature et tout particulièrement lorsque l'on observe l'évolution de ce coefficient en fonction de la longueur d'onde. Si on moyenne les coefficients spécifiques massiques d'extinction à 632 et 1064 nm pour l'ensemble des combustibles, on trouve respectivement 9,3 m²/g et 5,4 m²/g. Ces deux valeurs peuvent être utilisées afin de déterminer la concentration massique en particules de suie à partir d'une mesure non-intrusive du coefficient d'extinction.

6.2 DETERMINATION DE L'INDICE OPTIQUE DES PARTICULES DE SUIE

6.2.1 DONNEES UTILISEES POUR LA MORPHOLOGIE DES SUIES

La méthode d'inversion a été présentée en détail dans la partie 5.6 et on rappelle dans le [Tableau 6-1](#) les données morphologiques utilisées et qui sont essentielles à la détermination de l'indice des particules de suies.

Tableau 6-1 : Données morphologiques utilisées pour l'inversion des données d'extinction et de diffusion

Combustible	Débit (m ³ /h)	D _f	k _f	D _{pp} (nm)
Acétylène	450	1,85	2,31	66
	100	1,93	1,68	64
Toluène	450	1,86	1,89	52
	100	1,81	2,62	70
PMMA	450	1,78	2,84	42
	100	1,74	2,63	53

6.2.2 RESULTATS DE L'ETUDE EXPERIMENTALE

Dans cette partie nous présentons les résultats issus de l'inversion des données obtenues à l'aide du dispositif EXSCA pour les trois combustibles et dans deux configurations distinctes de ventilation : 100 et 450 m³/h. L'incidence de ce débit de ventilation, comme nous l'avons indiqué dans le paragraphe 4.4.2, est

assez faible sur la dimension et le préfacteur fractal des particules de suie mais est beaucoup plus notable sur le diamètre de mobilité des agrégats et le diamètre des particules primaires.

Les valeurs moyennes de l'indice, l'écart type qui représente un intervalle de confiance de 95 % ($\pm 2\sigma$) et le nombre d'essais menés sont présentés respectivement pour l'acétylène, le toluène et le PMMA dans le [Tableau 6-2](#), le [Tableau 6-3](#) et le [Tableau 6-4](#) pour 100 et 450 m³/h et pour les deux longueurs d'ondes. On retrouve de plus dans ces tableaux les valeurs moyennes de la fonction de l'indice E(m) qui sont particulièrement utiles pour le calcul de la fraction volumique de suies à partir des valeurs des coefficients d'extinction.

Tableau 6-2 : Nombre d'essais menés et valeurs moyennes de l'indice de réfraction, de la fonction E(m) pour les flammes d'acétylène à 632 et 1064 nm (Ecart type estimé à $\pm 2\sigma$)

Débit	632 nm		1064 nm	
	100 m ³ /h	450 m ³ /h	100 m ³ /h	450 m ³ /h
n	1,65 ± 0,13	1,54 ± 0,06	1,78 ± 0,17	1,74 ± 0,10
k	0,67 ± 0,06	0,49 ± 0,10	1,02 ± 0,24	0,87 ± 0,21
E(m)	0,2855 ± 0,03	0,2358 ± 0,05	0,3637 ± 0,10	0,3312 ± 0,07
Nombre d'essais	6	3	11	14

Tableau 6-3 : Nombre d'essais menés et valeurs moyennes de l'indice de réfraction et de la fonction E(m) pour les flammes de toluène à 632 et 1064 nm (Ecart type estimé à $\pm 2\sigma$)

Débit	632 nm		1064 nm	
	100 m ³ /h	450 m ³ /h	100 m ³ /h	450 m ³ /h
n	1,35 ± 0,22	1,45 ± 0,26	1,50 ± 0,27	1,75 ± 0,12
k	0,69 ± 0,08	0,58 ± 0,03	0,81 ± 0,25	0,87 ± 0,32
E(m)	0,3810 ± 0,09	0,2847 ± 0,06	0,4210 ± 0,15	0,3245 ± 0,10
Nombre d'essais	8	4	7	6

Tableau 6-4 : Nombre d'essais menés et valeurs moyennes de l'indice de réfraction et de la fonction E(m) pour les flammes de PMMA à 632 et 1064 nm (Ecart type estimé à $\pm 2\sigma$)

Débit	632 nm		1064 nm	
	100 m ³ /h	450 m ³ /h	100 m ³ /h	450 m ³ /h
n	1,69 ± 0,10	1,62 ± 0,17	1,74 ± 0,24	1,76 ± 0,17
k	0,62 ± 0,13	0,58 ± 0,11	0,72 ± 0,13	0,84 ± 0,17
E(m)	0,2468 ± 0,04	0,2574 ± 0,08	0,2874 ± 0,10	0,3183 ± 0,10
Nombre d'essais	4	3	4	4

Pour l'acétylène tout d'abord, les valeurs d'indice à 632 nm sont très proches des valeurs citées par Dalzell & Sarofim (1969) et généralement rencontrées dans la littérature (Smyth & Shaddix, 1996). On observe à 1064 nm une augmentation de la partie réelle et imaginaire correspondant à l'évolution théorique supposée

par les relations de dispersion sur lesquelles nous reviendrons par la suite. Ensuite pour le toluène, on observe une différence assez notable entre les valeurs obtenues à 450 et 100 m³/h, les indices déterminés à plus faible débit de ventilation étant plus faibles que les données obtenues à plus fort débit de ventilation. Enfin pour le PMMA les valeurs d'indice optique évoluent de manière comparable avec les résultats obtenus pour l'acétylène.

6.2.3 DISCUSSION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX D'INDICE OPTIQUE

6.2.3.1 Influence du débit de ventilation

Les résultats précédents concernaient les conditions extrêmes de ventilation, à savoir 100 et 450 m³/h. L'influence du débit de ventilation sur l'indice de réfraction des particules de suie a été étudiée uniquement dans le cas de l'acétylène et les résultats sont montrés sur la [Figure 6-4](#). On retrouve aussi sur cette figure l'évolution du coefficient d'extinction et de diffusion "vertical-vertical" en fonction du débit de ventilation. Cette évolution est similaire à celle présentée pour la concentration massique en particules de suie. Ce résultat apparaît logique de par le lien existant entre le coefficient d'extinction et la concentration massique qui est présenté dans la partie 6.1.1.

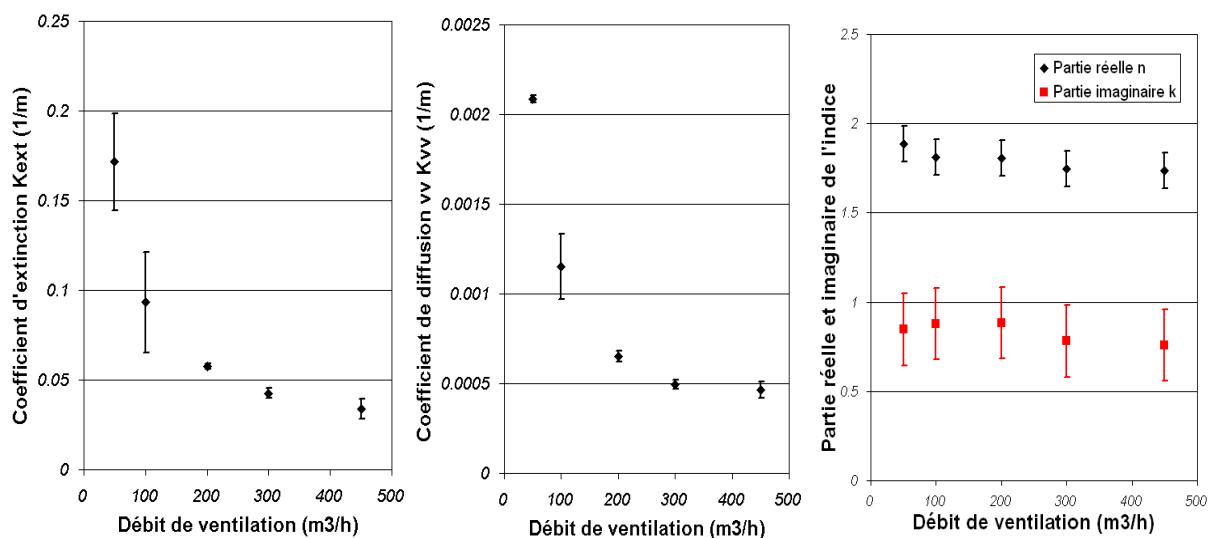


Figure 6-4 : Influence du débit de ventilation sur le coefficient d'extinction, de diffusion vertical-vertical et sur l'indice de réfraction de particules de suie d'acétylène à 1064 nm

Pour l'indice optique, la partie réelle diminue légèrement lorsque le débit de ventilation augmente tout comme la partie imaginaire. Cependant il est difficile de considérer cette différence comme étant inhérente au débit de ventilation ou due à l'incertitude de la méthode de détermination de l'indice de réfraction. L'influence du débit de ventilation apparaissant assez faible et cette étude nécessitant un travail particulièrement conséquent nous avons considéré les conclusions obtenues sur l'acétylène comme généralisable aux autres combustibles. Les indices optiques des particules de suie issues de la combustion du toluène et du PMMA ont donc été mesurés uniquement à 450 et 100 m³/h. Les faibles différences de valeurs d'indice obtenues pour ces deux conditions de ventilation ont d'ailleurs confirmé cette hypothèse.

6.2.3.2 Comparaison des valeurs d'indice optique pour les différents combustibles

Les résultats expérimentaux obtenus pour les trois combustibles, pour les deux longueurs d'onde et les débits de ventilation extrêmes sont récapitulés dans le [Tableau 6-5](#).

Tableau 6-5 : Synthèse des valeurs expérimentales de l'indice optique des particules de suie

λ (nm)	Combustible	Débit (m ³ /h)	Partie réelle n	Partie imaginaire k
632	Acétylène	450	1,54 ± 0,06	0,49 ± 0,10
		100	1,65 ± 0,13	0,67 ± 0,06
	Toluène	450	1,51 ± 0,26	0,58 ± 0,03
		100	1,35 ± 0,22	0,69 ± 0,08
	PMMA	450	1,62 ± 0,17	0,58 ± 0,11
		100	1,69 ± 0,10	0,62 ± 0,13
1064	Acétylène	450	1,74 ± 0,10	0,87 ± 0,21
		100	1,78 ± 0,17	1,02 ± 0,24
	Toluène	450	1,75 ± 0,12	0,87 ± 0,32
		100	1,50 ± 0,27	0,81 ± 0,25
	PMMA	450	1,76 ± 0,17	0,84 ± 0,17
		100	1,74 ± 0,24	0,72 ± 0,13

Il est rappelé que chaque valeur est donnée par sa moyenne et l'écart type calculé sur le nombre d'essais. On retrouve, quelle que soit la longueur d'onde, des valeurs d'indice proches pour chacun des combustibles. Il convient cependant de noter que le toluène présente un comportement un peu différent des autres combustibles. En effet si les valeurs d'indice optique obtenues aux deux longueurs d'onde pour le toluène apparaissent comparables aux valeurs obtenues pour les deux autres combustibles pour un débit de ventilation de 450 m³/h, on obtient, pour un débit de ventilation de 100 m³/h, un indice présentant une partie réelle systématiquement plus faible qu'à 450 m³/h. Cette singularité a déjà été observée pour la distribution granulométrique déterminée à l'aide du SMPS.

Donc à part le cas de la partie réelle pour le toluène avec une ventilation de 100 m³/h, les valeurs du tableau pour chaque longueur d'onde sont assez proches. Cette similitude des résultats obtenus pour les trois combustibles et les différentes ventilations permet d'établir une valeur moyenne de l'indice pour ces trois combustibles, $m = 1,56 - 0,61.i$ à 632 nm et $m = 1,71 - 0,86.i$ à 1064 nm.

On peut supposer que les valeurs moyennes ci-dessus sont représentatives d'un grand nombre d'autres combustibles, dont les propriétés morphologiques ne sont pas trop différentes de celles rencontrées dans cette étude. Les valeurs moyennes ci-dessus peuvent être utilisées pour estimer les fractions volumiques de particules de suie dont l'indice n'est pas connu et dont la valeur n'est pas facilement mesurable, comme par exemple, lors d'essais à grande échelle pour lesquels une telle instrumentation est difficilement envisageable. La justesse des valeurs moyennes ci-dessus sera à nouveau examinée dans le paragraphe 6.2.5.2, les valeurs déduites des fractions volumiques calculées à partir de ces indices étant comparées à celles obtenues grâce au TEOM.

Pour déterminer l'indice optique des suies, il a été utilisé dans la procédure d'inversion l'approximation RDG-FA. Les paramètres permettant de tester les conditions de validité de la RDG-FA ont été estimés et ils sont présentés dans le [Tableau 6-6](#). Rappelons que ces conditions, introduites par Farias *et al.* (1996), imposent : $|m-1| < 1$ et $2.x.|m-1| < 0,6$. Il est constaté que, pour les indices obtenus au cours de cette étude, la condition $2.x.|m-1| < 0,6$ est dans l'ensemble bien vérifiée, mais que l'autre condition $|m-1| < 1$

n'est pas vérifiée pour la longueur d'onde de 1064 nm. Il faut cependant remarquer que ces deux conditions étant liées, le fait que $|m-1| < 1$ ne soit pas complètement vérifié est compensé par la valeur plus faible alors prise pour la seconde condition $2.x. |m-1| < 0,6$ (Farias *et al.* (1996)).

Tableau 6-6 : Conditions de validité de Farias *et al.* (1996) de la RDG-FA pour les valeurs d'indice de l'étude

λ (nm)	Combustible	Débit	$ m-1 $	$2.x. m-1 $
632	Acétylène	450	0,73	0,48
		100	1,03	0,65
	Toluène	450	0,78	0,40
		100	0,78	0,50
	PMMA	450	0,85	0,36
		100	0,83	0,44
1064	Acétylène	450	1,15	0,45
		100	1,29	0,49
	Toluène	450	1,15	0,35
		100	0,97	0,37
	PMMA	450	1,14	0,28
		100	1,04	0,33

6.2.3.3 Comparaison avec les données de la littérature

Comme nous l'avons indiqué dans le paragraphe 5.3 les valeurs d'indice rencontrées dans la littérature sont aussi nombreuses que dispersées. Cette grande dispersion peut tout d'abord s'expliquer par les différences au niveau des combustibles utilisés, en particulier le rapport C/H des particules de suie (Habib et Vervisch, 1988). On peut aussi attribuer cette dispersion aux différences qui existent dans les méthodes de mesure et aux diverses hypothèses fondant ces méthodes. Sur la [Figure 6-5](#) nous comparons les valeurs d'indice issues de la présente étude aux valeurs rencontrées dans la littérature (Dalzell et Sarofim, 1969, Lee et Tien, 1981, Charalampopoulos et Felske, 1987, Mullins et Williams, 1987, Habib et Vervisch, 1988, Chang et Charalampopoulos, 1990, Stagg et Charalampopoulos, 1993, Köylü et Faeth, 1996, Barakat *et al.*, 1997, Wu *et al.*, 1997, Krishnan et Faeth, 1999, Van-Hulle *et al.*, 2002, Schnaiter *et al.*, 2003). Les données expérimentales issues de cette étude sont donc assez cohérentes avec les valeurs rencontrées dans la littérature. L'allure générale des variations de n et k s'explique bien grâce aux relations de dispersion qui seront décrites dans un prochain paragraphe et qui permettront de déterminer à la fois les propriétés optiques des suies à toutes les longueurs d'onde mais aussi leur émissivité totale.

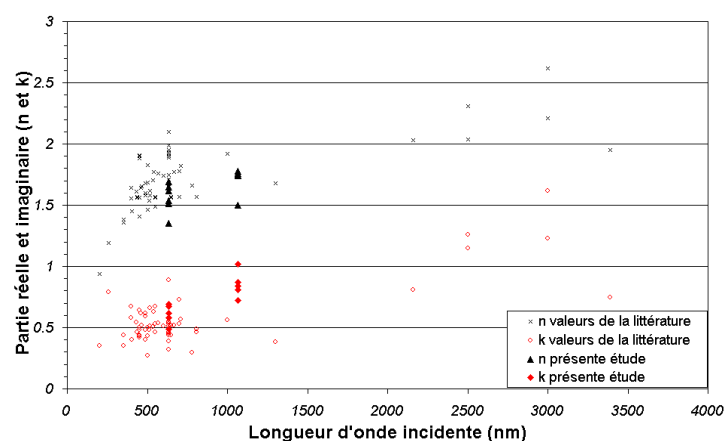


Figure 6-5 : Comparaison des valeurs expérimentales et bibliographiques d'indice optique

6.2.3.4 Détermination des fonctions E(m) et F(m) de l'indice pour les différents combustibles et pour les deux longueurs d'onde 632 nm et 1064 nm

Les relations qui permettent de calculer les sections efficaces des particules de suie font intervenir deux fonctions de l'indice E(m) et F(m) (paragraphe 5.2.2.3). En particulier, la fonction E(m) joue un rôle fondamental dans la détermination des fractions volumiques. Les valeurs d'indice reportées dans le [Tableau 6-5](#) montrent clairement que pour la variété de combustibles utilisés, l'indice optique n'est pas très influencé par la nature du combustible, excepté pour le toluène à 100 m³/h. La [Figure 6-6](#) présente l'évolution de E(m) et F(m) en fonction du rapport carbone sur hydrogène du combustible (masse de carbone sur masse d'hydrogène composant le combustible), qui a été choisi comme un paramètre permettant de classer les combustibles entre eux (rappel : masse molaire de l'acétylène 26 g/mol, du toluène 92 g/mol et du PMMA 100 g/mol). Il convient de plus d'indiquer que la valeur particulière d'indice optique du toluène à 100 m³/h a été écartée de cette moyenne.

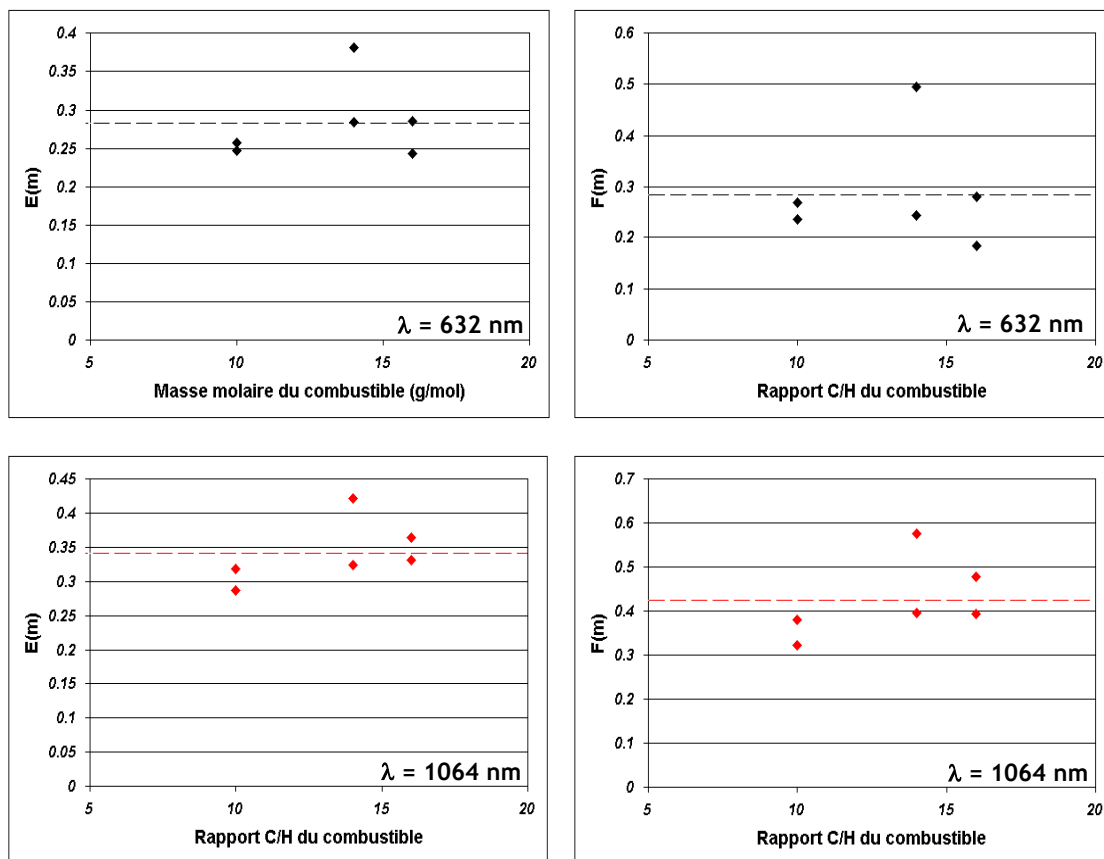


Figure 6-6 : Evolution des fonctions de l'indice E(m) et F(m) en fonction de la nature du combustible

L'influence de la nature du combustible apparaît assez faible sur les fonctions E(m) et F(m) de l'indice. Ce résultat est logique puisque nous avons vu sur la [Figure 6-1](#) que l'extinction, qui est assez proche de l'absorption, était liée à la concentration massique de suie et que ce lien était identique pour chacun des combustibles. Or ce lien fait intervenir la fonction E(m) de l'indice (équation 6-1), il est donc logique que les fonctions E(m) obtenues pour les différents combustibles soient proches. A l'inverse la longueur d'onde semble jouer un rôle plus important sur ces deux paramètres, on trouve des valeurs de E(m) et F(m) à 1064 nm respectivement 20 et 60 % supérieures à celles déterminées à 632 nm. Suite à ce constat de relative invariance

des paramètres $E(m)$ et $F(m)$ en fonction du combustible, nous avons calculé la valeur moyenne de ces fonctions pour nos trois combustibles et pour chacun des deux longueurs d'onde d'étude, $E(m)$ égal à **0,2831** à **632 nm**, **0,3410** à **1064 nm** et $F(m)$ égal à **0,2851** à **632 nm** et **0,4243** à **1064 nm**. Ces valeurs expérimentales sont à comparer aux valeurs généralement employées issues des travaux Dalzell et Sarofim (1969) et récapitulées par Smyth et Shaddix (1996). Si on considère la valeur de $m = 1,57 - 0,56.i$ à 632 nm on trouve un $E(m)$ de 0,2595 et un $F(m)$ de 0,2173, valeurs inférieures à nos résultats expérimentaux obtenus à 632 nm. Nous présentons sur la **Figure 6-7** les données issues des travaux de Krishnan *et al.* (2001). Il convient de noter que les valeurs de $E(m)$ établies par Krishnan *et al.* (2001) sont déterminées en effectuant une mesure du coefficient d'extinction, corrigée ensuite à partir de la RDG-FA afin d'estimer le coefficient correspondant d'absorption. La comparaison de ce coefficient d'absorption avec la fraction volumique de particules de suie à l'aide de la relation 6-1 lui permet alors de déterminer les valeurs de $E(m)$ correspondantes. Les valeurs de $E(m)$ également récapitulées sur cette figure ont été obtenues au cours des travaux de Felske *et al.* (1984), Dalzell et Sarofim (1969), Stagg et Charalampopoulos (1993), Wu *et al.* (1997), Köylü et Faeth (1994) et Krishnan *et al.* (2000). Nous avons de plus représenté sur cette figure les valeurs moyennes $E(m)$ obtenues à 632 nm et 1064 nm pour les différents combustibles dans cette étude.

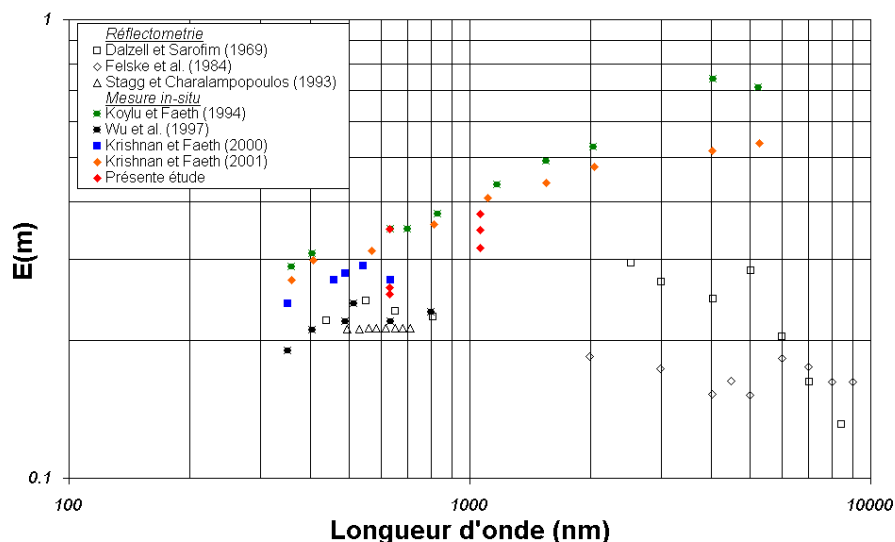


Figure 6-7 : Comparaison des valeurs expérimentales de $E(m)$ avec les données issues de la littérature (d'après Krishnan *et al.* (2001))

On retrouve une assez grande dispersion des valeurs de $E(m)$ pour l'ensemble des travaux présentés sur cette figure. Nous retrouvons tout comme Krishnan une évolution de $E(m)$ en fonction de la longueur d'onde, cependant nous trouvons aussi des valeurs légèrement inférieures aux deux longueurs d'onde. Il est rappelé que la présente méthode de détermination de $E(m)$ est différente de celle utilisée par Krishnan *et al.* (2001).

6.2.4 ETUDE DE SENSIBILITE

6.2.4.1 Sensibilité de l'indice aux paramètres D_f , k_f , β , D_D , K_e , K_{vv}

La sensibilité de l'indice aux différents paramètres d'entrée de la méthode d'inversion a été analysée

et les résultats sont présentés dans ce paragraphe. Nous détaillons dans le [Tableau 6-7](#) les valeurs de références utilisées pour cette étude de sensibilité. A partir de celles-ci, on a fait varier les valeurs de ces paramètres sur une certaine plage, sensée représenter les incertitudes associées. Cette étude est réalisée en faisant varier les différents coefficients de façon indépendante avec des variations importantes afin de tester la robustesse de la méthode d'inversion. Ces plages de variations sont égales à 10, 50, 15, 15, 15 et 40 % pour respectivement D_f , k_f , β , D_p , K_e et K_{vv} .

Tableau 6-7 : Valeurs de référence pour les paramètres d'entrée pour les trois combustibles. Les valeurs pour l'indice optique sont celles obtenues à 1064 nm

Combustible	Acétylène (450 m ³ /h)	Toluène (450 m ³ /h)	PMMA (450 m ³ /h)
D_p	66	52	42
D_f	1,85	1,86	1,78
k_f	2,31	2,89	2,84
β	1,5	1,5	1,5
K_e	$4,21 \cdot 10^{-2}$	$3,17 \cdot 10^{-2}$	$2,33 \cdot 10^{-2}$
K_{vv}	$5,73 \cdot 10^{-2}$	$3,28 \cdot 10^{-4}$	$2,06 \cdot 10^{-4}$
m	1,74 - 0,93.i	1,78 - 0,91.i	1,72 - 0,86.i

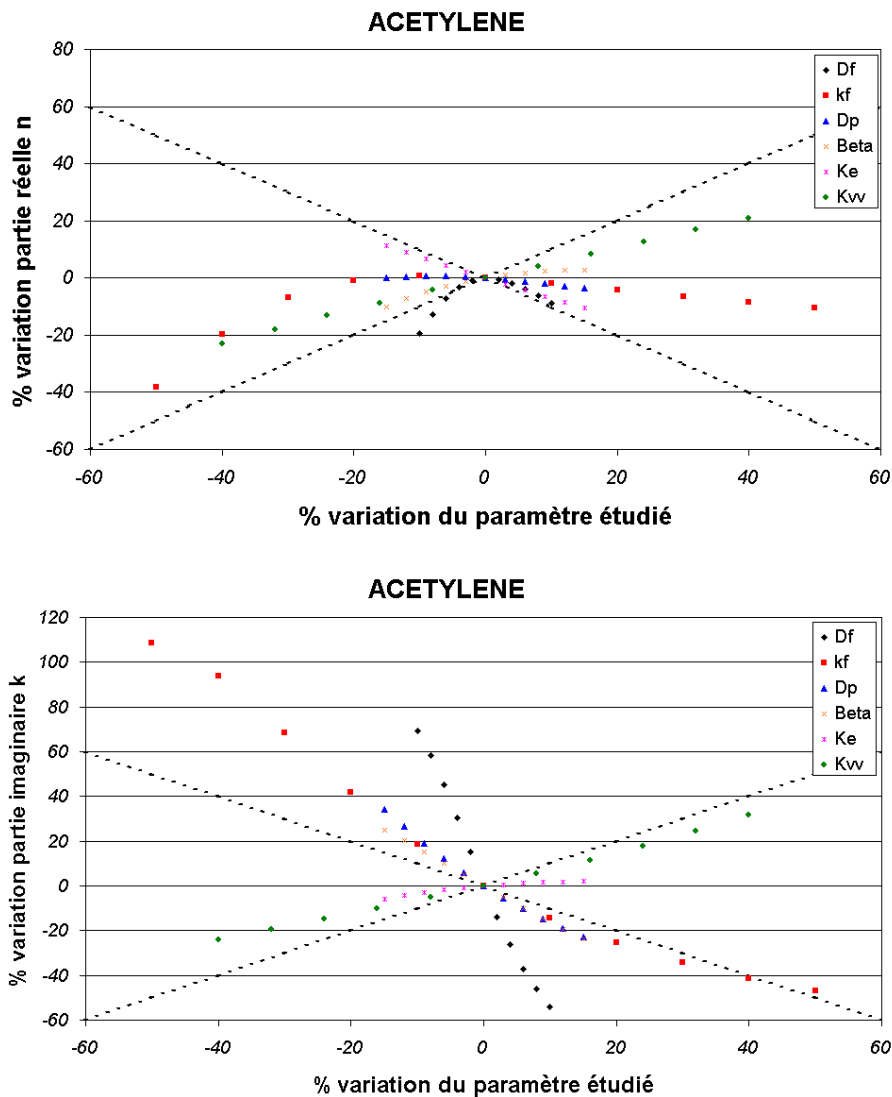


Figure 6-8 : Influence des variations de D_f , k_f , β , D_p , K_e et K_{vv} sur les parties réelle et imaginaire de l'indice

La [Figure 6-8](#) présente les courbes de sensibilité de l'indice en fonction de D_f , k_f , β , D_p , K_e et K_{vv} pour le cas de l'acétylène, les variations observées pour ce cas étant généralisables aux deux autres combustibles de cette étude. Quel que soit le cas étudié, la sensibilité sur la partie réelle est toujours plus faible que celle sur la partie imaginaire. Les paramètres les plus influents sont, par ordre décroissant, pour la partie réelle la dimension fractale, les coefficients d'extinction et de diffusion vertical-vertical, le rapport β et en dernier le préfacteur et le diamètre des particules primaires. Pour la partie imaginaire on trouve toujours par ordre décroissant, la dimension fractale, le préfacteur, le diamètre des particules, le rapport β et enfin les coefficients d'extinction et de diffusion "vertical-vertical". On remarque que le préfacteur et le diamètre des particules primaires ont la même influence, que ce soit pour n ou k . Pour les coefficients d'extinction et de diffusion, la sensibilité de l'indice est assez faible pour la partie imaginaire et il faut envisager de très fortes incertitudes sur ces paramètres pour influencer la valeur finale de la partie imaginaire.

6.2.4.2 Sensibilité de l'indice au rapport β et à son évolution

Nous avons précédemment souligné l'importance du paramètre β et deux approches différentes pour sa détermination ont été présentées. La première méthode, basée sur l'analyse en série du diamètre de mobilité électrique et du diamètre aérodynamique, s'est montrée particulièrement sensible à la valeur du préfacteur k_f et à son incertitude associée (paragraphe 3.2.4.1). Cette influence forte du préfacteur joue essentiellement sur la valeur asymptotique prise par ce rapport β pour les grandes valeurs de N_p , le nombre de sphérules par agrégat, ou ce qui revient au même pour les grandes valeurs du diamètre de mobilité, mais elle ne change pas la forme de son évolution en fonction de N_p . En parallèle, l'autre méthode, présentée dans la partie 5.6.2.2, permet de déterminer seulement cette valeur asymptotique qui est de l'ordre de 1,5. On peut réconcilier ces deux approches dans le but d'avoir une estimation de l'évolution du rapport β en fonction de N_p mais avec une valeur asymptotique réaliste. Cela a été fait de façon artificielle dans la présente étude et constitue donc une première approche de la question, d'autres études seraient à prévoir pour approfondir le sujet. On multiplie les valeurs de la fonction $\beta(N_p)$ déterminée dans l'analyse en série DMA-ELPI par une constante de telle sorte que la limite asymptotique corresponde à un rapport β de 1,5, c'est à dire la valeur fournie par la méthode présentée au paragraphe 5.6.2. La fonction ainsi déduite est présentée sur la [Figure 6-9](#) et comparée à la fonction déterminée par Rogak et Flagan (1990).

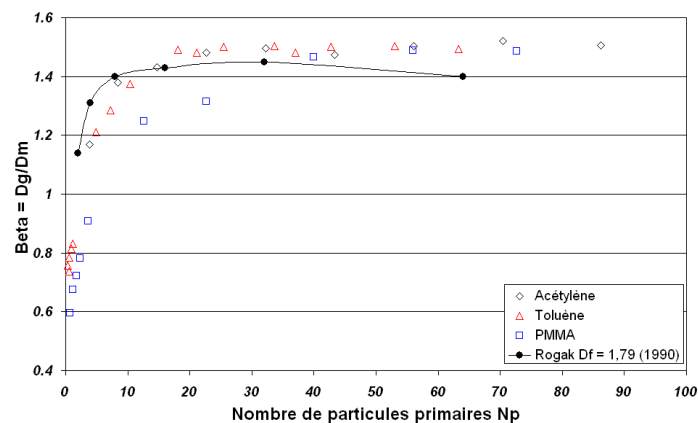


Figure 6-9 : Comparaison de l'évolution expérimentale du rapport β en fonction du nombre de particules primaires avec l'évolution issue des travaux de Rogak *et al.* (1990)

En utilisant les relations 3-34 à 3-36 qui ont été obtenues expérimentalement on peut donc relier le rapport β au diamètre de mobilité des agrégats à l'aide de la relation suivante :

$$\beta = 1,52 - \frac{3458}{D_m^2} \quad \text{Équation 6-2}$$

La relation 6-2, utile pour déterminer le rapport β , a été intégrée à la méthode d'inversion. Le rapport β n'est alors plus considéré comme une valeur constante mais dépendant du diamètre de mobilité. Le Tableau 6-8 présente les nouveaux résultats d'indice de réfraction déterminés en supposant le rapport β dépendant du diamètre de mobilité comparés aux résultats obtenus en supposant le rapport β constant.

Tableau 6-8 : Comparaison de la valeur de l'indice obtenu en utilisant une valeur β indépendante et dépendante du diamètre de mobilité D_m

Combustible, débit	632 nm		1064 nm	
	$\beta = 1,5$	$\beta = \text{fct}(D_m)$	$\beta = 1,5$	$\beta = \text{fct}(D_m)$
Acétylène, 450	$m = 1,571 - 0,565.i$	$m = 1,574 - 0,54.i$	$m = 1,770 - 0,777.i$	$m = 1,759 - 0,812.i$
Toluène, 450	$m = 1,436 - 0,626.i$	$m = 1,446 - 0,605.i$	$m = 1,784 - 0,911.i$	$m = 1,793 - 0,860.i$
PMMA, 450	$m = 1,559 - 0,652.i$	$m = 1,562 - 0,648.i$	$m = 1,716 - 0,860.i$	$m = 1,709 - 0,869.i$

L'incertitude induite par l'hypothèse d'un rapport β constant est donc pour la partie réelle de l'ordre de 0,4 % et pour la partie imaginaire de l'ordre de 2,8 %. L'incertitude induite par cette hypothèse est inférieure à l'incertitude de la méthode expérimentale.

6.2.5 CALCUL DE LA FRACTION VOLUMIQUE DE SUIE

La connaissance de l'indice de réfraction des suies est cruciale pour établir les propriétés radiatives de ces particules dans les flammes mais l'indice doit être aussi connu avec précision si l'on souhaite estimer la fraction volumique de particules de suie à partir d'une mesure de l'extinction optique. L'application dans le domaine de l'incendie est évidente, cela permet une mesure non-intrusive de la fraction volumique de suies dans les fumées. Cette méthode va être décrite dans ce paragraphe, et comparée avec la fraction volumique déterminée à partir d'une mesure de concentration massique.

6.2.5.1 Fraction volumique "massique"

La fraction massique des particules de suie est déterminée grâce à l'utilisation d'une micro-balance TEOM (voir paragraphe 2.5.2). Pour calculer la fraction volumique il faut connaître la masse volumique des particules primaires composant les agrégats :

$$f_v = \frac{C_s}{\rho_{pp}} \quad \text{Équation 6-3}$$

Avec C_s la concentration massique en suie (g/cm^3) et ρ_{pp} la masse volumique des particules primaires. Sa valeur est prise égale à $1,72 \text{ g}/\text{cm}^3$ pour l'acétylène et $1,5 \text{ g}/\text{cm}^3$ pour le toluène et le PMMA (partie 4.3.1). Cette fraction volumique, dite "massique" car déterminée à partir du TEOM, n'utilise aucune hypothèse sur la morphologie des agrégats de suie. On considèrera que cette fraction volumique "massique" est la fraction volumique de référence que l'on comparera à la fraction volumique obtenue à l'aide du dispositif EXSCA, et qui sera appelée fraction volumique "optique".

6.2.5.2 Fraction volumique "optique"

La fraction volumique est reliée au coefficient d'absorption par la relation suivante:

$$f_v = \frac{\lambda}{6 \cdot \pi \cdot E(m)} \cdot K_{abs} \quad \text{Équation 6-4}$$

Si la diffusion est suffisamment faible, le coefficient d'extinction et d'absorption sont quasiment identiques et nous pouvons déterminer la fraction volumique à l'aide de la mesure du coefficient d'extinction. Nous verrons par la suite que, pour les fumées étudiées, la diffusion n'est pas négligeable et qu'il convient de tenir compte de la contribution de la diffusion dans la mesure du coefficient d'extinction.

La relation 6-4 montre que la fraction volumique dépend à la fois du coefficient d'absorption mais aussi de la fonction de l'indice $E(m)$. Dans cette étude l'indice optique a été déterminé et sa valeur va donc être utilisée pour calculer les fractions volumiques de particules de suie. Ce calcul sera un test supplémentaire pour vérifier la justesse des valeurs d'indice optique obtenues dans ce travail.

6.2.5.3 Détermination des coefficients de diffusion et d'absorption

Afin d'étudier la validité de l'hypothèse qui consiste à négliger la diffusion des agrégats de suie par rapport à leur absorption, les coefficients de diffusion et d'absorption de ces particules ont été calculés en fonction de l'indice optique grâce aux relations 5-41 et 5-42. Nous présentons dans le [Tableau 6-9](#) les coefficients d'extinction mesurés ainsi que les coefficients de diffusion totale et d'absorption calculés pour les trois combustibles.

Tableau 6-9 : Valeurs moyennes de coefficients d'extinction mesurés, d'absorption, de diffusion totale théoriques et le pourcentage de diffusion par rapport à l'extinction (les exemples reportés correspondent au cas d'un débit de ventilation de 450 m³/h)

Combustible	632 nm				1064 nm			
	K_{ext} (m ⁻¹)	K_{abs} (m ⁻¹)	K_{diff} (m ⁻¹)	% diff	K_{ext} (m ⁻¹)	K_{abs} (m ⁻¹)	K_{diff} (m ⁻¹)	% diff
Acétylène	7,44E-2	5,21E-2	2,23E-2	30	3,84E-2	3,01E-2	8,29E-3	22
Toluène	7,24E-2	5,92E-2	1,32E-2	18	3,37E-2	2,91E-2	4,58E-3	14
PMMA	3,64E-2	2,85E-2	7,87E-3	22	2,28E-2	1,75E-2	5,3E-3	23

Le pourcentage moyen de la contribution de la diffusion dans le phénomène d'extinction est donc de 23 % à 632 nm et de 19 % à 1064 nm. Dans cette étude, l'hypothèse d'une diffusion faible n'est donc pas correcte et il faut tenir compte de sa contribution dans la détermination de la fraction volumique à partir de la valeur de coefficient d'extinction comme cela sera montré dans le paragraphe suivant.

6.2.6 COMPARAISON DES FRACTIONS VOLUMIQUES

Nous présentons sur la [Figure 6-10](#) et la [Figure 6-11](#) la relation existant entre les fractions volumiques "massique" et "optique" déterminées d'une part à l'aide du coefficient d'extinction ([Figure 6-10](#)) et d'autre

part à partir du coefficient d'absorption (Figure 6-11). Les valeurs d'indice optique employées dans le calcul de la fraction volumique "optique" correspondent aux valeurs déterminées pour chacun des essais et pour chacun des combustibles. Aucune distinction n'a été effectuée entre les résultats obtenus pour les différents combustibles. En effet il a été montré dans le paragraphe 6.1.1 que les propriétés d'absorption et d'extinction sont très semblables pour les particules de suie issues des trois combustibles.

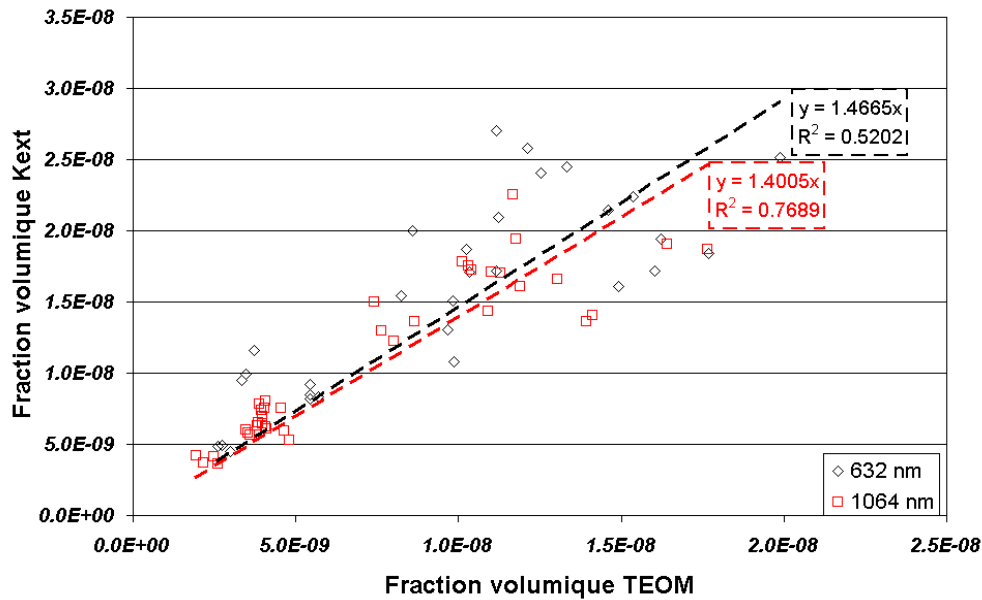


Figure 6-10 : Comparaison de la fraction volumique "massique" à la fraction volumique "optique" déterminée à partir du coefficient d'extinction K_{ext} des particules de suies. Les points correspondent à l'ensemble des résultats obtenus pour les trois combustibles.

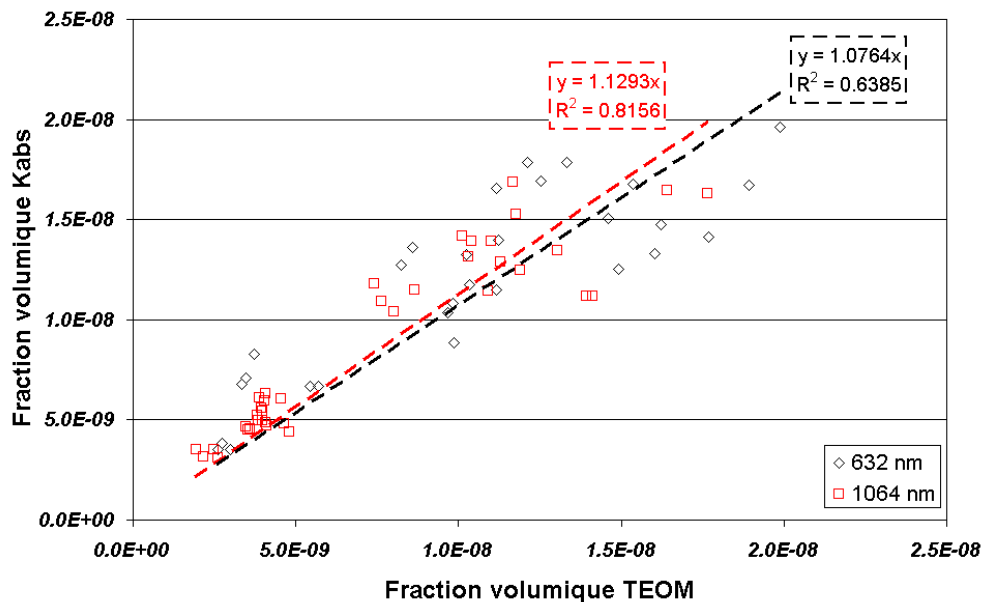


Figure 6-11 : Comparaison de la fraction volumique "massique" à la fraction volumique "optique" déterminée à partir du coefficient d'absorption K_{abs} des particules de suies. Les points correspondent à l'ensemble des résultats obtenus pour les trois combustibles.

La pente des graphes de la [Figure 6-10](#) est nettement supérieure à 1, ce qui confirme que l'hypothèse d'une diffusion faible n'est pas valable dans la présente étude. A l'inverse, la corrélation observée sur la [Figure 6-11](#) est meilleure. De plus la pente des graphes est plus proche de 1, ce qui confirme la relation existante entre le coefficient d'absorption et la fraction volumique. On constate tout de même qu'il reste une légère surestimation de la fraction volumique déterminée à partir de K_{abs} par rapport à la mesure fournie par le TEOM. Il faut remarquer que les valeurs des indices optiques obtenues aux deux longueurs d'onde sont très cohérentes entre elles car elles conduisent à des valeurs de fractions volumiques "optiques" très proches. Si à la place des valeurs d'indice utilisées ci-dessus, on prend une valeur moyenne pour les trois combustibles (paragraphe 6.2.3.2) :

- 632 nm, $m = 1,56 - 0,61.i$
- 1064 nm, $m = 1,71 - 0,86.i$

On peut calculer, pour chaque point de la [Figure 6-11](#), une nouvelle fraction volumique. La comparaison de cette fraction volumique déterminée à partir de ces deux valeurs moyennes d'indice optique avec la fraction volumique de "référence" est présentée sur la [Figure 6-12](#). On constate une meilleure corrélation entre les deux types de fraction volumique mais par contre les valeurs des pentes des droites sont plus grandes que celles de la [Figure 6-11](#), ce qui souligne une surestimation plus forte de la fraction volumique par la méthode optique par rapport à la mesure à l'aide du TEOM.

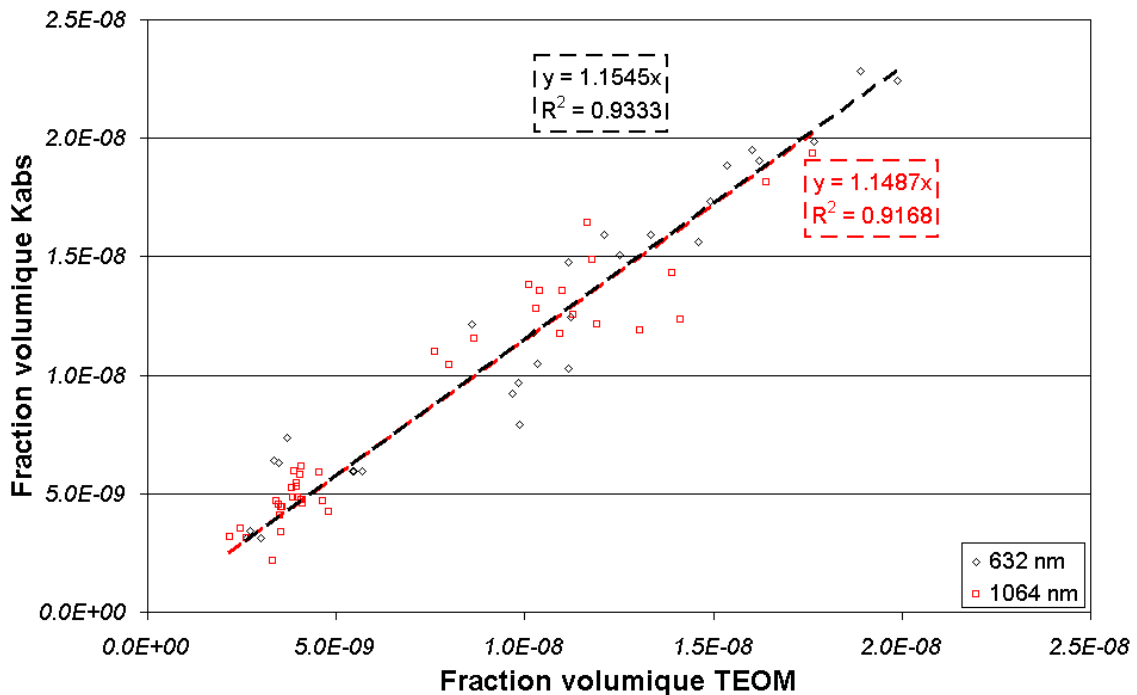


Figure 6-12: Comparaison de la fraction volumique déterminée à partir de l'indice moyen avec la fraction volumique de référence déterminée à partir de la concentration massique TEOM.

6.3 DETERMINATION DES PROPRIETES RADIATIVES DES SUIES

6.3.1 RELATIONS DE DISPERSION DE L'INDICE OPTIQUE

Pour calculer l'émissivité totale des particules de suie (voir Annexe 7) il faut connaître leur indice optique sur toute la gamme de longueur d'onde du rayonnement thermique, c'est à dire dans le visible et l'infrarouge. Cette détermination était difficilement envisageable avec les moyens expérimentaux utilisés dans cette étude. Elle a été faite à l'aide des relations de dispersion et des valeurs obtenues aux deux longueurs d'onde de travail, 632 nm et 1064 nm. Ces relations de dispersion sont données par :

$$n^2 - k^2 = 1 - \frac{e^2}{m^* \cdot \epsilon} \left(\frac{n_c}{\omega^2 + g_c^2} \right) + \frac{e^2}{m \cdot \epsilon} \sum_{i=1}^2 \frac{n_i \cdot (\omega_i^2 - \omega^2)}{(\omega_i^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 g_i^2} \quad \text{Équation 6-5}$$

$$2n \cdot k = \frac{e^2}{m^* \cdot \epsilon} \cdot \frac{n_c \cdot g_c}{\omega \cdot (\omega^2 + g_c^2)} + \frac{e^2}{m \cdot \epsilon} \sum_{i=1}^2 \frac{n_i \cdot \omega \cdot g_i}{(\omega_i^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 g_i^2} \quad \text{Équation 6-6}$$

Avec :

e = charge de l'électron ($1,6 \cdot 10^{-19}$ C)

m = masse de l'électron dans le vide ($9,3 \cdot 10^{-31}$ kg)

ϵ = constante de permittivité

n_i et n_c = densité en nombre des électrons de périphérie et de conduction

$$n_1 = 2,69 \cdot 10^{27} \text{ m}^{-3}, \quad n_2 = 2,86 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$$

ω_i = fréquence naturelle des électrons de périphérie

$$\omega_1 = 1,25 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}, \quad \omega_2 = 7,25 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$$

ω = fréquence de la radiation = $\frac{2 \cdot \pi \cdot c}{\lambda}$

g_i et g_c = constante de "damping" des électrons de périphérie et de conduction

m^* = masse effective des électrons = $m/18$

Ces relations reposent sur les modèles de Lorentz et Drude, elles sont détaillées dans l'ouvrage de Bohren et Huffman (1983). Plusieurs travaux ont été réalisés pour tester la validité de ces formules. Le travail le plus ancien est celui de Dalzell et Sarofim (1969). Ensuite Lee et Tien (1981), Mullins et Williams (1987) et Habib et Vervisch (1988) ont utilisé ces formules non pas pour les remettre en cause mais plutôt pour chercher les valeurs optimales des constantes employées dans ces relations. Ces auteurs ont souligné la sensibilité des valeurs de n et k aux variations de deux paramètres particuliers, le nombre n_c et la constante g_c des électrons de conduction. Chacune des valeurs moyennes d'indice optique des différents combustibles aux deux longueurs d'onde et pour les deux débits de ventilation ont été utilisées. Nous avons alors fait converger, vers la valeur expérimentale d'indice optique de chacun des combustibles, la valeur d'indice optique calculée par le modèle de dispersion à la longueur d'onde considérée en faisant varier les paramètres n_c et g_c . Ces valeurs sont synthétisées dans le [Tableau 6-10](#).

Tableau 6-10 : Valeurs estimées des constantes n_c et g_c du modèle de dispersion

Combustible	632 nm				1064 nm			
	100 m ³ /h		450 m ³ /h		100 m ³ /h		450 m ³ /h	
	n_c (10 ²⁶)	g_c (10 ¹⁵)	n_c (10 ²⁶)	g_c (10 ¹⁵)	n_c (10 ²⁶)	g_c (10 ¹⁵)	n_c (10 ²⁶)	g_c (10 ¹⁵)
Acétylène	7,18	11,81	1,19	2,26	6,74	8,47	5,30	8,85
Toluène	2,61	1,70	1,91	2,71	1,41	2,13	5,91	9,85
PMMA	9,96	19,60	3,08	6,70	7,39	17,68	7,12	12,61
Paramètre moyen	6,58	11,04	2,06	3,89	5,18	9,43	6,11	10,44
Moyenne	n_c		$4,98 \cdot 10^{26}$		g_c		$8,70 \cdot 10^{15}$	
Dalzell et Sarofim (1969) 300°K	n_c		$4,06 \cdot 10^{27}$		g_c		$6,00 \cdot 10^{15}$	
Lee et Tien (1980) 1450°K	n_c		$4,00 \cdot 10^{25}$		g_c		$1,20 \cdot 10^{15}$	

Les valeurs moyennes obtenues sont comparées dans ce tableau aux valeurs issues des travaux de Dalzell et Sarofim (1969) et de Lee et Tien (1981). Pour le nombre n_c , d'électrons de conduction, on retrouve une valeur plus faible que celle avancée par Dalzell et Sarofim (1969) qui confirme l'hypothèse avancée par Habib et Vervisch (1988) sur l'utilisation d'une valeur proche de celle rencontrée pour le graphite et de l'ordre de 10^{24} - 10^{25} . Nous avons alors utilisé ces constantes afin de comparer le modèle de dispersion avec les résultats expérimentaux. L'évolution de l'indice optique en fonction de la longueur d'onde est représentée sur la [Figure 6-13](#).

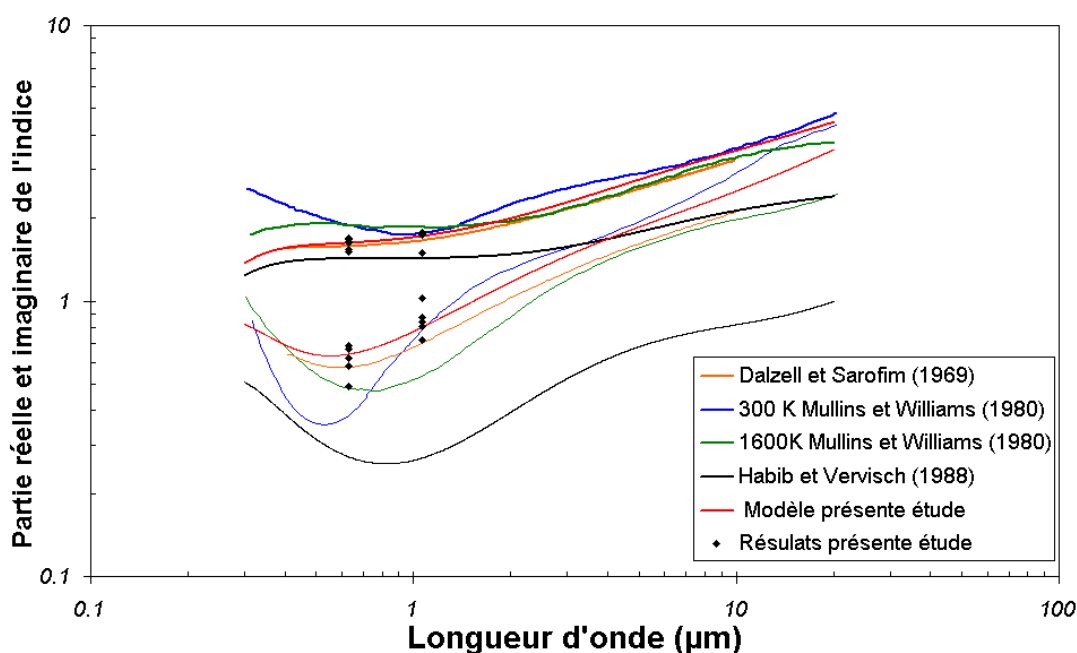


Figure 6-13 : Evolution de l'indice optique en fonction de la longueur d'onde déterminée à partir du modèle de dispersion et des résultats expérimentaux

6.3.2 DETERMINATION DE L'EMISSIVITE TOTALE DES AGREGATS DE SUIE

Pour ne pas alourdir la lecture de ce document, le détail du calcul de l'émissivité est donné dans l'Annexe 7. Le principe repose sur l'estimation, à l'aide du modèle de dispersion précédemment présenté, de l'évolution de l'indice optique des particules de suie en fonction de la longueur d'onde. On peut alors estimer cette évolution sur toute la gamme du rayonnement thermique et pour différentes températures. Dans le modèle de dispersion la température intervient essentiellement sur la valeur de la constante g_c :

$$g_c = \frac{3}{4.l} \sqrt{\frac{3.\pi.k.T}{m^*}} \quad \text{Équation 6-7}$$

Où l représente le libre parcours moyen des électrons de conduction et k la constante de Boltzmann. Nous avons alors utilisé la valeur de g_c obtenue à 300°K pour estimer à l'aide de la relation 6-7 les valeurs de cette constante à différentes températures. L'évolution de l'indice en fonction de la longueur d'onde pour différentes températures est présentée sur la [Figure 6-14](#).

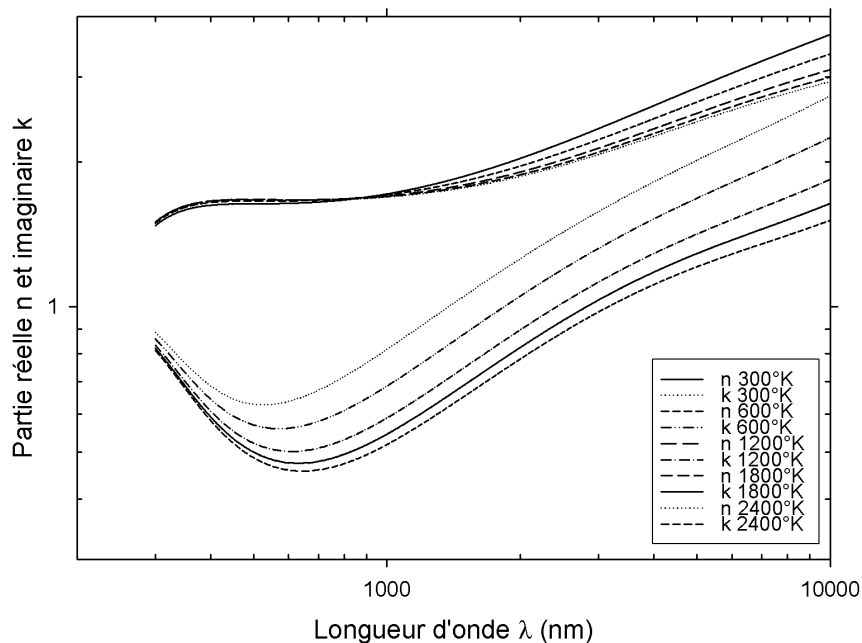


Figure 6-14 : Evolution, estimée à l'aide du modèle de dispersion, de l'indice optique des particules de suie en fonction de la longueur d'onde pour différentes températures

On voit ainsi que la partie réelle est assez peu sensible à la température, à l'inverse la partie imaginaire est fortement influencée par la température et ce sur toute la gamme de longueur d'onde. On peut de plus remarquer que les valeurs des parties réelle et imaginaire de l'indice optique diminuent systématiquement lorsque la température augmente. A partir de ces valeurs d'indice optique on peut, à l'aide de l'équation 6-1, estimer l'évolution du coefficient d'absorption de ces particules en fonction de la longueur d'onde :

$$K_{abs} = \frac{6.\pi.E(m).C_s}{\lambda.\rho_{pp}} \quad \text{Équation 6-8}$$

On peut alors estimer l'émissivité totale des particules de suie à l'aide de la relation détaillée en annexe 7 et de la forme ici représentée dans le cas optiquement mince :

$$\varepsilon = \frac{2\pi h c^2 l}{\sigma T^4} \int_0^{\infty} k_{abs,\lambda} \lambda^{-5} \left(\exp\left(\frac{h.c}{k.\lambda.T}\right) - 1 \right)^{-1} . d\lambda \quad \text{Équation 6-9}$$

Nous présentons sur la [Figure 6-15](#) l'évolution du coefficient d'absorption des particules de suie estimée à l'aide de la fonction d'évolution de l'indice optique en fonction de la longueur d'onde présentée sur la [Figure 6-13](#).

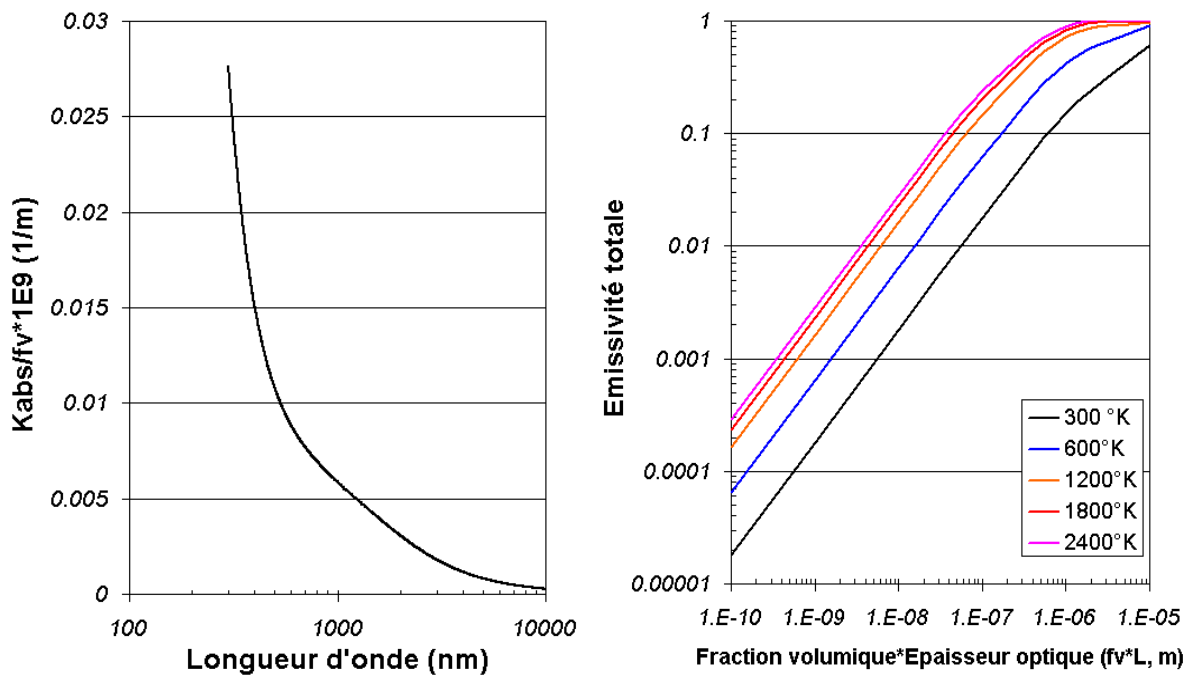


Figure 6-15: Evolution, estimée à partir de l'évolution de l'indice optique présentée en [Figure 6-13](#), du rapport du coefficient d'absorption K_{abs} sur la fraction volumique f_v de suies en fonction de la longueur d'onde (figure de gauche) et évolution de l'émissivité des particules de suie en fonction du produit fraction volumique f_v fois la longueur L de trajet optique (figure de droite)

La table d'émissivité en fonction du produit fraction volumique f_v /longueur de trajet optique L s'avère particulièrement utile lors de la modélisation des transferts radiatifs dans les flammes ou dans des milieux confinés comme dans le cas d'un incendie. On voit ainsi que l'émissivité totale des suies dépend à la fois de ce produit mais aussi de la température des suies et ce dernier point représente une des plus intéressantes perspectives futures de ce travail.

6.4 CONCLUSION SUR LA DETERMINATION DE L'INDICE OPTIQUE DES PARTICULES DE SUIE

Dans cette étude il a été développé un dispositif de détermination des propriétés optiques des particules de suie. Le banc de mesure dénommé EXSCA a été mis en œuvre afin de permettre des mesures dans le spectre visible et infrarouge des longueurs d'onde. Un protocole d'étalonnage du dispositif a été mis au point à l'aide d'un diffuseur de référence. Les propriétés optiques obtenues à l'aide du banc EXSCA sont cohérentes avec les valeurs rencontrées dans la littérature. Tout d'abord, les résultats expérimentaux montrent qu'il existe un lien direct entre l'extinction et la concentration massique des particules, ce qui permet d'établir un coefficient spécifique massique d'extinction de $9,3 \text{ g/m}^2$ à 632 nm et de $5,4 \text{ g/m}^2$ à 1064 nm particulièrement proche de la valeur moyenne introduite par Mulholland et Croarkin (2000) de $8,7 \text{ g/m}^2$ à 633 nm et Newman et Steciak (1987) de $5,6 \text{ g/m}^2$ à 1060 nm.

L'indice optique des particules de suie a ensuite été estimé à partir des coefficients d'extinction et de diffusion "vertical-vertical" et à l'aide d'une méthode d'inversion utilisant les caractéristiques morphologiques et granulométriques présentées dans la partie 4. Les valeurs d'indice obtenues pour les trois combustibles sont très proches les unes des autres et le débit de ventilation n'est pas un paramètre très influent. La faible dispersion des résultats obtenus pourrait s'expliquer par la nature très proche des particules émises par les différents combustibles. L'analyse chimique de ces particules, en particulier le rapport C/H réel de la matière carbonée, n'a pas été réalisée dans ce travail mais cela est sans aucun doute une voie d'analyse pour le futur. Suite à ces essais nous avons déterminé une valeur moyenne de l'indice optique pour les trois combustibles de $1,56 - 0,61.i$ à 632 nm et de $1,71 - 0,86.i$ à 1064 nm.

La connaissance des valeurs d'indice optique permet en principe d'estimer les fractions volumiques de suie à partir de la valeur du coefficient d'absorption. En réalité c'est le coefficient d'extinction qui est facilement mesurable. Mais l'hypothèse d'une diffusion négligeable devant l'absorption, couramment rencontrée dans la littérature, ne s'est pas révélée adaptée à notre étude et elle peut impliquer des différences de l'ordre de 50 % si on compare les valeurs ainsi obtenues avec une mesure qui passe par une détermination de la masse des particules. Dans ce travail la diffusion n'a pas été considérée négligeable et sa contribution a été retranchée au coefficient d'extinction pour obtenir la valeur du coefficient d'absorption. Il est alors apparu que les fractions volumiques calculées à partir de ce coefficient d'absorption sont en bon accord avec les fractions volumiques déduites des concentrations massiques des particules.

Le dernier point de cette étude a porté sur la détermination de l'émissivité totale des particules de suie. Pour cela, un modèle de dispersion, couramment rencontré dans la littérature, a été utilisé afin d'estimer l'évolution de l'indice optique en fonction de la longueur d'onde. Les valeurs expérimentales ont été intégrées à ce modèle de dispersion et les constantes ont alors été ajustées. Nous avons alors pu représenter l'évolution de l'émissivité totale des particules de suie en fonction du produit fraction volumique par longueur de trajet optique. Cet abaque permet ainsi d'estimer l'émissivité de flammes pour une application spécifique où la fraction volumique et la longueur de trajet optique sont connues.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

L'objectif de ce travail est de contribuer à une meilleure connaissance des caractéristiques physiques des particules de suie émises, hors de la flamme, lors d'une hypothétique situation d'incendie dans une installation nucléaire confinée. Les résultats obtenus au cours de cette étude peuvent être utilisés pour le développement et la validation de modèles de colmatage des éléments de filtration mis en oeuvre pour préserver le confinement d'une telle installation. Afin de mener à bien cette étude, notre travail s'est articulé selon quatre phases distinctes de recherche.

La première phase a consisté en une étude bibliographique. Celle-ci a d'abord permis d'identifier les phénomènes de formation des suies dans les flammes de diffusion ainsi que les paramètres les plus influents. Puis elle a porté sur l'établissement des paramètres caractéristiques des particules de suie directement exploitables dans des modèles de filtration ou de sûreté incendie. Au cours de cette étude, une grande disparité des informations obtenues dans les zones des fumées est apparue ce qui nous a amené à développer dans une deuxième phase un dispositif spécifique de production et de caractérisation de ces particules de suie. Une installation, initialement vouée à l'étude du comportement des barrières de filtration en situation d'incendie, a donc été modifiée et une instrumentation spécifique a été mise en oeuvre. Une attention particulière a été portée au dispositif de dilution afin d'assurer la représentativité de nos prélèvements et la validation du dispositif a été menée à l'aide d'un brûleur de référence utilisant l'acétylène comme combustible.

Suite à cette phase de mise en oeuvre du dispositif expérimental, une réflexion a été menée sur l'utilisation et l'interprétation des données apportées par les appareils métrologiques commerciaux généralement employés pour la caractérisation des particules fines, ici les suies. La nécessité d'intégrer la morphologie fractale des agrégats est rapidement apparue. L'analyse en série des réponses des granulomètres ELPI et DMA a permis d'éclaircir les comportements aérodynamique et thermodynamique de tels agrégats et de mieux comprendre les difficultés rencontrées lors de la comparaison des informations apportées par ces deux granulomètres. Ces informations, indispensables à la caractérisation d'agrégats de suie, ont ensuite été utilisées afin d'interpréter les réponses des granulomètres ELPI et SMPS exploités en parallèle. La réponse du SMPS particulièrement sensible au phénomène de charges multiples rencontré lors de l'étude de particules de diamètre de mobilité supérieur à 300 nm a nécessité le développement d'une méthode, spécifique à notre étude, de traitement des données afin de corriger les données du SMPS. L'impact de cette correction s'est révélé important d'un point de vue quantitatif. A l'inverse l'effet de charges multiples n'est pas apparu très influent lorsque seules les informations sur la forme de la distribution granulométrique (diamètre médian, mode, écart-type) étaient souhaitées. Le granulomètre ELPI a ensuite été considéré et le principe de base de fonctionnement de ce dispositif a été discuté. Ainsi, la relation liant le diamètre aérodynamique de l'impacteur au diamètre de Stokes utilisé dans la fonction de charge a été remplacée par la relation liant ce même diamètre aérodynamique au diamètre de mobilité électrique des agrégats. Cette relation, établie expérimentalement au cours de l'analyse en série DMA - ELPI, est directement exploitable dans la fonction de charge de l'ELPI. Le granulomètre ELPI reposant entièrement sur cette relation pour la détermination de la

concentration sur chacun des plateaux d'impaction, l'influence d'une telle modification s'est révélée notable et a grandement amélioré la cohérence des informations apportées par l'ELPI avec les informations fournies par le SMPS et la microbalance TEOM. Suite à cette réflexion sur les différents dispositifs employés dans cette étude, une méthode de détermination de la dimension fractale, à l'aide de ces deux granulomètres placés en parallèle, a été introduite et a montré des résultats proches de ceux obtenus à partir de l'analyse des clichés de microscopie électronique. La principale conclusion de cette seconde phase de l'étude est que l'utilisation de ces appareils, initialement adaptés à l'étude de particules "idéales", pour caractériser des agrégats de morphologie fractale n'est pas anodine et nécessite encore de profondes investigations.

La troisième phase de cette étude a consisté à caractériser les particules de suie émises par différents combustibles dans différentes conditions expérimentales. Trois combustibles ont ainsi été utilisés, un gaz : l'acétylène, un liquide : le toluène et un solide : le PMMA. Une étude préliminaire a été menée sur l'influence de la position du prélèvement sur la ligne de ventilation et peu de disparités ont été observées en fonction des débits de ventilation utilisés qui imposent de très faibles temps de résidence dans l'installation. L'étude s'est alors essentiellement portée sur l'influence des conditions de ventilation sur le taux de production, la morphologie et la granulométrie de ces particules et une seule position a été retenue. Les particules de suie étudiées présentent des diamètres de particules primaires allant de 40 à 70 nm selon le combustible et corrélés avec le taux de production de suie. Les agrégats présentent des distributions largement submicroniques, centrées autour de 200 nm, assez polydispersées s'étalant de 50 à 2000 nm et reflétant les phénomènes d'agglomération présents dans les zones les moins riches de la flamme et dans la zone de fumée. Les distributions granulométriques des particules de suie sont apparues sensibles aux conditions de ventilation. Ainsi les diamètres médians des distributions granulométriques augmentent lorsque le débit de ventilation tandis que l'écart-type correspondant diminue sensiblement. Pour la morphologie enfin on retrouve, pour chacun des combustibles, des dimensions fractales très représentatives des valeurs rencontrées dans la littérature, entre 1,72 et 1,93, et très proches entre les combustibles. La principale conclusion est le rôle fondamental des conditions de ventilation sur la production de particules de suie. En effet il est apparu qu'une augmentation de la richesse (diminution du débit de ventilation) engendrait d'une part une diminution du taux de production pour des richesses inférieures à 0,2 puis engendrait une augmentation de cette production au-delà de cette richesse de 0,2. Suite à ce constat, une étude approfondie des caractéristiques morphologiques des particules de suie a révélé l'influence de cette richesse qui, lorsqu'elle augmente, modifie non pas les caractéristiques morphologiques mais la taille des particules primaires et des agrégats et induit une augmentation systématique de la masse. A l'inverse cette richesse croissante diminue sensiblement le débit de production en nombre d'agrégats, diminution qui pour des richesses inférieures à 0,2 justifie la diminution de la production massique de suie et pour des richesses supérieures à 0,2 est compensée par l'augmentation en masse des agrégats.

La dernière phase de cette étude a consisté en la mise en œuvre d'un dispositif de détermination de l'indice optique des particules de suie à l'aide d'un banc expérimental et d'une méthode d'inversion, basée sur la RDG-FA, utilisant les informations granulométriques et morphologiques présentées dans la troisième phase de ce travail. Le banc optique permet de mesurer les coefficients d'extinction et de diffusion des particules de

suie prélevées après dilution. Une cellule multipassages nous a permis d'effectuer des mesures dans le visible (632 nm) et dans l'infrarouge (1064 nm). La cellule de diffusion a été étalonnée à l'aide de billes de latex dont l'indice optique est connu et dont le coefficient de diffusion est calculé à partir de la distribution granulométrique mesurée par le SMPS et d'un code basé sur la théorie de Mie. Les premiers résultats ont souligné le lien existant entre le coefficient d'extinction et la concentration massique en particules de suie. Cette relation s'est montrée adaptée à chacun des combustibles et une valeur moyenne de coefficient spécifique massique d'extinction a été établie pour chaque longueur d'onde : $9,3 \text{ g/m}^2$ à 632 nm et $5,4 \text{ g/m}^2$ à 1064 nm. Les informations granulométrique et morphologique ont ensuite été intégrées dans la méthode d'inversion et le rapport β du diamètre de giration et du diamètre de mobilité électrique, a été déterminé conduisant à une valeur moyenne de 1,5. Deux conditions de ventilation (100 et 450 m^3/h) ont été retenues pour chacune des deux longueurs d'onde conduisant aux résultats suivants :

- les flammes d'acétylène présentent un indice optique moyen de $1,60 - 0,58.i$ à 632 nm et de $1,76 - 0,95.i$ à 1064 nm. Pour ce combustible les parties réelle et imaginaire semblent être systématiquement plus importantes à 100 m^3/h .
- les flammes de PMMA présentent un indice optique moyen de $1,66 - 0,60.i$ à 632 nm et de $1,74 - 0,78.i$ à 1064 nm.
- les flammes de toluène présentent le comportement le plus singulier. En effet il est difficile dans le cas du toluène de considérer une valeur moyenne d'indice pour les deux conditions de ventilation. En effet les valeurs obtenues à 100 m^3/h sont sensiblement différentes des valeurs obtenues à 450 m^3/h qui apparaissent beaucoup plus cohérentes. Les valeurs d'indice optique de $1,51 - 0,58.i$ à 632 nm et de $1,75 - 0,87.i$ à 1064 nm à 450 m^3/h sont à comparer avec les valeurs obtenues à 100 m^3/h qui sont de $1,35 - 0,69.i$ à 632 nm et de $1,50 - 0,81.i$ à 1064 nm. Cette disparité confirme l'évolution inexplicée de la distribution granulométrique du toluène entre 450 et 100 m^3/h .
- un indice moyen a été établi pour les trois combustibles dans les configurations où les indices se sont révélés particulièrement cohérents, il vient ainsi une valeur d'indice optique moyen de $m = 1,56 - 0,61.i$ à 632 nm et de $m = 1,71 - 0,86.i$ à 1064 nm.

Une étude de sensibilité a été menée afin de souligner l'influence des données d'entrée du programme d'inversion sur la valeur finale d'indice optique. Les paramètres D_f , k_f , D_p , β , K_e et K_w ont été balayés en considérant leurs incertitudes respectives et les résultats montrent la forte sensibilité de la partie imaginaire à ces différents paramètres.

Deux applications directes des valeurs d'indice optique obtenues au cours de cette étude nous ont ensuite permis de conclure sur la fiabilité de ces résultats. Tout d'abord les fractions volumiques des particules de suie ont été calculées de deux manières différentes et comparées. La première manière consiste à utiliser la masse recueillie dans le TEOM et la masse volumique mesurée par immersion, la seconde consiste à retrouver cette valeur à partir de la distribution granulométrique donnée par le SMPS, des données morphologiques issues de l'analyse des clichés de TEM et des mesures optiques. Pour calculer la fraction volumique "optique" le coefficient d'extinction est souvent utilisé dans l'hypothèse d'une diffusion négligeable conduisant à évaluer les coefficients d'extinction et d'absorption. Nous avons montré que cette hypothèse n'est

pas justifiée dans notre cas et que l'utilisation du coefficient d'absorption permet d'obtenir des valeurs des fractions volumiques "optiques" de l'ordre de 15% supérieures seulement aux fractions volumiques "massiques".

La seconde application a consisté en la détermination de l'émissivité totale des particules de suie. Pour cela, les résultats expérimentaux d'indice optique ont été couplés aux relations de dispersions introduites par Dalzell et Sarofim (1969) et Lee et Tien (1981). Les paramètres qui ont été considérés variables sont la constante g_c et le nombre d'électrons n_c de la bande de conduction. A partir de ce modèle de dispersion nous avons alors estimé l'évolution du coefficient d'absorption spectrale K_{abs} en fonction de la longueur d'onde. Enfin à l'aide de cette fonction d'évolution nous avons établi une abaque liant l'émissivité totale des particules de suie au produit fraction volumique des suies fois longueur du trajet optique L . Les valeurs obtenues se sont alors montrées en accord avec les résultats issus des travaux de Dalzell et Sarofim (1969) et Lee et Tien (1981).

Les perspectives de ce travail sont nombreuses, tout d'abord sur la partie métrologie des aérosols, les dispositifs granulométriques étant actuellement fondés sur la charge électrique des particules il serait intéressant d'étudier la charge d'agrégats dont la morphologie fractale est très différente de celle d'une sphère. A ce jour la communauté scientifique est divisée sur ce point et une étude expérimentale sur l'influence de la morphologie des particules sur les phénomènes permettrait soit de justifier l'emploi des théories de charge des particules sphériques soit d'introduire une nouvelle approche intégrant la morphologie singulière de ces agrégats. On peut de plus envisager de poursuivre les travaux débutés au cours de cette étude sur l'estimation de la masse volumique des agrégats et surtout sur le fait d'étendre à des agrégats plus massifs (> 500 nm) la fonction d'évolution de cette masse volumique effective, l'utilisation d'un dispositif direct de détermination de la masse des agrégats sélectionnés de type Aerosol Particle Mass analyser (Ehara *et al.*, 1996) pourrait permettre de s'affranchir de l'analyse des données du granulomètre ELPI.

Pour l'analyse des caractéristiques physiques des particules de suie il serait intéressant d'étendre la gamme de richesse étudiée pour les différents combustibles. On peut envisager des mesures sur cône calorimètre afin d'effectuer une étude plus analytique et couvrir à la fois la gamme des richesses très inférieures, proches et supérieures à la stœchiométrie. La transposition de ces informations à des essais à échelle réelle représente aussi une perspective non négligeable et la mise en œuvre du protocole expérimental développé lors de cette étude sur une installation de plus grande échelle est envisageable. L'effet d'échelle sur le facteur d'émission et sur la granulométrie des particules émises est à étudier.

La détermination des propriétés optiques des particules de suie reste encore un domaine de recherche. La méthode développée ici possède un potentiel certain cependant il serait utile d'étendre la gamme de longueur d'onde étudiée. Ainsi, à partir de la cellule multi-passages qui a fait ses preuves dans le début du spectre infrarouge (1064 nm), on peut envisager des mesures à plus grandes longueurs d'onde et ce afin de réduire les degrés de liberté du modèle de dispersion et resserrer l'étau sur les paramètres les plus sensibles de ce modèle. Pour cela il convient de vérifier les valeurs du paramètre β et son évolution en menant une comparaison entre le diamètre de mobilité électrique, sélectionné à l'aide d'un DMA, et le diamètre de giration mesuré par analyse de clichés de microscopie électronique. Il serait aussi utile de lier ce rapport β à la dimension fractale des agrégats afin d'éliminer cette inconnue dans la méthode d'inversion. Enfin l'étude de l'évolution très mal connue de l'indice en fonction de la température permettrait de réduire les incertitudes inhérentes aux constantes du modèle de dispersion et de mieux approcher les conditions réelles d'incendie.

ANNEXES

ANNEXE 1 : ESTIMATION DES PARAMETRES PHYSIQUES DES FLAMMES ETUDIEES

La connaissance des grandeurs physiques des flammes est un point crucial dans la compréhension des phénomènes d'incendie. Ainsi on cherchera systématiquement à relier les conditions expérimentales de notre étude (perte de masse de combustible, débit d'air de ventilation, température) à des grandeurs physiques de la flamme (longueur de flamme, temps de résidence, nombre de Froude, richesse). Pour déterminer ces paramètres deux approches sont possibles. Une première à partir du taux de dégagement de chaleur établie par Zukoski et la seconde en déterminant le nombre de Froude de la flamme dite "approche de Delichatsios". Nous présentons ici les approches généralement employées pour déterminer les paramètres introduits dans le paragraphe 2.3.

Définition du taux de dégagement de chaleur adimensionné

Dans les deux approches précédemment citées il est nécessaire de calculer le taux de dégagement de chaleur adimensionné \dot{Q}^* . Celui-ci se définit à partir du taux de dégagement de chaleur \dot{Q}_f du combustible f qui est tel que :

$$\dot{Q}_f^* = \dot{m}_f \cdot \Delta H_{cf} \quad \text{Equation A1-1}$$

Avec :

\dot{m}_f : débit de combustible (kg/s)

ΔH_{cf} : chaleur de combustion de f

Le débit de combustible dans notre étude est établi soit à partir du débit d'acétylène soit à partir de la perte de masse du combustible liquide et solide mesuré à l'aide de la balance. On peut alors définir un taux de dégagement de chaleur adimensionné \dot{Q}^* tel que :

$$\dot{Q}^* = \frac{\dot{Q}_f^*}{\rho_\infty C_{p\infty} T_\infty g^{1/2} d^{5/2}} \quad \text{Equation A1-2}$$

Avec :

ρ_∞ : masse volumique de l'air ambiant (kg/m³)

$C_{p\infty}$: capacité calorifique de l'air ambiant (kJ/kg)

T_∞ : température ambiante (°K)

g : accélération de la pesanteur (m/s²)

d : diamètre du brûleur (m)

Approche de Zukoski

Cette approche issue des travaux de Zukoski et portant sur de nombreuses flammes a été utilisée dans de nombreuses études pour caractériser les flammes de diffusion (Köylü *et al.*, 1991a). Cette approche se base sur le taux de dégagement de chaleur adimensionné \dot{Q}^* . Ainsi, expérimentalement et à partir de la définition de Zukoski *et al.* (1984), on peut établir des relations empiriques entre longueur de flamme, temps de résidence et taux de dégagement de chaleur et définir alors deux domaines de taux de dégagement de chaleur adimensionné. Les résultats de cette étude sont présentés sur la [Figure A1-1](#).

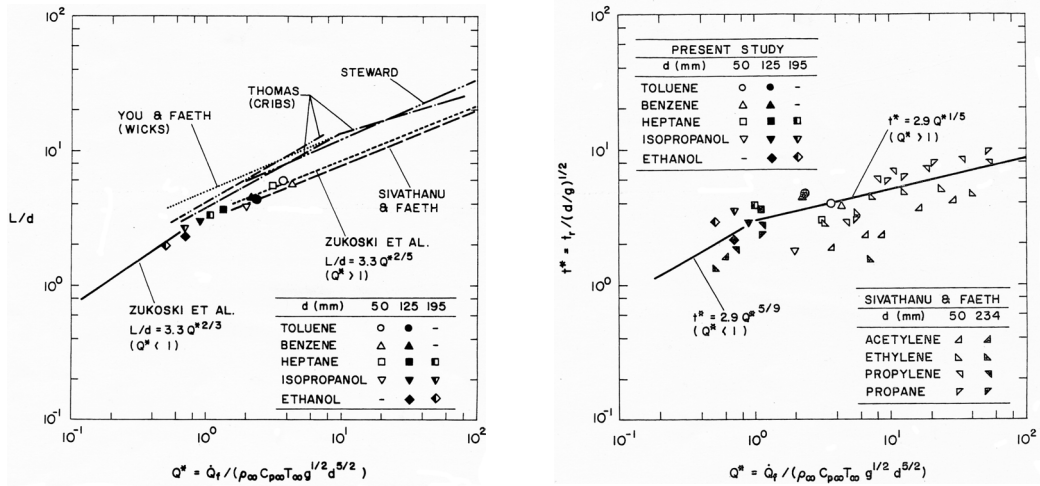


Figure A1-1 : Evolution de la longueur de flamme et du temps de résidence en fonction du taux de dégagement adimensionné (Köylü *et al.*, 1991a)

Empiriquement on définit la longueur de flamme L :

$$Q^* < 1 : \frac{L}{d} = 3,3 \cdot Q^{* 2/3} \quad \text{Equation A1-3}$$

$$Q^* \geq 1 : \frac{L}{d} = 3,3 \cdot Q^{* 2/5} \quad \text{Equation A1-4}$$

Et le temps de résidence adimensionné t^* :

$$Q^* < 1 : t = 2,9 \cdot Q^{* 5/9} \quad \text{Equation A1-5}$$

$$Q^* \geq 1 : t = 2,9 \cdot Q^{* 1/5} \quad \text{Equation A1-6}$$

Avec :

$$t^* = t_r \cdot \left(\frac{g}{d} \right)^{1/2}$$

t^* : temps de résidence adimensionné et t_r : temps de résidence (s) Equation A1-7

Approche de Delichatsios

Pour Delichatsios (1995) la définition du taux de dégagement de chaleur est la même mais est cette fois utilisée pour calculer un nombre de Froude Fr_f de la flamme :

$$Fr_f = \frac{Q^*}{\left(\frac{\Delta H_{cf}}{(S+1)C_{p\infty}T_\infty} \right)^{3/2} \cdot (X_A - X_R)^{1/2}} \quad \text{Equation A1-8}$$

Avec :

- Fr_f : nombre de Froude
- ΔH_{cf} : chaleur de combustion de f (kJ/kg)
- S : rapport massique stœchiométrique air / combustible
- $C_{p\infty}$: capacité calorifique de l'air ambiant (kJ/kg)
- T_{∞} : température ambiante (K)
- X_A : efficacité de combustion, rapport entre énergie libérée au cours de la combustion sur l'énergie totale disponible dans le combustible
- X_R : fraction radiative, part du taux de dégagement de chaleur théorique perdu sous forme radiative

A partir de ce nombre de Froude on peut alors calculer une longueur de flamme L qui est telle que :

$$- Fr_f \leq 8,6 \cdot 10^{-3} \quad : \quad \frac{L}{d} = 1,35 \cdot 10^4 \cdot Fr_f^2 \quad (29)$$

$$- 8,6 \cdot 10^{-3} \leq Fr_f \leq 10 \cdot 10^{-2} \quad : \quad \frac{L}{d} = 22,54 \cdot Fr_f^{2/3} \quad (30)$$

$$- Fr_f > 10 \cdot 10^{-2} \quad : \quad \frac{L}{d} = 12,52 \cdot Fr_f^{2/5} \quad (31)$$

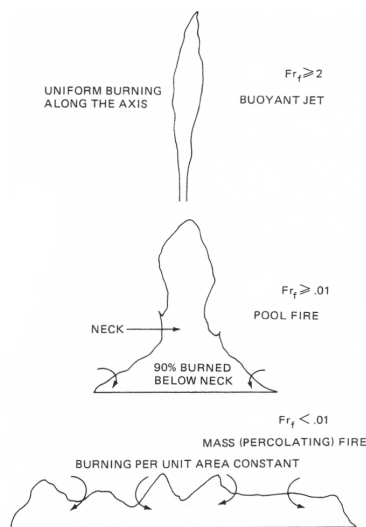


Figure A1-2 : Caractéristiques physiques des types de flamme en fonction de leur nombre de Froude

Le nombre de Froude représentant l'influence de la gravité sur la flamme on peut alors relier ce nombre à la forme de la flamme. Cette relation est représentée sur la [Figure A1-2](#) ou trois types distincts de flammes sont représentés.

ANNEXE 2 : PRESENTATION DE L'ETUDE DE REFERENCE

Les travaux menés par Faeth *et al.* entre 1990 et 2000 (Krishnan *et al.*, 2000 et 2001, Sivathanu et Faeth, 1990, Köylü et Faeth, 1992-1997) sur la caractérisation optiques des particules de suie émises par des flammes d'hydrocarbures ayant représenté dans notre travail une étude de référence nous effectuons dans cette partie une description générale de ce travail. Nous présentons sur la [Figure A2-1](#) le dispositif expérimental employé par Köylü *et al.* (1994). Par rapport à notre étude, la combustion a lieu en milieu totalement ouvert dans une enceinte large (2,4 x 2,4 x 3,6 m de haut) et la hotte d'évacuation n'est utilisée que pour évacuer les fumées sans imposer de débit de ventilation particulier dans le foyer. Les brûleurs et les combustibles sont en revanche très proche de notre étude (flamme de diffusion turbulente d'acétylène et de toluène). Les mesures optiques sont effectuées in-situ et les prélèvements pour analyse morphologique sont menés à l'aide d'une sonde par thermophorèse.

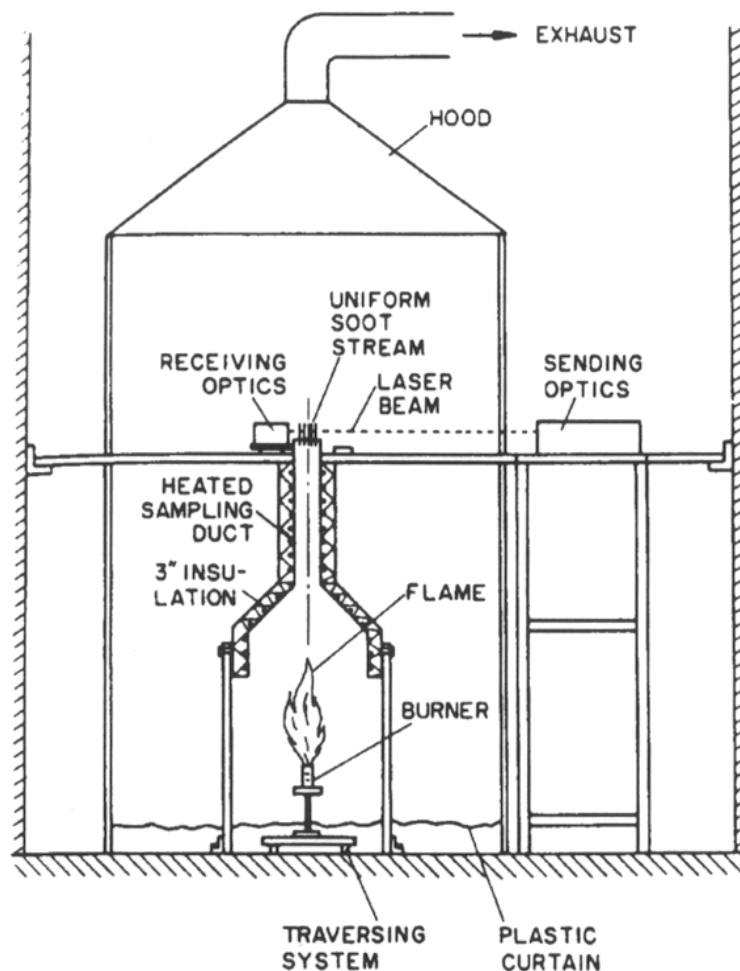


Figure A2-1 : Dispositif expérimental employé par Köylü et Faeth (1992)

Les résultats présentés portent sur la morphologie, les propriétés optiques et les facteurs d'émissions de particule de suie et de gaz. Le [Tableau A2-1](#) synthétise l'ensemble des informations portant sur la caractérisation des particules de suie émises par la combustion d'acétylène et de toluène, on retrouve ainsi le

débit de combustible Q_c , le diamètre des particules primaires D_{pp} , le nombre moyen de particules primaires par agrégat N_p , la dimension fractale D_f ainsi que le facteur d'émission de suie η_s .

Tableau A2-1 : Synthèse des données issues de l'étude de Köylü *et al.* (1991 - 1997)

Combustible	Q_c (L/min)	D_{pp} (nm)	N_p	D_f	η_s (kg suies/kg Combustible)
Acétylène	0,2 - 20	47	417	1,79	0,19
Toluène	0,1 - 1,0	51	526	1,73	0,16

Le principal intérêt des travaux de Köylü *et al.* étant de nous apporter des points de comparaison à la fois pour la morphologie des particules de suie et à la fois pour l'indice de réfraction des particules de suie issues de la combustion d'acétylène et de toluène, nous représentons, sur la Figure A2-2, l'évolution de cet indice en fonction de la longueur d'onde et issue des travaux de Krishnan et Faeth (2000).

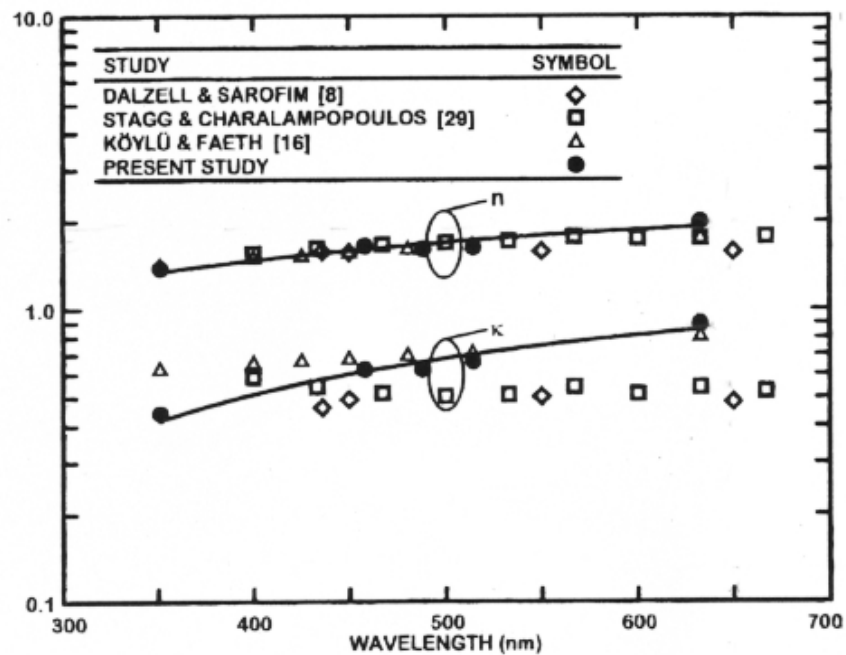


Figure A2-2 : Partie réelle et imaginaire de l'indice en fonction de la longueur d'onde (Krishnan et Faeth, 2000).

Ces résultats, obtenus par mesure des coefficients d'extinction et de diffusion des agrégats de suie, ont souligné des valeurs d'indice compris entre $m = 1,38 - 0,44.i$ pour $\lambda = 351,2$ nm et $m = 1,99 - 0,89.i$ pour $\lambda = 632,8$ nm.

ANNEXE 3 : DONNEES DISPONIBLES SUR LA COMBUSTION DU PMMA

Notre étude portant sur la combustion d'un plexiglas présent dans les installations nucléaires nous effectuons dans ce paragraphe une synthèse des informations bibliographiques concernant la combustion du PolyMethyl Methacrylate (PMMA). Très peu d'études sont disponibles sur la granulométrie et la morphologie de particules de suie issues de la combustion de polymères comme le PMMA. Ainsi le travail de Shemwell et Levendis (2000) présente des distributions granulométriques massique obtenues à l'aide d'impacteur ANDERSEN (Figure A3-1).

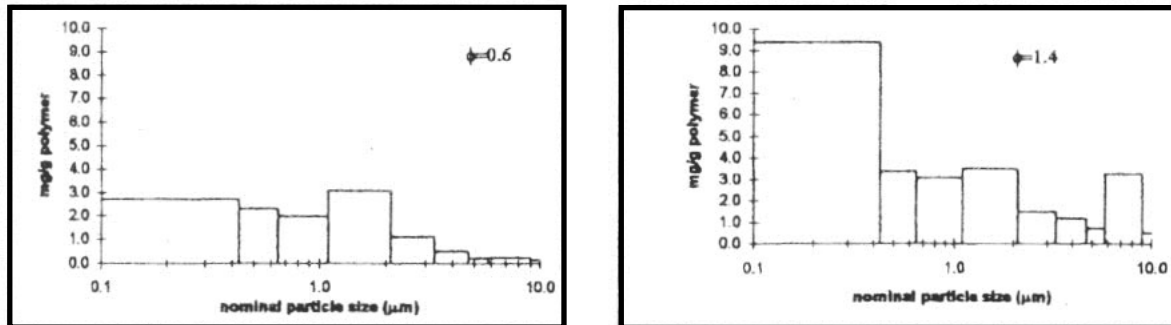


Figure A2-1 : Distribution granulométrique massique de suie PMMA (Shemwell et Levendis, 2000)

On retrouve ainsi une distribution massique centré autour du micromètre et étant faiblement influencé par la richesse du milieu du fait de la présence d'oxygène dans la composition du PMMA ($C_5H_8O_2$). Cette faible influence de la richesse à de plus été souligné par Tewarson (1993) qui classe le PMMA comme étant le moins bon producteur de suie (de l'ordre de 0,02 kg de suies par kg de carbone consommé) en comparaison du nylon, du PolyPropylène PP, du PolyÉthylène PE, du bois et du PolyStyrène PS (Figure A3-2).

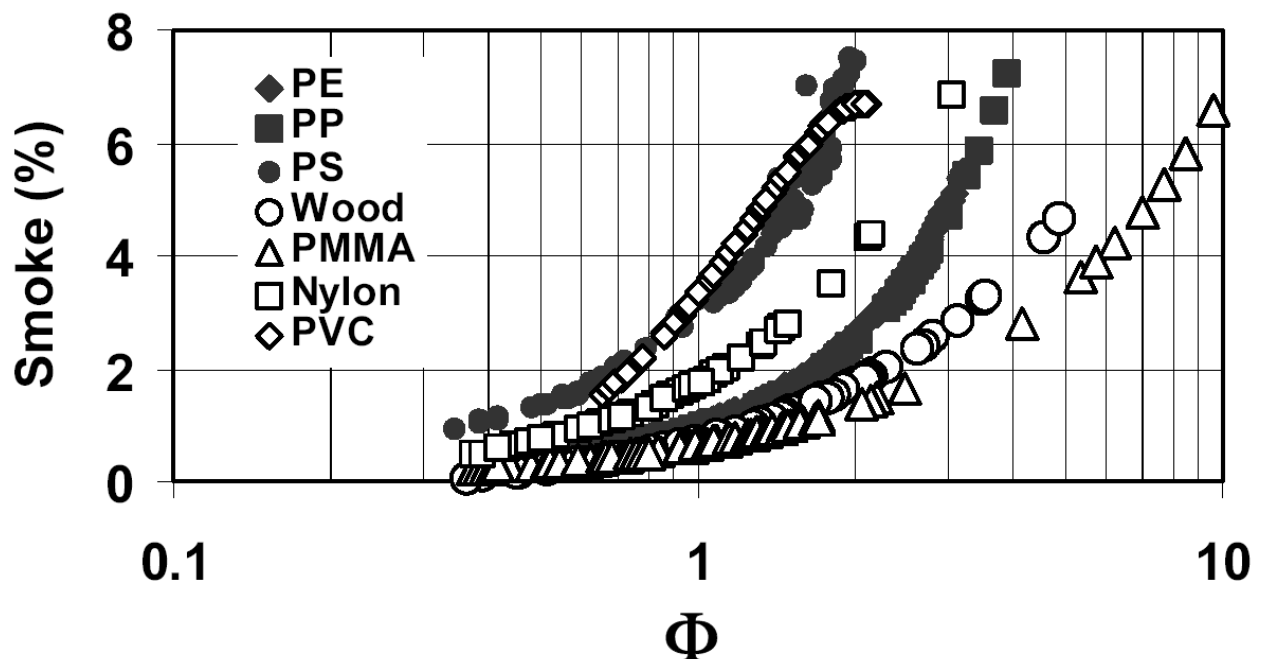


Figure A3-2 : Concentration en suie en fonction de la richesse globale (Tewarson, 2003)

ANNEXE 4 : DETERMINATION DE LA MASSE VOLUMIQUE DES PARTICULES PRIMAIRES DES AGREGATS DE SUIE

La connaissance de la masse volumique des particules primaires de suie est un point crucial lorsque l'on souhaite déterminer des fractions volumiques à partir de pesées et les comparer aux fractions volumiques déterminées à l'aide de dispositifs optiques. De nombreuses études ont visé à mesurer les masses volumiques et nous présentons les données issues de la littérature ainsi que les conditions de production des suies associées à la méthode employée dans le [Tableau A4-1](#).

Tableau A4-1 : Données bibliographiques sur la masse volumique des particules de suie

Référence	Combustible	Conditions	Méthode	Valeur
Newman & Steciak	Various fuels	Overventilated fire	Extinction	1,1 – 1,3 g/cm ³
Roessler & Faxvog	Acetylene	Overventilated fire	Extinction	1,3 g/cm ³
Choi & al	Acetylene	Premixed flame	Helium pycnometry	1,7 – 1,8 g/cm ³
Wu et al	Acetylene-Toluene	Still air fire	Helium pycnometry	1,87 – 1,9 g/cm ³
Koylu & al	Acetylene	Still air fire	Helium pycnometry	1,8 – 1,9 g/cm ³

Protocole de mesure de la masse volumique

Cette détermination consiste à mesurer le déplacement d'un liquide lors de l'immersion d'une masse connue de particules. On mesure ainsi la poussée d'Archimède induite par la masse connue de particules et on établit alors une relation directe entre cette masse et le volume correspondant au déplacement du liquide. Un schéma descriptif du protocole de mesure de la masse volumique est présenté en [Figure A4-1](#).

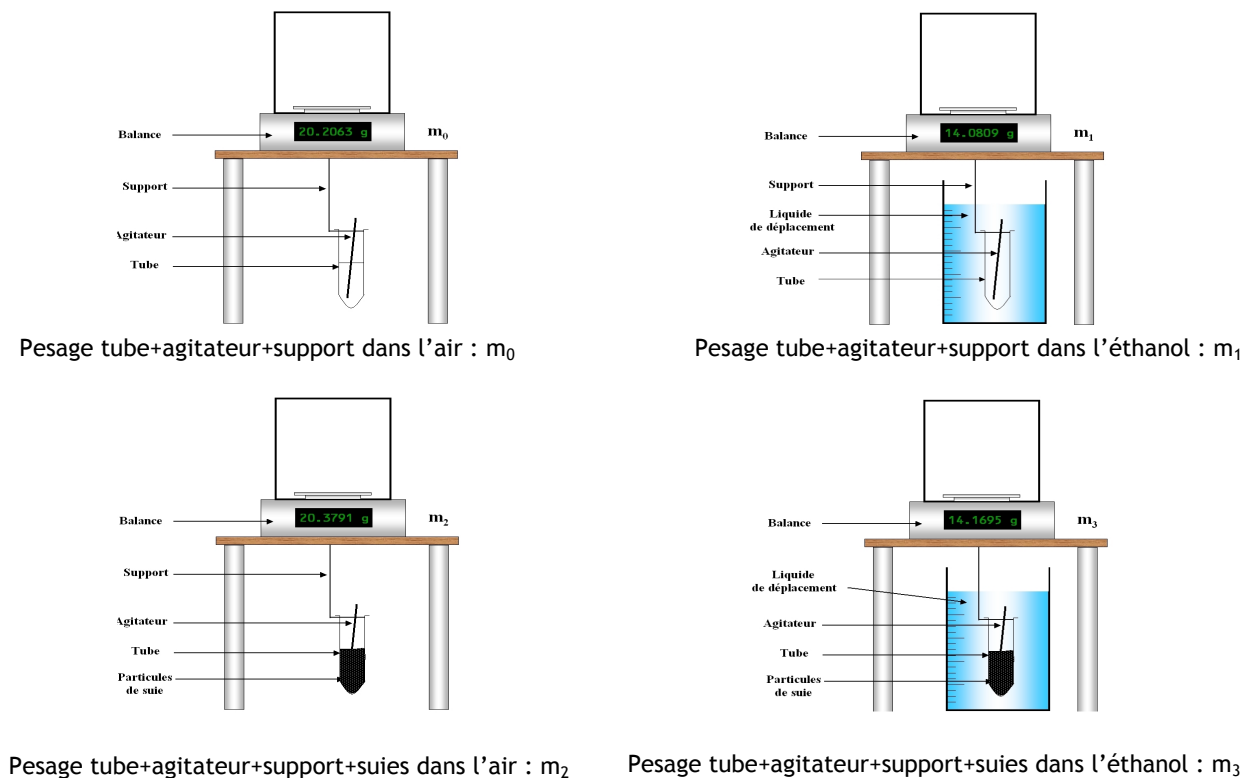


Figure A4-1 : Protocole de détermination de la masse volumique des particules

On trouve quatre phases de pesées : deux dans l'air et deux dans le liquide de déplacement. Les deux premières pesées portent sur le tube plus l'agitateur et le support et les deux dernières mesures concernent cet ensemble plus la masse de particules de suie. Les deux mesures dans l'air nous permettent de déterminer la masse de particules de suie analysée et les deux mesures dans le liquide de déplacement le volume correspondant. Le montage expérimental est présenté sur la [Figure A4-2](#).

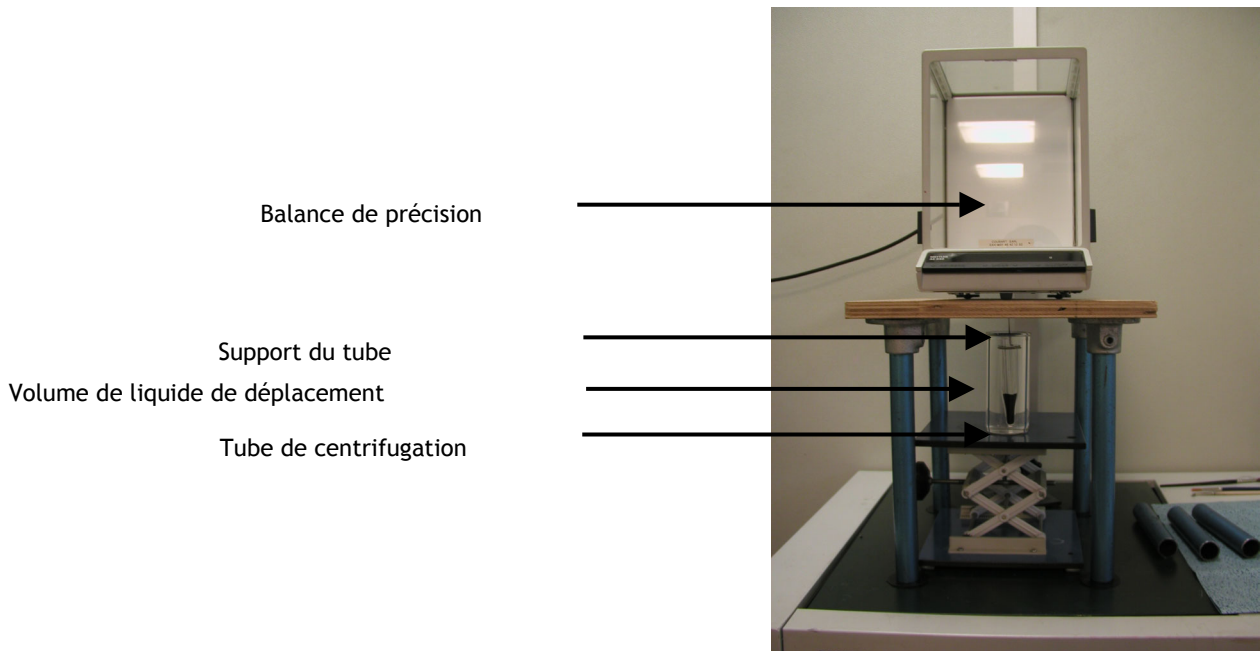


Figure A4-2 : Montage expérimental de mesure de masse volumique

La [Figure A4-3](#) présente quant à elle le tube contenant l'échantillon de particules de suie après centrifugation, on voit alors les deux phases distinctes ; le volume de particules à la base du tube et le volume de liquide de déplacement dans la partie supérieure du tube.

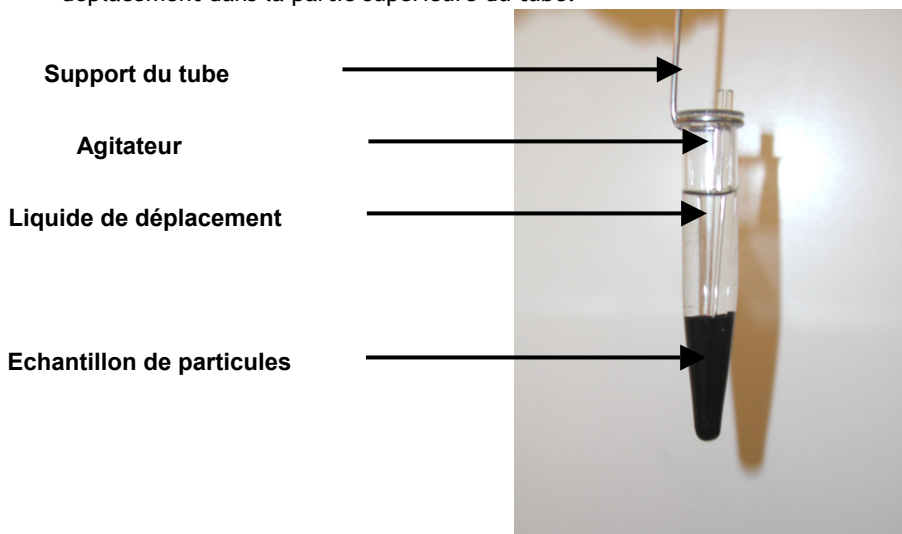


Figure A4-3 : Tube contenant l'échantillon après centrifugation

La principale difficulté dans la mesure de masse volumique de poudre est de compacter le prélèvement. En effet, dans le cas de poudres mais aussi pour des agrégats de suie, les vides interstitiels sont conséquents et il convient de compacter au maximum le prélèvement afin de supprimer le plus possible ces vides. Pour cela nous avons effectué au cours de la mesure une centrifugation de l'échantillon à 3000 tours/min pendant 15 minutes. Au cours de la dernière pesée dans le liquide de déplacement on effectue une mesure de la température afin de considérer la masse volumique du liquide de déplacement à la température de pesée. Le protocole de mesure de la masse volumique se déroule alors en 10 étapes distinctes :

- pesage du tube à essai avec l'agitateur et le support métallique : m_0
- immersion de l'ensemble tube + agitateur + support dans le liquide de déplacement
- pesage tube + agitateur + support dans le volume de liquide de déplacement : m_1
- séchage de l'ensemble tube + agitateur + support
- remplissage à la moitié du tube avec des particules de suie
- pesage de l'ensemble tube + agitateur + support + particules de suie : m_2
- remplissage au $\frac{3}{4}$ du tube avec le liquide de déplacement
- centrifugation pendant 15 minutes de l'échantillon à 3000 tours/min
- immersion de l'ensemble tube + agitateur + support + particules de suie
- pesage de l'ensemble dans le liquide de déplacement : m_3

Afin d'obtenir une mesure fiable de la masse volumique des précautions sont à considérer et tout particulièrement lorsque l'on souhaite déterminer la masse volumique de particules de suie essentiellement composées de carbone amorphe. La principale précaution porte sur le liquide de déplacement employé. En effet lors des premiers essais menés avec de l'eau comme liquide de déplacement nous n'avons pas réussi à former deux phases, une de particules de suie et une de liquide de déplacement, et nous observions une couche d'agrégats au-dessus la surface du liquide. Cette couche lors de l'immersion se trouve alors dans le volume d'immersion et fausse la mesure de masse correspondante. Suite à ces essais préliminaires nous avons porté notre choix sur un autre liquide de déplacement : l'éthanol. Ce liquide de masse volumique $0,791 \text{ g/cm}^3$ à 20°C nous a alors permis de clairement isoler l'échantillon de suies au fond du tube après centrifugation et de former ainsi un volume compact de particules de suie exempt de vide. On peut alors définir la masse m_3 pesée dans le liquide de déplacement :

$$m_3 = m_1 + m_{\text{suies}} - V_{\text{suies}} \cdot \rho_{\text{éthanol}} \quad \text{Equation A4-1}$$

avec :

- $m_{\text{suies}} = m_2 - m_0$: masse de particules de suies (g)
- V_{suies} : volume de particules de suie (cm^3)
- $\rho_{\text{éthanol}}$: masse volumique de l'éthanol à la température de pesée (g/cm^3)

Le volume des particules de suie se définit alors tel que :

$$V_{suies} = \frac{m_1 + m_{suies} - m_3}{\rho_{ethanol}} = \frac{m_1 - m_3 + m_2 - m_0}{\rho_{ethanol}} \quad \text{Equation A4-2}$$

On rappelle la définition de la masse volumique des particules de suie qui est telle que :

$$\rho_{suies} = \frac{m_{suies}}{V_{suies}} \quad \text{Equation A4-3}$$

la masse volumique se définit alors à partir des pesées effectuées lors de la mesure, on a ainsi :

$$\rho_{suies} = \frac{\rho_{ethanol} \cdot (m_2 - m_0)}{(m_2 - m_0) - (m_3 - m_1)} \quad \text{Equation A4-4}$$

On peut donc à partir de pesées successives déterminer la masse volumique des particules primaires de suie. Malgré le fait que cette méthode soit issue d'une norme nous avons souhaité valider ce protocole sur des particules de masse volumique connue. Pour cela deux poudres ont été utilisées : une poudre d'oxyde d'alumine Al_2O_3 et de la poudre de billes de verre. Nous avons utilisé le protocole présenté pour les particules de suie et le même liquide de déplacement : l'éthanol. Pour chacune des poudres trois mesures de masse volumique ont été effectuées afin de souligner la reproductibilité de cette mesure et d'obtenir une valeur moyenne de masse volumique associée à un écart-type induit par la mesure. Les résultats de cette étude préliminaire sont présentées dans le [Tableau A4-2](#).

Tableau A4-2 : Résultats de la validation de la méthode de détermination de la masse volumique

Poudre	Mesure 1	Mesure 2	Mesure 3	Moyenne	Référence	Ecart %
Al_2O_3	3,93	3,89	3,89	3,90	3,95	1 %
Verre	2,42	2,35	2,33	2,37	2,5	5

On voit à travers ce tableau que la méthode de détermination de la masse volumique expérimentale est précise à 5 % près et que celle-ci est connue à +/- 0,10 g/cm³.

ANNEXE 5 : DISTRIBUTIONS GRANULOMETRIQUE DES PARTICULES PRIMAIRES ET MORPHOLOGIE DES AGREGATS

Les distributions granulométriques des particules primaires des agrégats de suie produit par les trois combustibles pour différentes conditions de ventilation ont été obtenues par détermination directe sur les clichés de microscopie électronique. Une distribution normale a été systématiquement appliquée aux distributions ainsi obtenues et nous a permis d'estimer le diamètre de particules primaires le plus probable.

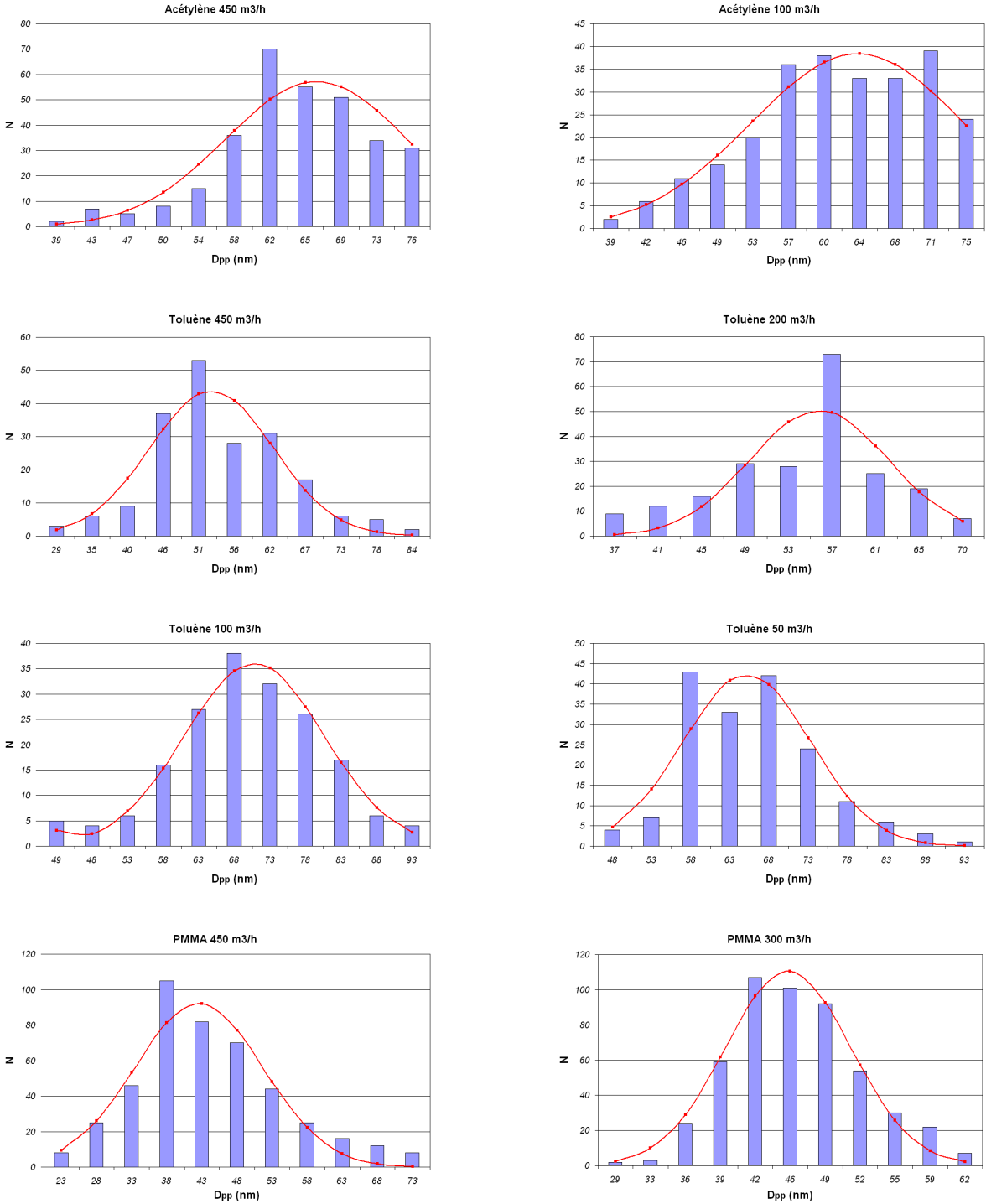


Figure A5-1 : Granulométries de particules primaires d'acétylène, de toluène et de PMMA

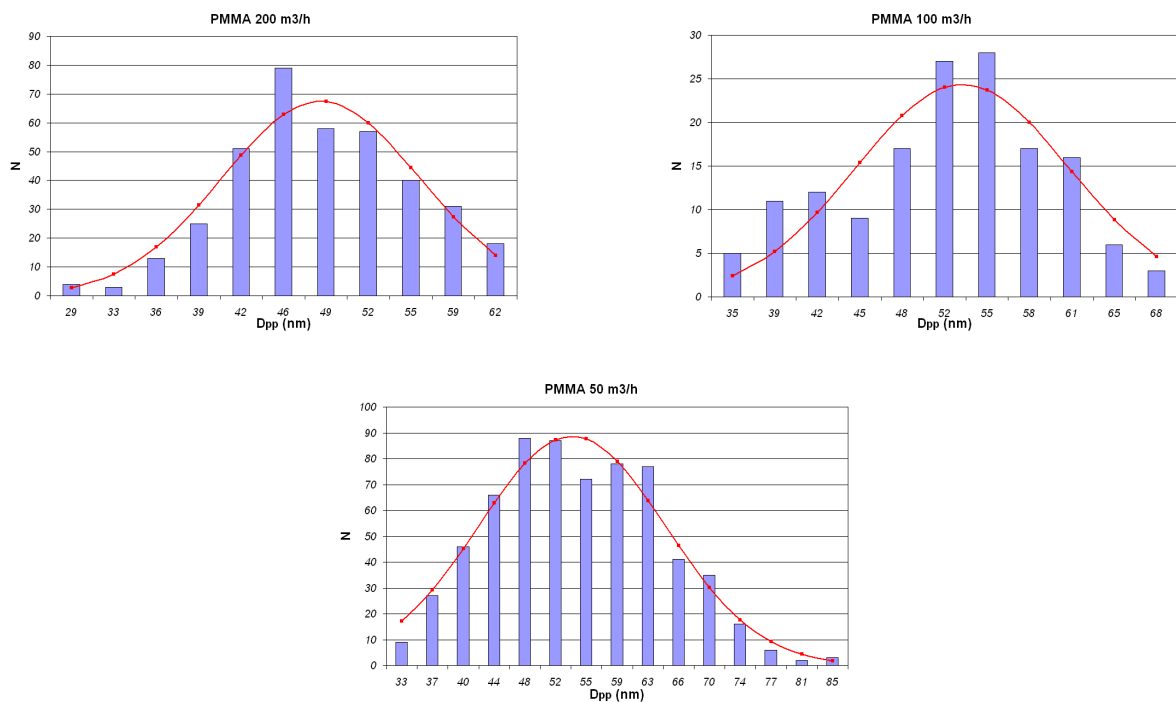


Figure A5-2 : Granulométries des particules primaires de PMMA

Tableau A5-1 : Synthèse des propriétés morphologiques des particules de suie

Debit (m3/h)	ACETYLENE				TOLUENE				PMMA			
	Φ	D _{pp} (nm)	D _f	k _f	Φ	D _{pp} (nm)	D _f	k _f	Φ	D _{pp} (nm)	D _f	k _f
450	0,09	66	1,85	2,31	0,013	52	1,86	2,89	0,063	42	1,78	2,84
300	X	X	X	X	X	X	X	X	0,091	45	X	X
200	X	X	X	X	0,035	56	1,75	2,04	0,118	48	1,76	2,66
100	0,041	64	1,93	1,68	0,062	65	1,81	2,62	0,228	53	1,72	2,97
50	X	X	X	X	0,140	70	1,73	2,66	0,489	54	1,74	2,63

ANNEXE 6 : EVOLUTION DES FONCTIONS E(M) ET F(M) EN FONCTION DE LA PARTIE REELLE ET IMAGINAIRE DE L'INDICE OPTIQUE

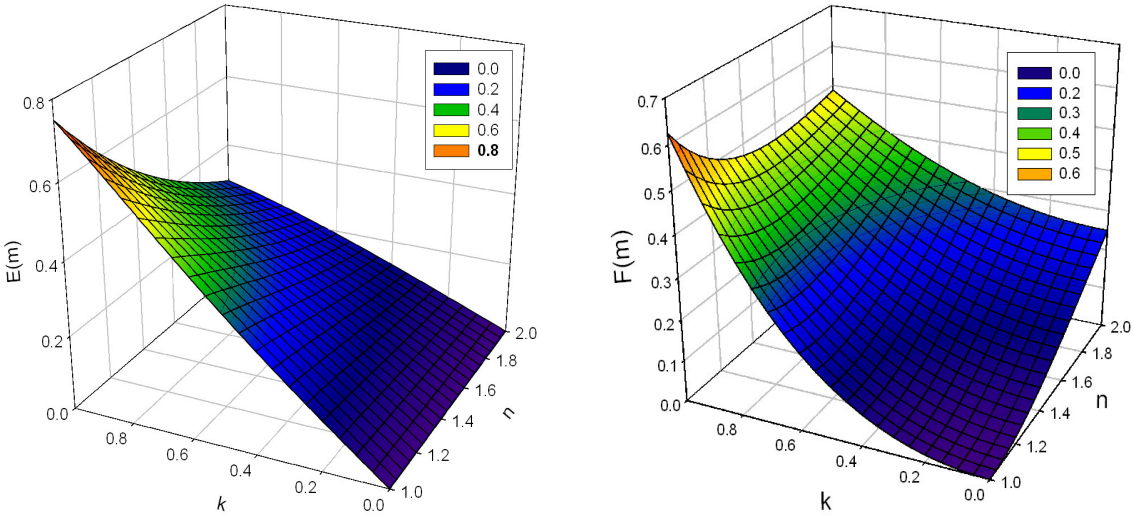


Figure A6-1 : Evolution de la fonction E(m) et F(m) en fonction de la partie réelle et imaginaire de l'indice optique

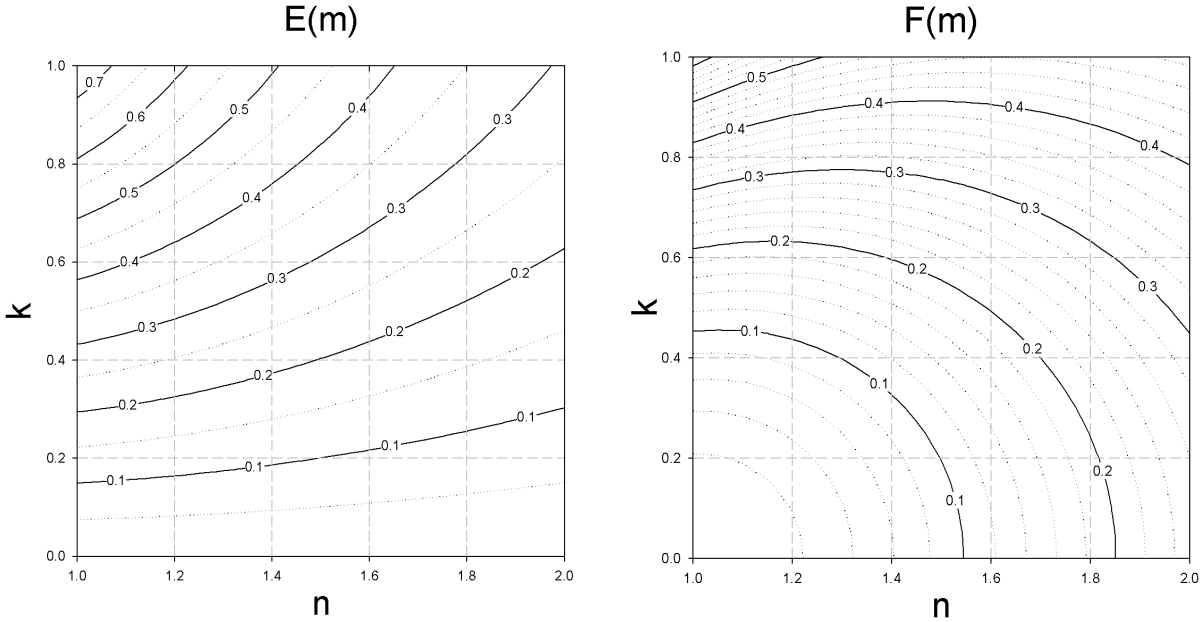


Figure A6-2 : Evolution de la fonction E(m) et F(m) en fonction de la partie réelle et imaginaire de l'indice optique

ANNEXE 7 : DETERMINATION DE L'EMISSIVITE TOTALE

Afin d'introduire la notion d'émissivité il convient de définir les grandeurs utilisées dans les calculs radiatifs. Considérons pour cela un élément de surface dS suffisant petit pour que l'on puisse admettre que la température est uniforme et l'état de surface identique en chaque point de cet élément dS . Cette surface dS émet un rayonnement dans tout l'espace que l'on définit généralement à l'aide de sa luminance spectrale dans un angle solide donnée $L_{\lambda,T}$ dépendant de la longueur d'onde λ , de la température T et de la nature du matériau constituant le solide et s'exprimant généralement en watt par mètre carré par micromètre par stéradian ($W.m^{-2}.\mu m^{-1}.st^{-1}$). Cette luminance correspond donc à la puissance radiative transportée à partir de cette surface dans un angle solide donné et pour un corps noir elle prend la forme :

$$L_{\lambda,T}^0 = \frac{2hc^2\lambda^{-5}}{\exp\left(\frac{hc}{k\lambda T}\right) - 1} \quad \text{Equation A7-1}$$

Avec :

h = constante de Planck ($6,625.10^{-34}$ J.s)

k = constante de Boltzmann ($1,38.10^{-23}$ J.K)

c = vitesse de la lumière dans le vide (3.10^8 m/s)

Si l'émission est isotrope on peut, à partir de cette luminance spectrale, introduire l'émittance spectrale de la surface dS à l'aide de loi de Lambert :

$$M_{\lambda,T} = \pi . L_{\lambda,T} \quad \text{Equation A7-2}$$

Cette émittance correspond au flux émis par la surface dS dans le plan hémisphérique et pour le corps noir nous avons alors :

$$M_{\lambda,T}^0 = \frac{2\pi hc^2\lambda^{-5}}{\exp\left(\frac{hc}{k\lambda T}\right) - 1} \quad \text{Equation A7-3}$$

A partir de cette définition de l'émittance spectrale du corps noir on retrouve la loi de Stefan qui établit l'émittance totale du corps noir :

$$M_T^0 = \int_0^{\infty} \pi . L_{\lambda,T}^0 . d\lambda = \sigma T^4 \quad \text{Equation A7-4}$$

Avec σ = constante de Stefan ($5,67.10^{-8}$ W.m⁻².K⁴).

L'émissivité spectrale de la surface dS correspond alors au rapport entre l'émittance spectrale de cette surface dS sur l'émittance spectrale du corps noir :

$$\varepsilon_{\lambda} = \frac{M_{\lambda,T}}{M_{\lambda,T}^0} \quad \text{Equation A7-5}$$

Et l'émissivité totale est telle que :

$$\varepsilon = \frac{M_T}{M_T^0} = \frac{\int_0^{\infty} M_{\lambda,T} . d\lambda}{\int_0^{\infty} M_{\lambda,T}^0 . d\lambda} = \frac{\int_0^{\infty} \varepsilon_{\lambda} . M_{\lambda,T}^0 . d\lambda}{\int_0^{\infty} M_{\lambda,T}^0 . d\lambda} = \frac{\int_0^{\infty} \varepsilon_{\lambda} . M_{\lambda,T}^0 . d\lambda}{\sigma . T^4} \quad \text{Equation A7-6}$$

Dans le cas d'un milieu absorbant et diffusant, le coefficient d'extinction spectrale $k_{ext,\lambda}$ est défini de la manière suivante :

$$L_{\lambda,T}(x+dx) - L_{\lambda,T}(x) = -k_{ext,\lambda}(x) \cdot L_{\lambda,T}(x) \cdot dx \quad \text{Equation A7-7}$$

L'extinction spectrale de la tranche de milieu absorbant et diffusant correspond donc à $k_{ext,\lambda}(x) \cdot dx$. Le coefficient d'extinction correspond pour un tel milieu à la conjugaison de l'absorption et de la diffusion :

$$k_{ext,\lambda}(x) = k_{abs,\lambda}(x) + k_{diff,\lambda}(x) \quad \text{Equation A7-8}$$

ou $k_{abs,\lambda}(x)$ et $k_{diff,\lambda}(x)$ sont respectivement les coefficients d'absorption et de diffusion du milieu. A l'équilibre thermodynamique, l'émissivité spectrale et l'absorptivité spectrale étant égales il vient :

$$k_{abs,\lambda}(x) \cdot dx = \varepsilon_{\lambda} \quad \text{Equation A7-9}$$

La variation de la luminance spectrale dans la tranche dx de milieu absorbant est alors de la forme:

$$dL_{\lambda}(x) = -k_{ext,\lambda}(x) \cdot L_{\lambda,T}(x) \cdot dx + L_{\lambda,T}(x) \quad \text{Equation A7-10}$$

$$dL_{\lambda}(x) = -k_{ext,\lambda}(x) \cdot L_{\lambda,T}(x) \cdot dx + \varepsilon_{\lambda,T} \cdot L_{\lambda,T}^{\circ}(x) \quad \text{Equation A7-11}$$

$$dL_{\lambda}(x) = -k_{ext,\lambda}(x) \cdot L_{\lambda,T}(x) \cdot dx + k_{abs,\lambda}(x) \cdot L_{\lambda,T}^{\circ}(x) \cdot dx \quad \text{Equation A7-12}$$

En considérant un milieu homogène en température et spatialement : $k_{ext,\lambda} = \int_{x=0}^{x=l} k_{ext,\lambda} \cdot dx$ d'épaisseur l et où le rapport entre l'absorption et l'extinction est constant, on obtient après intégration :

$$L_{\lambda,T}(l) = L_{\lambda,T}(0) \cdot \exp(-k_{ext,\lambda} \cdot l) + L_{\lambda,T}^{\circ}(l) \cdot \frac{k_{abs,\lambda}}{k_{ext,\lambda}} (1 - \exp(-k_{ext,\lambda} \cdot l)) \quad \text{Equation A7-13}$$

L'émissivité spectrale ε_{λ} est alors telle que :

$$\varepsilon_{\lambda} = \frac{k_{abs,\lambda}}{k_{ext,\lambda}} (1 - \exp(-k_{ext,\lambda} \cdot l)) \quad \text{Equation A7-14}$$

Et l'émissivité totale devient :

$$\varepsilon = \frac{\int_0^{\infty} \frac{k_{abs,\lambda}}{k_{ext,\lambda}} (1 - \exp(-k_{ext,\lambda} \cdot l)) M_{\lambda,T}^{\circ} \cdot d\lambda}{\sigma \cdot T^4} \quad \text{Equation A7-15}$$

En considérant enfin que l'épaisseur optique $k_{ext,\lambda} \cdot l$ est faible devant 1, il vient :

$$1 - \exp(-k_{ext,\lambda} \cdot l) = k_{ext,\lambda} \cdot l \quad \text{Equation A7-16}$$

L'émissivité totale prend alors la forme suivante :

$$\varepsilon = \frac{\int_0^{\infty} k_{abs,\lambda} \cdot l \cdot M_{\lambda,T}^{\circ} \cdot d\lambda}{\sigma \cdot T^4} \quad \text{Equation A7-17}$$

Et enfin en remplaçant l'émittance du corps noir :

$$\varepsilon = \frac{2\pi h c^2 l}{\sigma T^4} \int_0^{\infty} k_{abs,\lambda} \cdot \lambda^{-5} \left(\exp\left(\frac{h \cdot c}{\lambda \cdot T}\right) - 1 \right)^{-1} \cdot d\lambda \quad \text{Equation A7-18}$$

Le paramètre à déterminer est donc le coefficient spectral d'absorption, et son établissement repose essentiellement sur la détermination de l'indice optique du matériau étudié pour une large gamme de longueur d'onde.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- ABDUL-KHALEK I., KITTELSON D., BREAR F. The influence of dilution conditions on diesel exhaust particle size distribution measurements, *SAE Technical paper series*, 1999-01-1142, 1-9, 1999
- BARAKAT M., SOUIL J.-M., BREILLAT C., VANTELON J.-P. Propriétés d'extinction des fumées produites par le fioul domestique en combustion vive, *Revue Générale de Thermique*, vol. 36, 415-432, 1997
- BARON P.A., WILLEKE K. *Aerosol measurement - Principles, Techniques and Applications*, second edition, ISBN 0-471-35636-0, 2001
- BERRY M.V., PERCIVAL I.C. Optics of fractal clusters such as smoke, *Optica Acta*, vol.33, 577-591, 1986
- BOHREN C.F., HUFFMAN D.R. *Absorption and scattering of light by small particles*, ISBN 0-471-29340-7, 1983
- BRASIL A.M., FARIAS T.L., CARVALHO M.G. A recipe for image characterization of fractal-like aggregates, *Journal of Aerosol Science*, vol.30, 1379-1389, 1999
- BRASIL A.M., FARIAS T.L., CARVALHO M.G. Evaluation of the fractal properties of cluster-cluster aggregates, *Aerosol Science and Technology*, vol.33, 440-454, 2000
- BRASIL A.M., FARIAS T.L., CARVALHO M.G., KÖYLÜ Ü.Ö. Numerical characterization of the morphology of aggregated particles, *Journal of Aerosol Science*, vol.32, 489-508, 2001
- CAI J., LU N., SORENSEN C.M. Comparison of size and morphology of soot aggregates as determined by light scattering and electron microscope analysis, *Langmuir*, vol.9, 2861-2867, 1993
- CAI J., LU N., SORENSEN C.M. Analysis of fractal cluster morphology parameters: structural coefficient and density autocorrelation function cutoff, *Journal of Colloidal and Interface Science*, vol.171, 470-473, 1995
- CHANG H., CHARALAMPOPOULOS T.T. Determination of the wavelength dependence of refractive indices of flame soot, *Proceedings: Mathematical and physical sciences*, vol.430, 577-591, 1990
- CHARALAMPOPOULOS T.T., FELSKÉ J.D. Refractive indices of soot particles deduced from in-situ laser light scattering measurements, *Combustion and Flame*, vol.68, 283-294, 1987
- CHARALAMPOPOULOS T.T. An automated light scattering system and a method for the *in situ* measurement of the index of refraction of soot particles, *Review of Scientific Instruments*, vol.58, 1638-1646, 1987
- CHOI M.Y., HAMINS A., MULHOLLAND G.W., KASHIWAGI T. Simultaneous optical measurements of soot volume fraction and temperature in premixed flames, *Combustion and Flame*, vol.99, 174-186, 1994
- CHOI M.Y., MULHOLLAND G.W., HAMINS A., KASHIWAGI T. Comparisons of the soot volume fraction using gravimetric and light extinction techniques, *Combustion and Flame*, vol.102, 161-169, 1995
- COLBECK I., HARDMAN E.J., HARRISON R.M. Optical and dynamical properties of fractal clusters of carbonaceous smoke, *Journal of Aerosol Science*, vol.20, 765-774, 1989
- COLBECK I., ATKINSON B., JOHAR Y. The morphology and optical properties of soot produced by different fuels, *Journal of Aerosol Science*, vol.28, 715-723, 1997
- DALZELL W.H., SAROFIM A.F. Optical constants of soot and their application to heat-flux calculations, *Journal of Heat Transfer*, vol.91, 100-104, 1969
- DALZELL W.H., WILLIAMS G.C., HOTTEL H.C. A light-scattering method for soot concentrations measurements, *Combustion and Flame*, vol.14, 161-170, 1970

- DELICHATSIOS M.A. *Air entrainment into buoyant jet flames and pool fires*, The SFPE Handbook of Fire Protection Engineering, 2^d Edition, p 2-20, 1995
- DOBBINS R.A., MEGARIDIS C.M. Morphology of flame-generated soot as determined by thermophoretic sampling, *Langmuir*, vol.3, 254-259, 1987
- DOBBINS R.A., MEGARIDIS C.M. Absorption and scattering of light by polydisperse aggregates, *Applied Optics*, vol.30, 4747-4754, 1991
- DOBBINS R.A., MUHOLLAND G.W., BRYNER N.P. Comparison of a fractal smoke optics model with light extinction measurements, *Atmospheric Environment*, vol.28, 889-897, 1994
- DRAINE B.T., FLATAU P.J. Discrete-Dipole Approximation for scattering calculations, *Optical Society of America*, vol.11, 1491-1499, 1994
- EHARA K., HAGWOOD C., COAKLEY K.J. Novel method to classify aerosol particles according to their mass-to-charge ratio - aerosol particle mass analyser, *Journal of Aerosol Science*, vol. 27, 217-234, 1996
- FARIAS T.L., KÖYLÜ Ü.Ö., CARVALHO M.G. Range of validity of the Rayleigh-Debye-Gans theory for optics of fractal aggregates, *Applied Optics*, vol.35, 6560-6567, 1996
- FARIAS T.L., CARVALHO M.G., KÖYLÜ Ü.Ö. Radiative heat transfer in soot-containing combustion systems with aggregation, *Journal of Heat Transfer*, vol. 41, no. 17, 2581-2587, 1998
- FAETH G.M., KÖYLÜ Ü.Ö. Soot morphology and optical properties in nonpremixed turbulent flame environments, *Combustion Science and Technology*, vol. 108, 207-229, 1995
- FELSKE J.D., CHARALAMPOPOULOS T.T., HURA H. Determination of the refractive indices of soot particles from the reflectivities of compressed soot pellets, *Combustion Science and Technology*, vol.37, 263-284, 1984
- FUCHS N.A. On the stationary charge distribution on aerosol particles in a bipolar ionic atmosphere, *Geophysical Pura Applied*, vol.56, 185-193, 1963
- GOURIOU F. Etude granulométrique, appliquée à l'aéronautique, des particules de suies émises par une chambre de combustion tubulaire : Mesures d'extinction-diffusion de la lumière et analyse de mobilité électrique, *Thèse de Doctorat*, Université de Rouen, Mai 1999
- HABIB Z.G., VERVISCH P. On the refractive index of soot at flame temperature, *Combustion Science and Technology*, vol.59, 261-274, 1988
- HARRIS S.J, MATTI MARICQ M. Signature size distributions for diesel and gasoline engine exhaust particulate matter, *Journal of Aerosol Science*, vol. 32, 749-764, 2001
- HAUDIQUERT M. Etude de la formation et de l'oxydation des suies dans les flammes de diffusion laminaires d'éthylène - Approches expérimentale et numérique, *Thèse de Doctorat*, Université de Rouen, Janvier 1996
- HAUDIQUERT M., PATTE-ROULAND B., BOUKHALFA A., COPPALLE A. Measurements of soot particles flow rates in flame zone of turbulent diffusion flames, *Combustion Science and Technology*, vol. 132, 391-397, 1998
- HAYNES B.S., WAGNER H. GG. Soot Formation, *Progress in Energy and Combustion Science*, vol.7, 229-273, 1981
- HESS W., FRISCH H.L., KLEIN R. On the hydrodynamic behavior of colloidal aggregates, *Condensed Matter*, vol.64, 65-67, 1986

- HU B., YANG B., KÖYLÜ Ü.Ö. Soot measurements at the axis of an ethylene/air non-premixed turbulent jet flame, *Combustion and Flame*, vol. 134, 93-106, 2003
- JAGODA I.J., PRADO G., LAHAYE J. An experimental investigation into soot formation and distribution in polymer diffusion flames, *Combustion and Flames*, vol. 37, 261-274, 1980
- JAIN S., KODAS T.T. Asymptotic widths of size distributions resulting from collisional growth assuming log-normally distributed fractal aggregates, *Journal of Aerosol Science*, vol. 29, 259-261, 1998
- JAPAR S.M., SZKARLAT A.C. Measurement of diesel vehicle exhaust particulate using photoacoustic spectroscopy, *Combustion Science and Technology*, vol.24, 215-219, 1981
- JULLIEN R., BOTET R. *Aggregation and fractal aggregates*, ISBN 9971-50-248-8, 1987
- KAMIMOTO T., NAKAJIMA T., KAWASHIMA Y. Temporal measurements of mass concentration of soot aggregates in diesel exhaust by a two-wavelength extinction method, *International Journal of Engine Research*, vol.5, 453-465, 2004
- KELLY W.P., McMURRY P.H. Measurement of particle density by inertial classification of differential mobility analyser-generated monodisperse aerosols, *Aerosol Science and Technology*, vol.17, 199-212, 1992
- KENNEDY I.A. Models of soot formation and oxidation, *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 23, 95-132, 1997
- KIM H.W, CHOI M. In situ line measurement of mean aggregates size and fractal dimension along the flame axis by planar laser light scattering, vol.34, 1633-1645, 2003
- KIM J.H., MULHOLLAND G.W., KUKUCK S.R., PUI D.Y.H Slip correction measurements of certified PSL nanoparticles using a nanometer differential mobility analyser (Nano-DMA) for Knudsen number from 0.5 to 83, *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology*, vol.110, 31-54, 2005
- KISELEV A.A., MIKHAILOV E.F., VLASENKO S.S., SAPHRONOVA J.F. Experimental study of light scattering and extinction on the aggregates of soot particles, *Journal of Aerosol Science*, vol. 30, suppl.1, 863-864, 1999
- KÖYLÜ Ü.Ö., FAETH G.M. Carbon monoxide and soot emissions from liquid-fueled buoyant turbulent diffusion flames, *Combustion and Flame*, vol. 87, 61-76, 1991a
- KÖYLÜ Ü.Ö., SIVATHANU Y.R., FAETH G.M. Carbon monoxide and soot emissions from buoyant turbulent diffusion flames, *Fire Safety Science: Proceedings of the Third International Symposium*, 625-634, 1991b
- KÖYLÜ Ü.Ö., FAETH G.M. Structure of overfire soot in buoyant turbulent diffusion flames at long residence times, *Combustion and Flame*, vol. 89, 140-156, 1992
- KÖYLÜ Ü.Ö., FAETH G.M. Spectral extinction coefficient of soot aggregates from turbulent diffusion flames, *Journal of Heat Transfer*, vol.118, 415-421, 1996
- KÖYLÜ Ü.Ö., FAETH G.M. Radiative properties of flame-generated soot, *Journal of Heat Transfer*, vol.115, 409-417, 1993
- KÖYLÜ Ü.Ö., FAETH G.M. Optical properties of overfire soot in buoyant turbulent diffusion flames at long residence times, *Journal of Heat Transfer*, vol.116, 152-159, 1994
- KÖYLÜ Ü.Ö., FAETH G.M., FARIAS T.L., CARVALHO M.G. Fractal and projected structure properties of soot aggregates, *Combustion and Flame*, vol.100, 621-633, 1995a
- KÖYLÜ Ü.Ö., XING Y., ROSNER D.E. Fractal morphology analysis of combustion-generated aggregates using light scattering and electron microscope images, *Langmuir*, vol.11, 4848-4854, 1995b

- KÖYLÜ Ü.Ö., FAETH G.M. Spectral extinction coefficients of soot aggregates from turbulent diffusion flames, *Fall Meeting of the Eastern States Section of the Combustion Institute*, 211-214, 1995c
- KÖYLÜ Ü.Ö., FAETH G.M., FARIAS T.L., CARVALHO M.G. Computational evaluation of an approximate theory for the optical properties of soot, *Annual Conference on Fire Research: Book of Abstracts*, 127-128, 1994.
- KÖYLÜ Ü.Ö., McENNALLY C.S., ROSNER D.E., PFEFFERLE L.D. Simultaneous measurements of soot volume fraction and particle size/microstructure in flames using a thermophoretic sampling technique, vol.110, 494-507, 1997
- KRISHNAN S.S., LIN K.-C., FAETH G.M. Optical properties in the visible of overfire soot in large buoyant turbulent diffusion flames, *Journal of Heat Transfer*, vol.122, 517-524, 2000
- KRISHNAN S.S., FAETH G.M. Buoyant turbulent jets and flames: II.Refractive index, extinction and scattering properties of soot, *NIST GCR 00-796*, 2000
- KRISHNAN S.S., LIN K. -C., FAETH G.M. Extinction and scattering properties of soot emitted from buoyant turbulent diffusion flames, *Journal of Heat Transfer*, vol. 123, 331-339, 2001
- KÜTZ S., SCHMIDT-OTT A. Use of a low - pressure Impactor for fractal analysis of submicron particles, *Journal of Aerosol Science*, vol.21, 547-550, 1990
- LEE S.C., TIEN C.L. Optical constants of soot in hydrocarbon flames, *18th Symposium on Combustion*, 1159-1166, 1981
- LEE K.W., CHEN H. Coagulation rate of polydisperse particles, *Aerosol Science and Technology*, vol.3, 327-334, 1984
- LYYRÄNEN J., JOKINIEMI J., KAUPPINEN E.I., BACKMAN U., VESALA H. Comparison of different dilution methods for measuring diesel particle emissions, *Aerosol Science and Technology*, vol.38, 12-23, 2004
- MA X., LU J.Q., BROCK R.S., JACOBS K.M., YANG P., HU X-H. Determination of complex refractive index of polystyrene microspheres from 370 to 1610 nm, *Physics in Medicine Biology*, vol. 48, 4165-4172, 2003
- MARJAMÄKI M., KESKINEN J., CHEN D. -R., PUI D.Y.H. Performance evaluation of the electrical low-pressure impactor (ELPI), *Journal of Aerosol Science*, vol. 31, 249-261, 2000
- MARLEY N.A., GAFFNEY J.S., BAIRD J.C., BLAZER C.A., DRAYTON P.J., FREDERICK J.E. An empirical method for the determination of the complex refractive index of size-fractionated atmospheric aerosols for radiative transfer calculations, *Aerosol Science and Technology*, vol.34, 535-549, 2001
- MATTI MARICQ M., XU N. The effective density and fractal dimension of soot particles from premixed flames and motor vehicles, *Journal of Aerosol Science*, vol.35, 1251-1274, 2004
- MATSOUKAS T., FRIEDLANDER S.K. Dynamics of aerosol agglomerate formation, *Journal of Colloid and Interface Science*, vol.146, 495-506, 1991
- McMURRY P.H., WAND X., PARK K., EHARA K. The relationship between mass and mobility for atmospheric particles: a new technique for measuring particle density, *Aerosol Science and Technology*, vol. 36, 227-238, 2002
- MEDALIA A.I., HECKMAN F.A. Morphology of aggregates - II. Size and shape factors of carbon black aggregates from electron microscopy, *Carbon*, vol.7, 567-582, 1969
- MEGARIDIS C.M., DOBBINS R.A. Comparison of soot growth and oxidation in smoking and non-smoking ethylene diffusion flames, *Combustion Science and Technology*, vol.66, 1-16, 1989

- MEGARIDIS C.M., DOBBINS R.A. Morphological description of flame-generated materials, *Combustion Science and Technology*, vol.71, 95-109, 1990
- MENNA P., D'ALESSIO A. Light scattering and extinction coefficients for soot forming flames in the wavelength range from 200 to 600 nm, *19th Symposium on Combustion*, 1421-1428, 1982
- MIKKANEN P., MOISIO M., KESKINEN J., RISTIMÄKI J., MARJAMÄKI M. Sampling method for particle measurements of vehicle exhaust, *SAE Technical paper series*, 2001-01-0219, 103-106, 2001
- MULLINS J., WILLIAMS A. The optical properties of soot: a comparison between experimental and theoretical values, *FUEL*, vol.66, 277-280, 1987
- MULHOLLAND G.W., LIGGET W., KOSEKI H. The effect of pool diameter on the properties of smoke produced by crude oil fires, *26th Symposium on Combustion*, 1445-1452, 1996
- MULHOLLAND G.W., CHOI M.Y. Measurement of the mass specific extinction coefficient for acetylene and ethane smoke using the large agglomerate optics facility, *27th Symposium on Combustion*, 1515-1522, 1998
- MULHOLLAND G.W., CROARKIN C. Specific extinction coefficient of flame generated smoke, *Fire and Materials*, vol.24, 227-230, 2000
- NEWMAN J.S., STECIAK J. Characterization of particulates from diffusion flames, *Combustion and Flame*, vol.67, 55-64, 1987
- OTTO E., FISSAN H., PARK S.H., LEE K.W. The log-normal size distribution theory of brownian aerosol coagulation for the entire particle size range: part II—analytical solution using Dahneke's coagulation kernel, *Journal of Aerosol Science*, vol. 30, 17-34, 1999
- PARK S.H., LEE K.W., OTTO E., FISSAN H. The log-normal size distribution theory of brownian aerosol coagulation for the entire particle size range: Part I—analytical solution using the harmonic mean coagulation kernel, *Journal of Aerosol Science*, vol. 30, 3-16, 1999
- PARK S.H., ROGAK S.N. A novel fixed-sectional model for the formation and growth of aerosol agglomerates, *Journal of Aerosol Science*, vol. 35, 1385-1404, 2004
- PARK K., KITTELSON D.B., McMURRY P.H. Structural properties of diesel exhaust particles measured by transmission electron microscopy (TEM): relationships to particle mass and mobility, *Aerosol Science and Technology*, vol. 38, 881-889, 2004
- RENOUX A., BOULAUD D. *Les aérosols - Physique et Métrologie*, Technique & Documentation, 1998
- RISTIMÄKI J., VIRTANEN A., MARJAMÄKI M., ROSTEDT A., KESKINEN J. On-line measurement of size distribution and effective density of submicron aerosol particles, *Journal of Aerosol Science*, vol.33, 1541-1557, 2002
- ROESSLER D.M., FAXVOG F.R. Optical properties of agglomerated acetylene smoke particles at 0,5145 μm and 10,6 μm wavelengths, *Journal of the Optical Society of America*, vol.70, 230-235, 1980
- ROGAK S.N., FLAGAN R.C. Stokes drag on self-similar clusters of spheres, *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 134, 206-218, 1990
- ROGAK S.N., FLAGAN R.C. Coagulation of aerosol agglomerates in the transition regime, *Journal of Colloid and Interface Science*, vol.151, 203-224, 1992
- ROGAK S.N., FLAGAN R.C., NGUYEN H.V. The mobility and structure of aerosol agglomerates, *Aerosol Science and Technology*, vol.18, 25-47, 1993

- SAMSON R.J., MULHOLLAND G.W., GENTRY J.W. Structural analysis of soot agglomerates, *Langmuir*, vol.3, 272-281, 1987
- SCHMIDT-OTT A., BALTENSPERGER U., GÄGgeler H.W., JOST D.T. Scaling behaviour of physical parameters describing agglomerates, *Journal of Aerosol Science*, vol.21, 711-717, 1990
- SCHNAITER M., HORVATH H., MÖHLER O., NAUMANN K.-H., SAATHOFF H., SCHÖCK O.W. UV-VIS-NIR spectral optical properties of soot and soot-containing aerosols, *Journal of Aerosol Science*, vol.34, 1421-1444, 2003
- SEADER J.D., OU S.S. Correlation of the smoking tendency of materials, *Fire Research*, vol.1, 3-9, 1997
- SHEMWELL B. E., LEVENDIS Y. A. Particulates generated from combustion of polymers, *Journal of Air and Waste Management Association*, vol. 50, 94-102, 2000
- SIVATHANU Y.R., FAETH G.M. Soot volume fractions in the overfire region of turbulent diffusion flames, *Combustion and Flame*, vol.81, 133-149, 1990
- SKILLAS G., KÜNZEL S., BURTSCHER H., BALTENSPERGER U., SIEGMANN K. High fractal-like dimension of diesel soot agglomerates, *Journal of Aerosol Science*, 411-419, 1998
- SKILLAS G., BURTSCHER H., SIEGMANN K., BALTENSPERGER U. Density and fractal-like dimension of particles from a laminar diffusion flames, *Journal of Colloid and Interface Science*, 269-274, 1999
- SMITH O.I. Fundamentals of soot formation in flames with application to diesel engine particulate emissions, *Progress in Energy and Combustion Science*, vol.7, 275-291, 1981
- SMYTH K.C., SHADDIX C.R. The elusive history of $m = 1,57 - 0,56i$ for the refractive index of soot, *Combustion and Flame*, vol.107, 314-320, 1996
- SORENSEN C.M., CAI J., LU N. Light-scattering measurements of monomer size, monomers per aggregate, and fractal dimension for soot aggregates in flames, *Applied Optics*, vol.31, 6547-6557, 1992
- SORENSEN C.M., FEKE G.D. The morphology of macroscopic soot, *Aerosol Science and Technology*, vol.25, 328-337, 1996
- SORENSEN C.M. Light scattering by fractal aggregates: a review, *Aerosol Science and Technology*, vol.35, 648-687, 2001
- STAGG B.J., CHARALAMPOPOULOS T.T., Refractive indices of pyrolytic graphite, amorphous carbon, and flame soot in the temperature range 25° to 600°C, *Combustion and Flame*, vol.94, 381-396, 1993
- STARINOV A., BERESNEV S. Theoretical analysis of the optical properties of aerosols, *Journal of Aerosol Science*, vol. 28, suppl.1, 181-182, 1997
- TEWARSON A. *Generation of Heat and Chemical Compounds in Fire*, The SFPE Handbook of Fire Protection Engineering, 3^d Edition, ISBN: 087765-451-4, 2002
- TEWARSON A. Effect of ventilation on materials properties, NIST SP 998, 2003
- VANDER WAL R.L., TOMASEK A.J. Soot oxidation: dependence upon initial nanostructure, *Combustion and Flame*, vol. 134, 1-9, 2003
- VAN GULIJK C., MARIJNISSEN J.C.M., MAKEE M., MOULJIN J.A., SCHMIDT-OTT A. Measuring soot with a scanning mobility particle sizer and an electrical low-pressure Impactor: performance assessment with a model for fractal-like agglomerates, *Journal of Aerosol Science*, vol. 35, 633-655, 2004

- VAN-HULLE P., TALBAUT M., WEILL M., COPPALLE A. Inversion method and experiment to determine the soot refractive index: application to turbulent diffusion flames, *Measurement Science and Technology*, vol. 13, 375-382, 2002
- VAN-HULLE P. Caractérisation des aérosols émis par la combustion des hydrocarbures : Application à la mesure de l'indice de réfraction des suies, *Thèse de Doctorat*, Université de Rouen, Janvier 2002
- VIRTANEN A., RISTIMÄKI J., MARJAMÄKI M., VAARASLAHTI K., KESKINEN J. Effective density of diesel exhaust particles as a function of size, *SAE Technical paper series*, 2002-01-0056, 129-134, 2002
- VIRTANEN A., RISTIMÄKI J., KESKINEN J. Method for measuring effective density and fractal dimension of aerosol agglomerates, *Aerosol Science and Technology*, 437-446, 2004
- WEINERT D.W., CLEARY T., MULHOLLAND G.W. Size distribution and light scattering of test smokes, *AUBE '01 12th international conference on automatic fire detection*, 2001
- WEINERT D.W., MULHOLLAND G.W. An apparatus for light scattering studies of smoke particles, *AUBE '01 12th international conference on automatic fire detection*, 2001
- WENTZEL M., GORZAWSKI H., NAUMANN K. -H., SAATHOFF H., WEINBRUCH S. Transmission electron microscopical and aerosol dynamical characterization of soot aerosols, *Journal of Aerosol Science*, vol. 34, 1347-1370, 2003
- WIDMANN J.F., YANG J.C., BUNDY M., TSAI B.K., MULHOLLAND G.W. A laboratory apparatus for the measurement of optical extinction coefficients of postflame soot in the infrared, *Review of Scientific Instruments*, vol.74, 938-944, 2003
- WIDMANN J.F., YANG J.C., SMITH T.J., MANZELLO S.L., MULHOLLAND G.W. Measurement of the optical extinction coefficients of post-flame soot in the infrared, *Combustion and Flame*, vol.134, 119-129, 2003
- WIDMANN J.F., DUCHEZ J., YANG J.C., CONNY J.M., MULHOLLAND G.W. Measurement of the optical extinction coefficient of combustion-generated aerosol, *Journal of Aerosol Science*, vol.36, 283-289, 2005
- WIEDENSOHLER A., LÜTKEMEIER E., FELDPAUSCH M., HELSPER C. Investigation of the bipolar charge distribution at various gas conditions, *Journal of Aerosol Science*, vol.17, 413-416, 1986
- WIEDENSOHLER A. An approximation of the bipolar charge distribution for particles in the submicron size range, *Journal of Aerosol Science*, vol.19, 387-389, 1988
- WU M.K., FRIEDLANDER S.K. Enhanced power law agglomerate growth in the free molecule regime, *Journal of Aerosol Science*, vol.24, 273-282, 1993
- WU Z., COLBECK I., SIMONS S. Determination of the fractal dimension of aerosols from kinetic coagulation, *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol.27, 2291-2296, 1994
- WU J.-S., KRISHNAN S.S., FAETH G.M. Refractive indices at visible wavelengths of soot emitted from buoyant turbulent diffusion flames, *Journal of Heat Transfer*, vol.119, 230-237, 1997
- ZHU J., CHOI M.Y., MULHOLLAND G.W., GRITZO L.A. Soot scattering measurements in the visible and near-infrared spectrum, *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 28, 439-446, 2000
- ZHU J., CHOI M.Y., MULHOLLAND G.W., GRITZO L.A. Measurement of soot optical properties in the near-infrared spectrum, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol.43, 3299-3303, 2000
- ZUKOSKI E.E., CETEGEN B.M., KUBOTA T. Visible structure of buoyant diffusion flames, *Proceedings of Twentieth Symposium (International) on Combustion*, The Combustion Institute, p 361-366, 1984

CARACTERISATION DES AEROSOLS EMIS LORS D'UN INCENDIE

Résumé :

Ce travail porte sur la caractérisation des particules de suie présentes dans les zones de fumées de flammes de diffusion turbulentes sur-ventilées. Trois combustibles ont été étudiés : acétylène, toluène et PolyMethylMethacrylate. La granulométrie des suies a été mesurée en ligne après dilution, avec une discussion sur la réponse des dispositifs métrologiques dans le cas d'agrégat de morphologie fractale. La dimension fractale et le préfacteur ont été déterminés à partir des analyses de clichés de microscopie électronique. La masse volumique effective des agrégats a de plus été déterminée à l'aide d'une analyse en série de leurs diamètres de mobilité électrique et aérodynamique. L'indice optique des particules de suie a ensuite été calculé pour deux longueurs d'onde (632 et 1064 nm) en utilisant une méthode d'inversion s'appuyant sur les mesures précédentes et celles des coefficients expérimentaux d'extinction et de diffusion vertical-vertical. Les résultats obtenus sont apparus cohérents entre les trois combustibles et des valeurs moyennes d'indice ont été établies ($m=1,56-0,61.i$ à 632 nm et $m=1,71-0,86.i$ à 1064 nm).

Mots clés :

Incendie, zone de fumées, flamme de diffusion turbulente sur-ventilée, agrégats fractals, granulométrie, microscopie électronique, indice optique des suies, diagnostics optiques.

~ ~ ~ ~

CHARACTERIZATION OF AEROSOLS EMITTED DURING A FIRE

Summary:

This work deals with the characterization of soot particles present in the plumes of highly ventilated turbulent diffusion flames. Three fuels have been studied: acetylene, toluene and PolyMethylMethacrylate. The size distribution of soot particles was measured on line after dilution, with a discussion about the response of the metrological devices to fractal aggregates. The fractal dimension and the prefactor have been determined from electronic microscopy micrographs analysis. The effective density of the soot aggregates has been also determined by a serial analysis of their electrical mobility and aerodynamic diameters. Then the refractive index of soot particles has been computed at two wavelengths (632 and 1064 nm) by an inversion method based on previous measurements and on measurements of extinction and vertical-vertical scattering coefficients. Results obtained for the three fuels appeared to be consistent with each other and mean values of refractive indices have been established ($m=1.56-0.61.i$ at 632 nm and $m=1.71-0.86.i$ at 1064).

Keywords:

Fire, plumes, highly ventilated turbulent diffusion flames, fractals aggregates, size distribution, electronic microscopy, soot refractive index, optical diagnostics.